

**ДРУШТВО ЗА ЗАШТИТУ ОД ЗРАЧЕЊА  
СРБИЈЕ И ЦРНЕ ГОРЕ**



# ЗБОРНИК РАДОВА

**XXVIII СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ  
Вршац  
30. септембар - 2. октобар 2015. године**

**Београд  
2015. године**

ЗБОРНИК РАДОВА

XXVIII СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ  
30.09-2.10.2015.

Издавачи:

Институт за нуклеарне науке „Винча“

Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

За извршног издавача:

Др Борислав Грубор

Уредник:

Др Гордана Пантелић

ISBN 978-86-7306-135-1

© Institut za nuklearne nauke „Vinča“

Техничка обрада: Гордана Пантелић, Јелена Станковић

Припрема завршена септембра 2015.

XXVIII СИМПОЗИЈУМ ДРУШТВА  
ЗА ЗАШТИТУ ОД ЗРАЧЕЊА  
СРБИЈЕ И ЦРНЕ ГОРЕ  
Вршац, од 30.09. до 2.10.2015. године

Организатори:

**ДРУШТВО ЗА ЗАШТИТУ ОД ЗРАЧЕЊА СРБИЈЕ И ЦРНЕ ГОРЕ**

**ИНСТИТУТ ЗА НУКЛЕАРНЕ НАУКЕ „ВИНЧА“**

**Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине „Заштита“**

Организациони одбор:

Председник: Гордана Пантелић

Чланови:

Маја Еремић Савковић  
Софија Форкапић  
Вера Спасојевић-Тишма  
Иван Кнежевић  
Јелена Пајић  
Данијела Аранђић  
Сандра Ђеклић  
Милица Рајачић  
Предраг Божовић  
Милош Живановић

Редакциони одбор:

Оливера Цирај-Бјелац  
Драгана Тодоровић  
Марко Нинковић  
Иштван Бикит  
Драгослав Никезић  
Невенка Антовић  
Душан Мрђа  
Миоаг Крмар  
Ивана Вуканац  
Мирјана Ђурашевић  
Марија Јанковић  
Владимир Удовичић  
Горана Ристић

Организацију су помогли:

Министарстви просвете, науке и технолошког развоја Републике Србије

Институт за нуклеарне науке „Винча“, Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине

Излагачи:

Canberra Packard Central Europe GmbH.

ION d.o.o.  
Bulevar Mihaila Pupina 11/53  
11070 Novi Beograd, Srbija  
Tel. +381 (0)11 6145-295  
<http://www.ion.rs>

LKB Vertriebs GmbH, Predstavništvo Beograd  
Свијићева 115, RS-11120 Beograd  
Tel. +381 (0)11 676 6711  
Fax. +381 (0)11 675 9419  
Web. [www.lkb.eu](http://www.lkb.eu)

ТИМ Цо.  
Јована Рајића 5ц  
11000 Београд  
Тел: +381 11 2836-786, 2836-787  
Фах: +381 11 2833-342  
<http://www.timco.rs/>

*Овај Зборник је збирка радова саопштених на XXVIII Симпозијуму Друштва за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе који је одржан од 30.09. до 2.10.2015. године у Вршицу. Радови су разврстани по секцијама. Мада су сви радови у Зборнику рецензирани од стране Редакционог одбора, за све изнесене тврдње и резултате одговорни су сами аутори.*

*Југословенско друштво за заштиту од зрачења основано је 1963. године у Порторожу, а од 2005. године носи име Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе.*

*На претходном симпозијуму је Друштво обележило изузетан јубилеј – 50 година организоване заштите од зрачења на простору бивше Југославије. И ове године је Симпозијум Друштва за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе прилика да кроз стручни програм предочимо напредак у области заштите од зрачења, анализирамо досадашње резултате и актуелна дешавања, разменимо искуства са колегама из земље и региона, али и да сретнемо старе и упознамо нове пријатеље.*

*Организациони одбор се захваљује ауторима и коауторима научних и стручних радова на доприносу и уложеном труду. Посебно се захваљујемо спонзорима који су помогли одржавања Симпозијума.*

*Организациони одбор*

CIP - Каталогизација у публикацији  
Народна библиотека Србије, Београд

502:504.5]:539.16(082)(0.034.2)

614.875/.876(082)(0.034.2)

539.16.04(082)(0.034.2)

539.1.074/.08(082)(0.034.2)

577.1:539.1(082)(0.034.2)

ДРУШТВО за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе (Београд). Симпозијум (28  
; 2015 ; Вршац)

Зборник радова [Електронски извор] / XXVIII симпозијум ДЗЗСЦГ  
[Друштва за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе], Вршац, 30. септембар -  
2. октобар 2015. ; [организатори Друштво за заштиту од зрачења Србије и  
Црне Горе [и] Институт за нуклеарне науке Винча, Лабораторија за заштиту од  
зрачења и заштиту животне средине Заштита ; уредник Гордана Пантелић]. -  
Београд : Институт за нуклеарне науке "Винча" : Друштво за заштиту од  
зрачења Србије и Црне Горе, 2015 (Београд ; Институт за нуклеарне науке  
"Винча"). - 1 USB флеш меморија : текст ; 1 x 1 x 3 cm

Системски захтеви: Нису наведени. - Насл. са насловне стране документа. -  
Радови на срп. и енгл. језику. - Текст ћир. и лат. - Тираж 100. -  
Библиографија уз већину радова. - Abstracts. - Регистар.

ISBN 978-86-7306-135-1

а) Заштита од јонизујућег зрачења - Зборници б) Животна средина -  
Загађење радиоактивним материјама - Зборници с) Радиоактивно зрачење -  
Штетно дејство - Зборници д) Нејонизујуће зрачење - Штетно дејство -  
Зборници е) Радиобиологија - Зборници ф) Дозиметри - Зборници

COBISS.SR-ID 217821452

# **ОПШТИ ПРОБЛЕМИ ЗАШТИТЕ ОД ЗРАЧЕЊА**

# DIGITAL SOCIETY INNOVATION AND OPEN PARTICIPATORY POLICY IN THE RADIATION PROTECTION: BIG THINKING

**Gordana LAŠTOVIČKA-MEDIN**

*Faculty of Science and Mathematics, University of Montenegro*

## ABSTRACT

*This paper explores the opportunities and gives an insight into a new movement in society, „digital social innovation“. To keep high standards in radiation protection a new policy for integrating digital social innovations into regulatory framework – open participatory policy, is required*

## 1. Introduction

There are initiatives in the area of open access, such as Global System Science, providing scientific evidence to support civil society to collectively engage in societal actions and policy-making. Another relevant initiative is Digital Science, which has synergies with Art & ICT, and promotes a conscious dialogue between technology, the Arts and societal issues to expand our understanding of technology in today's societies. New initiatives, launched in Horizon 2020 on Human-centric Digital Age and Responsible Research and Innovation, aim to promote societal engagement, gender equality in research, open innovation content and open access. The European Commission (EC) used term Collective Awareness Platform for Sustainability and Innovation in the context of the Seventh Framework Programme of research in order to identify a new group of research projects under umbrella of Digital Social Innovations. The emerging applications that are globally called as “digital social innovations” [1] are examples of how humans can find new ways to collaborate in amazing manners, overcoming geographical, cultural and social barriers, and reinventing the way society can thrive in a world with ever decreasing availability of natural resources. There is only one natural resource that is now available in larger amounts than in the past: humans. Connecting them, in novel, pervasive, widespread and affordable manners, is perhaps the biggest breakthrough enabled by digital technologies. Several names have been given to this: network effects, collective intelligence, hyper-connected societies. Open data increases awareness and coordination, creates new opportunities for innovation, and strengthens inclusion, participation and, ultimately, human well-being. The case of Safecast gave a new dimension to the radiation protection by pioneering the citizen participatory. The number of smart personal devices such as Wearable things and Internet of Things that facilitate the anywhere/anytime access to the Internet, and to new services So-called Cyber Physical Systems (CPS), are increasing and Big Data is growing.

However, all these emerging Digital Social Innovations need acknowledgment by policy makers through their legalisation and integration into existing regulatory framework. This way web-data and emerging technologies will be subjected to international safety standards and better communicated.

Why do we introduce the concept of societal innovations into the framework of the radiation protection? Radiation protection is aimed to protect society and thus it cannot be successfully understood nor effectively implemented without human-centred approaches. A counterpoint to the top-down strategies, imposed by government



agencies, is the bottom-up, human-centred approach that is characterised by emergent forms of community intelligence [1]. Relevant bottom-up initiatives are the Collective Awareness Platforms for Sustainability and Social Innovation (CAPS) whose framework [2] we use through our research in order to explore a new emerging bottom-up approaches in radiation protection. The research question in this paper is to explore and understand where and how the next big change can emerge in the field of radiation protection.

## **2. Nuclear energy risk and climate change**

As our world becomes increasingly interconnected and very complex, we become increasingly vulnerable to systematic risk. The Earth's surface and atmosphere are increasingly subject to anthropogenic change. This suggest that, although all 'natural hazards' are triggered by physical forces, certain events and their outcomes may be influenced by human actions, whether deliberate or unintended. One group of hazards has a clear hybrid identity. These are the natural-technological hazards that arise when extreme natural processes lead to the failure of industrial structures and other assets within the built environment. Although triggered by natural forces, the main threat often comes from pollution in the atmosphere or surface waters, due to accidental releases of dangerous substances [3].

Nuclear industry cannot be anymore seen separately from the challenges induced by climate changes. Even we accept that nuclear industry produce 'zero' CO<sub>2</sub> emission (not taking into account uranium mining), nuclear industry is significantly subjected to high risks due to natural treats stimulated by climate changes such as more powerful tsunamis and earthquakes, as it has been already seen in the case of Fukushima nuclear accidents. Many physical processes in the Earth's crust and its atmosphere are driven by forces that operate on hemispheric, or even planetary, scales and deploy vast amounts of energy and materials. A few – like asteroid collisions with the Earth – have the potential to create a global catastrophe not yet experienced in human history. In turn, certain hazardous processes, on both local and regional scales, are influenced by global environmental changes. Some changes are due to natural variations in climate, but human-induced modifications of the Earth-atmosphere system play an increasing role. Global interactions and environmental changes are not necessarily hazards in themselves. Sometimes they offer opportunities as well as risks, but all too often they amplify the disaster potential of existing natural and technological treats. This situation highlights the need for a better understanding of the worldwide coupled human-environmental system (CHES). A wider perspective ensures that hazards and disasters are now seen as complex issues nested within a setting that includes global change and sustainability issues. When we refer to collaboration of human and non-human actors we think of data being gathered by engaging both citizens and sensors, and the process of making sense of the information they both produce in collaborative process of learning and sharing knowledge.

As challenges in nuclear industry cannot be anymore seen separately from the challenges induced by climate changes, hazards and disasters cannot longer be viewed as site-specific events capable of regulation by local responses alone. In some instances the wider links and consequences are fairly clear; for example, global warming drives sea-levels rise, moving of Earth's plates and earthquakes, as well as giving birth to more powerful tsunamis and hurricanes (dramatic effect seen in Fukushima nuclear accidents

where risk due to environmental changes due to global warming was ignored by decision policy makers). Human responsibilities to natural and na-tech (natural-technological) hazards are connected closely to human awareness and their sensitivity to environmental hazards. This means the following: human sensitivity to environmental hazards is determined by the physical exposure of people and their assets to potentially damaging events and by the degree of human vulnerability (or resilience) to such damaging events.

The Great 9.0 magnitude Tohoku earthquake in Japan is a classic example of a natural-technological disaster. In this case a series of events triggered by an earthquake, quickly followed by tsunami waves, caused extensive damage to Fukushima nuclear power facility and realised significant amount of radioactive material into the environment. The Fukushima disaster was a compound catastrophe caused by systematic negligence over safety precautions in a highly-developed country that is prone to environmental hazards. There was a lack of minimum protection against potential accidents, with flaws identified how the private corporation run nuclear power plants across the country, and how these facilities were regulated.

Policymakers must define acceptable levels of risk in the nuclear power industry. But what is an adequate level of protection and support, and how can government act to reduce the vulnerabilities that can lead to disasters? There is danger in focusing on minimum safety standards, as risk is unevenly distributed across population and frequently outsourced from richer to poorer areas. While uneven risk distribution is often hidden in everyday life, disasters render it visible and are therefore political proving grounds that highlight the degree of care and protection governments afford citizens in relation to risk exposure and post-disasters support” [4]. It may be decades before we know the full effect of the Fukushima disasters. Examples of nuclear and chemical disasters clearly show how ‘disaster’ may come to refer less to the original explosion in a nuclear plant and chemical factory and more to failure in the recovery and accountability process. “The Fukushima disaster is a stark manifestation of risks combining human decision-making, technological design, and natural hazards. The causes of vulnerability that lead to compound disasters are more political and economic than environmental: understanding and accepting responsibility for this is essential to reducing risk”[4].

Policymakers must acknowledge and legalised participation of society through DSI in decision making. If nuclear industry is aimed for society good, then society has to be involved in regulations. Climate change is choice of social justice as well as developing nuclear industry.

### **3. Credibility of authorized data and its extrapolation**

Hazards has never been transparent. DSI are opening insights into accountability. Here we give few examples. It was obvious that large amount of radioactivity escaped from the Three Mile Islands. But, the nuclear industry and the government did not collect release estimates for specific isotopes, and to this day, there is neither available information about which isotopes escaped nor the actual quantity of radiation that was released. The only estimates of radiation release were made by extrapolating data obtained by gamma radiation monitors – thermoluminescent dosimeters (TLDs). A TLD measures ionizing radiation exposure by measuring the intensity of visible light emitted from a crystal in the detector when the crystal is heated. The intensity of light emitted is dependent upon the radiation exposure. Materials are exhibiting thermoluminescence in

response to ionizing radiation. Additionally, the important fact is that TLD measure only gamma radiation, and cannot measure beta and alpha radiation. No alpha and beta radiation was ever measured. It is known that radiation from the Three Mile Island travelled long distance but nuclear authorities kept saying radiation was trapped in narrow region. No clear measureable health effects were reported.

On April 26, 1986, Unit Four of the Chernobyl nuclear power plant exploded. In 2005, the International Atomic Energy Agency (IAEA) produced a United Nations Report on Chernobyl, claiming that only fifty-six people had died as a result of the accident. The IAEA has a conflict of interest when it comes to monitoring the health consequences of radiation because, in 1959, the IAEA signed a somewhat diabolical agreement with the World Health Organisation (WHO), preventing WHO from researching health consequences emanating from atomic, military, and civilian use of the atom, even preventing them from issuing warnings to exposed populations. It seems since 1986, the WHO did nothing about studying Chernobyl, and the interdiction to publish which fell upon WHO conference came from the IAEA. Dr Michel Fernex, who worked with WHO said in 2004 [5]: “ ... Six years ago we tried to have a conference. .. The IAEA blocked the proceedings; the truth would have been a disasters for the nuclear industry”[6]. However, a lot of facts has been accumulated in last two decades. In Belarus near Chernobyl from 1986 to 201, 8358 cases of thyroid cancer occurred, 716 in children. Most of those affected have had their thyroids removed, but a person cannot survive without hormones produced by the thyroid glands, so these children and adults are dependent upon receiving replacement tablets. In 1994, the UN Office for the Coordination of Human Rights made a tragic statement “Eighteen years ago today, nearly 8.4 million people in Belarus, Ukraine and Russia were exposed to radiation. ... Now Agricultural areas covering near 52000 km<sup>2</sup> were ruined... Now, roughly 6 million people leave in affected area.” [7]. Furthermore, In 2001, the United Nation Development Program – United Nations Children’s Fund (UNDP-UNICEF) mission summarized: The health situation encountered in the population living in the affected territories is thus a complex product of inputs ranging from radiation induced diseases, through endemic disease, poverty, poor living conditions, primitive medical services, poor diet, and the psychological consequences of living with a situation that was frightening, poorly understood and over which there seemed little control .

An international team assembled by World Health Organisation (WHO) looked at a number of populations in Fukushima prefecture and estimated their exposure to radiation as a result of the accident in March 2011. As publicly said these exposures were carefully extrapolated assuming a linear relationship between exposure and health damage. The results were released on February 23th, 2013, in report entitled, *Health risk assessment from nuclear accident after 2011 Great East Japan Earthquake and Tsunami*. For general population in wider Fukushima prefecture, across Japan and beyond, “the predicted risks are low and no observable increases in cancer rates above baseline rates are anticipated”, said WHO. According to English Oxford Dictionary word ‘anticipate’ means ‘be aware of a future event and prepare for it’, or ‘expect something; look forward to something; do something earlier then someone else’. Aware means having knowledge of a situation or fact. Awareness is not fact, it is knowledge of facts. Actually what was said in report was that they do not have knowledge of increase in cancer that can be induced by radiation in future.

We believe that the solution to more ethical research will be in encouraging and supporting digital social innovations through process of legalisation and

acknowledgement. New initiatives launched in Horizon 2020 on Human-centric Digital Age and Responsible Research and Innovation, aim to promote societal engagement and innovation content, open access and ethics across all research initiatives. Digital social innovations will also increase the credibility of reports released by authorized agencies by requiring better transparency and accountability of data.

#### **4. Digital social innovations**

The question is how to use framework of Collective Awareness Platforms for Sustainability and Innovations so that radiation protection can benefit from it? How to transform scientific radiation society by incorporating the interactive intelligent multimedia and citizen participatory through digital social innovations?

First of all let us to explain the meaning of Collective Awareness Platforms for Sustainability and Social Innovations (CAPS). The European Commission (EC) first used this label in 2012, in the context of the Seventh Framework Programme of research in order to identify a new group of research projects and, in some sense, a new area of research [8]. In [2] the social innovation is defined as new product, services or methods that tackle pressing and emerging social issues which, at the same time, transform social interactions promoting new collaboration and relationships. For more details about growing idea behind social innovation we refer to [9-12]. Applying definition of social innovation in the field of radiation protection and measurement it becomes obvious that social innovation represents both product and process innovation: to generate a new product (radiation risk levels; relationship between radiation exposure and health consequences)/service (monitoring, detection) by changing, at the same time, the way in which this product/service is produced (open participatory, open content and open source). At the same time the way in which a new product (our knowledge) is produced affect the way how regulation is renewed and then self-(de)regulated. This is delicate issue in particular if there was previously asymmetric flow of information between those who expose/control regulation and those who are imposed to regulation (protected), and where accountability of regulation depends on feed-back of those who are 'protected'. The contribution of open knowledge, which is co-production of new knowledge and crowd mobilisation based on open content, open source and open access, covers the variety of ways in which citizens can use online services for mass scale social collaboration. Recent global development of open knowledge have revealed increasing demand of citizens for governments and administrations to become more participatory, transparent and accountable (in particular in countries with developed nuclear industry).

Social innovations in radiation protection and measurement benefit society 'twice', firstly by proposing a solution to a specific problem (harnessing of collective intelligence and gathering the data for radiation policy-decision makers). Secondly, the human responses to radiation, both physical and psychological are subjected to changes through participatory in 'building' solutions. Thus, to achieve success, social innovation initiatives should be 'social' in two ways: on one hand they should benefit society by opening innovative solutions to social issues such as climate change and nuclear hazards, and, on the other hand, they should engage the society in developing such innovation. In other terms, social innovation generally refers to the necessity of engaging and including citizens in the process of change. Thus citizens are not only engaged in education frameworks of collective awareness platforms but through their

engagement and increase in their awareness the radiation protection association becomes subjected to the control.

Actually, the term ‘social innovation’ is not new, but rather, it emerged after French revolution but with different connotations [2]. On the one hand social innovation was synonymous with radical socialism represented by thinkers such as Fourier, Proudhon, St-Simon, and called for a drastic and fundamental change of social order. On the other hand it was linked to social reforms and social justice. At the end of the nineteenth century, social innovation lost its revolutionary appeal and becomes an adjective for ‘alternative to the norm’, non-conformist: anything new in society. In this sense, social entrepreneurship and the cooperative movement of the 60’s can be seen as important examples of social innovations [2]. At present, social innovation re-emerged as a term that contrasted with technological innovation, but in the way, as request for action, for more attention to be attributed to the social aspect of innovation, which has been perceived as neglected by the hegemonic role of technology. It is interesting to notice therefore, that in the Collective Awareness Platforms for Sustainability, social innovation is not in opposition to technological innovation but, in contrary, technology is seen as a fundamental tool for enabling, supporting and multiplying social innovations. Collective awareness platforms are socio-technical solutions, which rely on interdisciplinary approaches and methods. Terms such as ‘open innovation’ and ‘open evaluation’ are also linked with collective awareness platforms. Innovation is no longer created in a closed lab, but is co-created by different stakeholders who share the knowledge, risk and benefits of the innovations. The same happen with nuclear industry in relation to new nuclear plants. Governments and research labs open themselves to the socio-economic content, multiplying their collaborative link and sharing their knowledge.

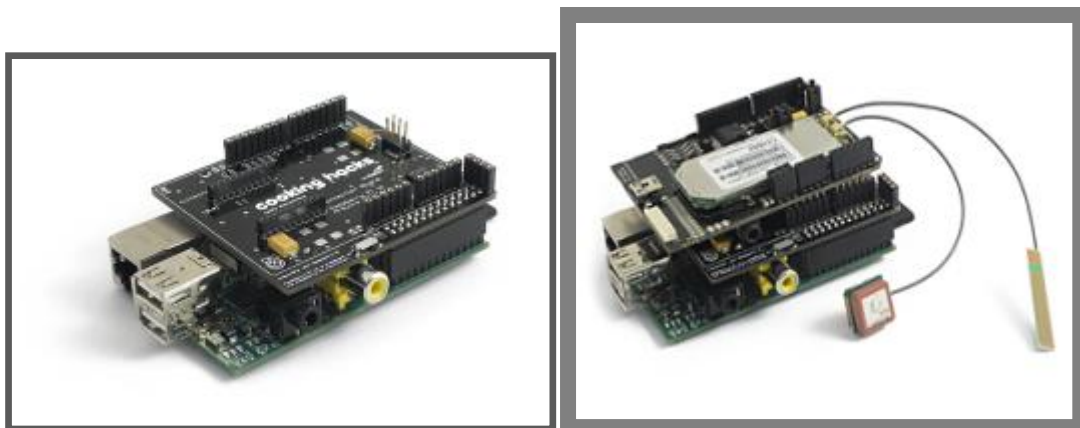
Moving from citizen engagement to the data that these citizens produce on the web, challenge is how to make that social segregation (data) reliable, trustworthy and meaningful. Radiation protections issue as well as climate change issue are issues of social justice. To investigate the radiation effects on health it is important to apply bottom-up approach. The demand from society to reduce risks linked to production and consumption of nuclear energy can also be a source of innovation. Strict regulations can even drive out less credible competitors. Society’s demand for security is growing, independently from any legal expression. Nuclear industry can respond and benefit from it. In the development of innovations and new technologies, the first possible solution – and unfortunately the easiest one – would be to say as little as possible and to avoid presenting and debating risk. These solutions may be tempting for some but it is not good strategy in the long run: the first incident associated with a given new technology would spark a media campaign that could stop its development. Thus, we might take for granted that the participation of civil society (public and all stakeholders) is necessary in the definition and treatment of a regulatory framework for new technologies. At the end, innovations have to serve social good. Importantly, to keep high standards in radiation protection a new policy for integrating digital social innovations into regulatory framework is needed. Additionally, request for testing the safety as well as reliability of equipment designed under Open source is needed.

Digital social innovation will grow through three levels aiming to integrate multidisciplinary scientific understandig and opening new views on environmental impact on humanity, including radiation-human interactions: multidisciplinary, interdisciplinarity and transdisciplinarity. Multidisciplinary involves sequencing

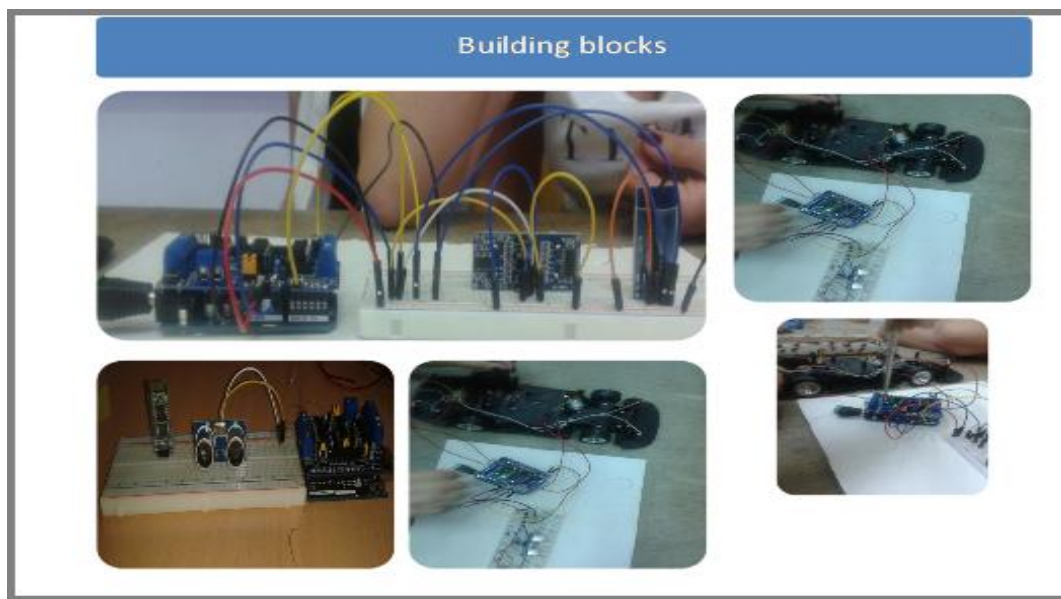
information, and coordination of different perspectives and methodologies. Interdisciplinarity implies a step forward (higher level): to integrate different perspectives on a common problem – radiation induced cancers, which is not well understandable or reports were controversial and thus matter of opposing perspectives (individual studies has been rejected by organisations such as IAEA, WHO) under the lens of a single discipline (nuclear physics, biology, medicine). Interdisciplinary approach is characterised by continuous interactions and by development of a common language, not necessarily new in itself but used to link discipline-specific topics and to foster reciprocal understanding. Importantly, this leads to a blending of disciplinary boundaries. Finally, transdisciplinarity is a form of transcendence and transformation of traditional disciplines which creates a research area that cannot be seen and recognised through usual approaches. Transdisciplinarity fosters the hybridisation of theories and methods, promoting their full conceptual integration, and the emergence a new and revolutionary insight not seen through disciplinary knowledge.

### **5. Open hardware in radiaton protection**

Open hardwer enable society to innovate. It consists of hardware whose blueprints are made publicly availale so that anyone can study, modify, describe, make, extend and sell hardware bsd on that design. Open source hardware gives people the freedom to control their technology while sharing knowledge and encouraging commerce through the open exchange of design. The work by organizations like Raspberry Pi and Arduino illustrate the potential of open hardware (Figure 1). Figure 2 shows segment of modular platform following LEGO phyloshopy (reusing and building in small steps) and shared knowledge.



**Figure 1: Left: Raspberry Pi to Arduino shields connection bridge; Right: 3G + GPS Shield for Raspberry Pi – platform adaptable to radiation shield with GM counter**



**Figure 1. Interplay of robotics and dosimetry (innovated at course of Basic measurement in physics at University of Montenegro).**

## 6. Conclusions

This paper gives an insight into a new movement in society, „digital social innovation“. Its implication on radiation protection was emphasized. A new applications and devices are emerging giving more power and responsibility to citizens to control environment. It also bring more control to citizen over authorized agencies for radiation protection. Testing safety of open source devices and accountability of data received from these devices is also required. To keep high standards in radiation protection a new policy for integraing digital social innoations into regulatory framework – open participatory policy, is required.

## References

- [1] Growing digital social innovation ecosystem for Europe DSI final, retrieved from <http://www.nesta.org.uk/sites/default/files/dsireport.pdf>, Contract no. 30-CE-0531673/00-86
- [2] M. Arniani, A. Badli, A. De Liddo, S. Georgi, A. Passani, L.S.G. Picollo and M. Teli, Collective Awareness Platform for Sustainability and Social Innovation
- [3] Keith Smith, Environmental hazards: Assessing risk and reducing disasters, Routledge, 2013, ISBN: 9780-415-68106-3
- [4] Anthony Carrigan, Fukushima, published in Innovation: Managing risk, not avoiding it: Evidences and Case Studies, UK Annual Report of the Government Chief Scientific Adviser 2014
- [5] H. Caldicott, Nuclear Power is not answer, The New Press, New Yourk, 2006
- [6] Richard Bramhall, Chriss Busby, and Paul Dorfman, CERRIE Minority Report 2004, UK Department of Health/Department of Environment Committee Examining Radiation Risks of Internal Emitters, Aberystwyth: Sosiumi Press, 2004

- [7] UN-OCHA, Chernobyl: Needs Great 18 Years after Nuclear Accident, United Nations Office for the Coordination of Human Affairs, press release, New York, April 26, 2004
- [8] F. Sestini, Collective Awareness Platforms: Engines for Sustainability and Ethic: IEEE Technology and Society Magazine, 2012
- [9] European Commission's Reports "Strengthening Social Innovation in Europe. Journey to effective assessment and metrics" [http://ec.europa.eu/enterprise/policies/innovation/files/social-innovation/strengthening-social-innovation\\_en.pdf](http://ec.europa.eu/enterprise/policies/innovation/files/social-innovation/strengthening-social-innovation_en.pdf) "Guide to SocialInnovation"
- [10] Newman, M. E. J. (2006). "Modularity and community structure in networks". Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America 103 (23): 8577–8696
- [11] Wasserman, S., & Faust, K. (1994). Social Network Analysis: Methods and Applications. Cambridge: Cambridge University Press
- [12] D. Watts and S. Strogatz (1998). "Collective dynamics of 'small-world' networks". Nature 393 (6684): 440–442.

## **DIGITALNE DRUŠTVENE INOVACIJE I POLITIKA OTVORENOG UČESTVOVANJA U ZAŠTITI OD ZRAČENJA**

**Gordana LAŠTOVIČKA-MEDIN**

*Faculty of Science and Mathematics, University of Montenegro*

### **SADRŽAJ**

Rad istražuje potencijal i značaj digitalnih društvenih inovacija u oblasti zaštite od zračenja kao i mogućnost i značaj legalizacije otvorenog društvenog participiranja.



# **РАДИОЕКОЛОГИЈА И ИЗЛАГАЊЕ СТАНОВНИШТВА**

# МОНИТОРИНГ РАДИОАКТИВНОСТИ И ПРОЦЕНА ДОЗЕ У ОКОЛИНИ НУКЛЕАРНЕ ЕЛЕКТРАНЕ ФУКУШИМА ТРИ ГОДИНЕ НАКОН АКЦИДЕНТА

**Гордана ПАНТЕЛИЋ<sup>1</sup>, Маја ЕРЕМИЋ САВКОВИЋ<sup>2</sup>, Аза ХАМОУ<sup>3</sup>,  
Абделкадер ЈАИХЕ<sup>4</sup>, Ђамел ТАИЕБ ЕРАХМАНИ<sup>4</sup>, Јелица КАЉЕВИЋ<sup>1</sup>,  
Јелена КРНЕТА НИКОЛИЋ<sup>1</sup>, Милица РАЈАЧИЋ<sup>1</sup>, Драгана ТОДОРОВИЋ<sup>1</sup>,  
Марија ЈАНКОВИЋ<sup>1</sup> и Наташа САРАП<sup>1</sup>**

1) Универзитет у Београду, Институт за нуклеарне науке „Винча“,  
Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине, Београд,  
Србија, [pantelic@vinca.rs](mailto:pantelic@vinca.rs)

2) Агенција за заштиту од зрачења и нуклеарну сигурност Србије, Београд,  
Србија

3) Дечја болница, Тунис

4) Центар за нуклеарна истраживања Алжира, Комисија за атомску енергију,  
Алжир

## САДРЖАЈ

Међународна агенција за атомску енергију (МААЕ) је организовала у априлу 2014 мерења радиоактивности у евакуисаној области у околини нуклеарне електране Фукушима. Мерења личног еквивалента дозе су вршена са TLD-100 и личним електронским дозиметрима Thermo EPD Mk2, а за мерење јачине амбијенталног еквивалента дозе дозиметрима Radeye Prd-Er, AT6101C Backpack систем и Teletector 6112M/H. In situ мерење је вршено спектрометром Falcon 5000, а провера контаминације руку и обуће вршена је са алфа бета монитором контаминације RadEye AB100. Јачина амбијенталног еквивалента дозе мерена 1 m изнад тла у Окуми и Отозави кретала се од 3.4  $\mu\text{Sv/h}$  до 10.9  $\mu\text{Sv/h}$  и од 4.7  $\mu\text{Sv/h}$  до 34.2  $\mu\text{Sv/h}$ , респективно. Гамаспектрометријско испитивање вршено је у Окуми, где су у земљишту детектоване веома високе активности  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Резултати читавања термолуминисцентних дозиметара у Винчи и у МААЕ се међусобно слажу. Становници Окуме и Отозаве се неће скоро вратити својим кућама, јер је би њихова годишња доза била много већа од 20 mSv.

## 1. Увод

Нуклеарна електрана Фукушима Даичи, код града Окума, Јапан, обухвата шест нуклеарних реактора типа BWR у власништву ТЕПКО компаније [1]. Као последица катастрофалног земљотреса у Јапану 11. марта 2011. године настало је отказивање уређаја у нуклеарној електрани које је довело до нуклеарне несреће. Радници у нуклеарној електрани су одмах евакуисани, као и становништво у кругу 2 km око електране, што је проширено на 3 km у току дана. Сутрадан је евакуисано становништво у кругу 10 km, проширено на 20 km касније тог дана. У зони 20-30 km је саветовано да сви остану затворени у својим становима. Јапанска власт је у почетку одлучила да се становништво може вратити у своје станове кад годишња доза буде испод 20 mSv [2].

Иако су многи стручњаци у Јапану одмах вршили мерења и процену дозе [3, 4], јапанска влада је 15. марта 2011. године тражила помоћ од Међународне агенција за атомску енергију (МААЕ) везано за мониторинг радиоактивности у животној средини и ефекте изазване зрачењем [2, 5-7].

МААЕ је организовала мерење радиоактивности у околини нуклеарне електране Фукушима Даичи више пута. У мерењима су учествовали стручњаци из целог света. У 2014. години ова мерења су обављена у априлу, а учесници су били подељени у 4 групе. У овом раду ће бити приказани резултати мерења 4. групе (два учесника из Алжира, један из Туниса и двоје из Србије), као и мерења обављених у Лабораторји за заштиту од зрачења и заштиту животне средине у Институту за нуклеарне науке „Винча“.

## 2. Материјал и методе

Учесници су добили заштитну опрему (одело Tyvek SoftWear, рукавице, маске, заштиту за обућу), дозиметре Radeye Prd-Er, ТЛД (LiF: Mg, Ti, комерцијално познат као TLD-100) и личне електронске дозиметре (Thermo EPD Mk2). Сваки тим је користио и AT6101C Backpack систем и Teletector 6112M/H за мерење јачине амбијенталног еквивалента дозе. In situ мерење је вршено спектрометром Falcon 5000. Мерења су вршена 8. и 10. априла 2014. године. На контаминираним подручју било је дозвољено задржавање само 6 сати дневно. Провера контаминације руку и обуће вршена је са алфа бета монитором контаминације RadEye AB100.

**Дозиметар Radeye Prd-Er** има NaI(Tl) детектор са високо квалитетним микро фотомултипликатором. Мерни опсег дозиметра је од  $0.01 \mu\text{Sv/h}$  до  $100 \text{ mSv/h}$ , а енергетски опсег од  $30 \text{ keV}$  до  $1.3 \text{ MeV}$ .

**Електронски дозиметри Thermo EPD Mk2** имају мерни опсег за дозу од  $0 \mu\text{Sv}$  до  $16 \text{ Sv}$ , односно од  $0 \mu\text{Sv/h}$  до  $> 4 \text{ Sv/h}$  за јачину дозе. Мерна несигурност за мерење  $H_p(10)$  је  $\pm 10\%$ .

**AT6101C Backpack систем** има NaI(Tl) спектрометар,  $1'' \times 1''$ , енергетски опсег  $0.02\text{-}3 \text{ MeV}$ ; мерни опсег за јачину дозе  $0.01\text{-}100 \mu\text{Sv/h}$ . Маса целог уређаја је  $7 \text{ kg}$ , а батерија траје  $12 \text{ h}$ .

**Teletector 6112M** има опсег мерења од  $0.01 \mu\text{Sv/h}$  до  $10 \text{ Sv/h}$ .

**Falcon 5000** је високорезолуциони германијумски детектор са широким енергетским опсегом (BEGe) који има електрично хлађење. Пречник кристала је  $60 \text{ mm}$ , а дужина кристала  $30 \text{ mm}$ . Релативна ефикасност детектора је  $18\%$  на  $1332.5 \text{ keV}$ .

**RadEye AB100** алфа бета монитор контаминације има 2 фосфор сцинтилатора, ефикасности  $36\%$  за алфа и  $23\%$  за бета зрачење.

Учесници из Србије су са собом на терен носили један термолуминисцентни дозиметар за тело TLD-100 и један термолуминисцентни дозиметар за околину од LiF: Mg, Cu, P комерцијално познат као TLD-MCP. По један дозиметар TLD-100 и TLD-700H је остао у хотелској соби у граду Фукушима.

За читавање дозиметара се користи TLD читач Harshaw 6600PLUS са програмом WinREMS (Windows based Radiation Evaluation and Management System) који контролише мерење TLD картица и израчунава дозу коју је примио сваки дозиметар на картици. Картице које користмо у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине имају по 2 дозиметра који се излажу и читавају истовремено.

У току мерења у Окуми 10.04.2014. године поцепала се заштитна навлака на обући. Навлака је промењена и испитивање је настављено. Након завршеног мерења узет је брис са чизама и у њему је извршено гамаспектрометријско испитивање у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине у Институту за нуклеарне науке „Винча“. Мерење је вршено на чистом германи-

јумском детектору (Canberra) релативне ефикасности 50% и енергетске резолуције 1.9 keV. Енергетска калибрација и калибрација на ефикасност обавља се помоћу одговарајућег радиоактивног стандарда исте геометрије мерења или применом GEANT4 симулације [8].

### 3. Резултати и дискусија

Јачина амбијенталног еквивалента дозе у зони око нуклеарне електране Фукушима је мерена са АТ6101С Backpack system (08.04.2014.). Са резултатима мерења истовремено су очитавани географска ширина и дужина, а посебним програмом ови подаци су убачени на мапу (слика 1).



**Слика 1. Јачина амбијенталног еквивалента дозе у зони око нуклеарне електране Фукушима, мерено са АТ6101С Backpack system (08.04.2014.)**

Јачина амбијенталног еквивалента дозе је такође мерена и у Окуми, чији су становници евакуисани 13. марта 2011. године. Мерење је вршено 1 m изнад тла дозиметрима Radeye Prd-Er 08.04.2014. године (табела 1). Измерене вредности су се кретале од 3.4  $\mu\text{Sv/h}$  до 10.9  $\mu\text{Sv/h}$ . Средња вредност измерених доза је  $(6.6 \pm 2.0)$   $\mu\text{Sv/h}$ . Јачина амбијенталног еквивалента дозе мерена на стационарној мерној станици повезаној на соларни колектор у Окуми је 4.483  $\mu\text{Sv/h}$  (слика 2.а), док је у граду Фукушима мерено 0.299  $\mu\text{Sv/h}$  (слика 2.б). Становници Окуме се неће скоро вратити својим кућама, јер се на основу измерених вредности за јачину дозе добијају вредности годишње дозе од 39 mSv (на основу стационарног мерења) до 59 mSv (на основу наших мерења са ширег подручја града).

У табели 2 приказани су резултати мерења јачине амбијенталног еквивалента дозе 10.04.2014. године на некадашњој рибљој пијаци у Отозави удаљеној 1.5 km од НЕ Фукушима. Јачина дозе је мерена са Radeye Prd-Er, 1 m изнад тла поред када и у кадама у којима се чувала риба при продаји. Измерене вредности су се кретале од 4.7  $\mu\text{Sv/h}$  до 34.2  $\mu\text{Sv/h}$ . На истим мерним местима истовремено је вршено мерење јачине дозе и са Teletector 6112M/H, 5 cm од тла. Ови резултати, такође приказани у табели 2, су вишеструко већи, од 18.7  $\mu\text{Sv/h}$  до 170  $\mu\text{Sv/h}$ , јер су мерења вршена на малој висини од тла. Често је то било у близини неких места где се задржавао муљ и вода, па је тамо због тога контаминација била већа.

Гамаспектрометријско испитивање *in situ* вршено је у четири мерне тачке у Окуми на пољани између зграда, где је измерена јачина амбијенталног еквивалента дозе од 4.3  $\mu\text{Sv/h}$  до 9.1  $\mu\text{Sv/h}$  (табела 1). Средња вредност јачине амбијенталног еквивалента дозе за време гамаспектрометријских мерења се кретала од 4.0  $\mu\text{Sv/h}$  до 7.4  $\mu\text{Sv/h}$ . Време мерења је било свега 300 s. У земљишту су детектоване веома

високе активности  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Резултати мерења приказани су у табели 3. На слици 3 је приказан један од мерених спектра (мерна тачка 1).

**Табела 1. Јачина амбијенталног еквивалента дозе у Окуми, мерено са Radeye Prd-Er 1 m изнад тла (8.04.2014. године)**

Географска ширина	Географска дужина	Амбијентални еквивалент дозе ( $\mu\text{Sv/h}$ )	Мерно место
37,40549	140,97980	6.2	на пољани између зграда
37,40535	140,98018	4.3	
37,40559	140,98027	7.3	
37,40554	140,98004	6.6	
37,40588	140,97993	7.0	
37,40619	140,98012	9.1	
37,40622	140,97042	6.4	
37,40611	140,97059	7.3	
37,40585	140,97044	7.4	
37,40630	140,97076	5.6	
37,40670	140,98105	9.0	испред и иза зграде Центра за нуклеарну узбуну
37,40705	140,98096	3.5	
37,40712	140,98042	5.8	на улици
37,40708	140,98010	5.0	
37,40689	140,98987	10.0	
37,40664	140,97955	6.5	код цркве
37,40513	140,97955	9.3	на улици
37,40555	140,97925	5.2	
37,40557	140,97867	6.4	код фабрике
37,40546	140,97870	10.9	на улици
37,40463	140,97806	5.6	
37,40485	140,97729	5.0	
37,40506	140,97710	4.9	код вртића
37,40533	140,97630	3.4	
37,40548	140,97655	4.4	на улици
37,40599	140,97679	7.1	водени колектор (канал)
37,40657	140,97748	5.3	
37,40636	140,97786	9.8	

а)



б)



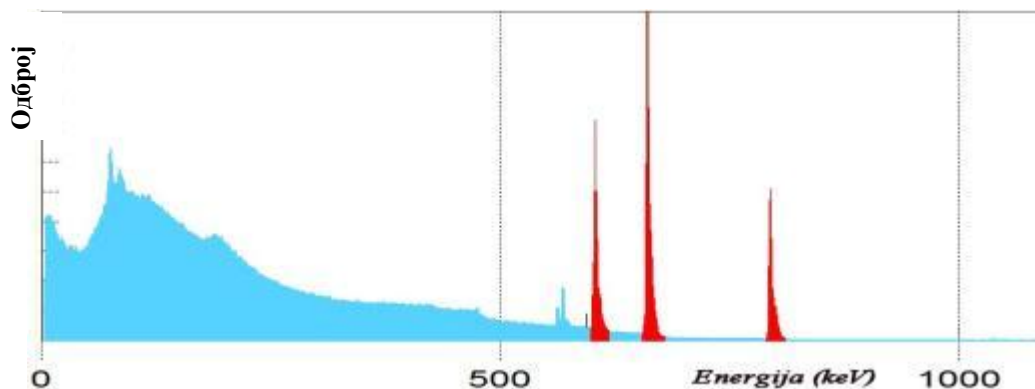
**Слика 2. Јачина амбијенталног еквивалента дозе у Окуми а) и у граду Фукушима б) (08.04.2014. године)**

**Табела 2. Јачина амбијенталног еквивалента дозе на риблијој пијаци у Отозави, мерено са Radeye Prd-Er, 1 m изнад тла, и са Teletector 6112M/H, 5 cm од тла, (10.04.2014. године)**

Географска ширина	Географска дужина	Амбијентални еквивалент дозе (μSv/h)	
		Мерено са Radeye Prd-Er 1 m изнад тла	Мерено са Teletector 5 cm од тла
37,40936	141,03236	11.6	18.7
37,40945	141,03233	17.5	55.5
37,40945	141,03238	28.0	61.8
37,40945	141,03264	31.6	112.0
37,40944	141,03282	19.5	28.2
37,40924	141,03281	20.1	33.5
37,40924	141,03249	23.5	76.6
37,40940	141,03565	7.5	59.8
37,40945	141,03241	23.7	130.0
37,40925	141,03246	21.4	111.0
37,40937	141,03261	4.7	22.0
37,40925	141,03267	19.7	67.0
37,40924	141,03276	16.6	90.0
37,40925	141,03281	15.0	170.0
37,40946	141,03275	34.2	95.6
37,40947	141,03268	17.6	41.8
37,40947	141,03253	15.6	66.9
37,40945	141,03249	18.3	91.6
37,40946	141,03244	14.2	71.6
37,40947	141,03236	30.7	61.0
37,40946	141,03233	15.2	55.1
37,40968	141,03236	15.9	63.1
37,40961	141,03239	17.0	45.2
37,40966	141,03244	24.7	46.7
37,40967	141,03255	24.2	47.9
37,40968	141,03271	19.2	55.5
37,40956	141,03275	12.5	50.7

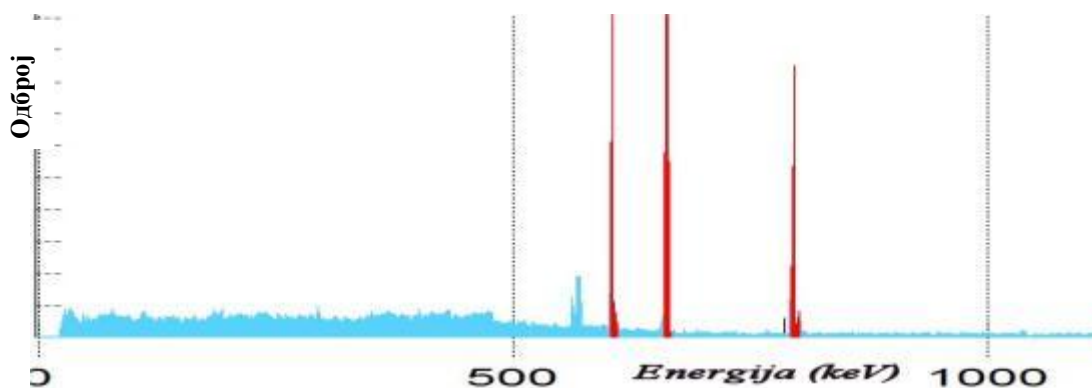
**Табела 3. Резултати *In situ* мерења активности  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту у Окуми (10.04.2014.)**

Мерна тачка	Географска ширина	Географска дужина	Јачина амбијенталне дозе(μSv/h)	$^{134}\text{Cs}$ ( $10^5$ Bq/m <sup>2</sup> )	$^{137}\text{Cs}$ ( $10^6$ Bq/m <sup>2</sup> )
1	37,24366	140,58819	7.4	8.7 ± 0.5	2.6 ± 0.3
2	37,24331	140,58798	5.5	7.8 ± 0.4	2.3 ± 0.3
3	37,24349	140,58813	5.6	7.9 ± 0.4	2.3 ± 0.3
4	37,24365	140,58743	4.0	6.1 ± 0.2	2.1 ± 0.3



**Слика 3. Спектар добијен *in situ* мерењем у земљишту у Окуми спектрометром Falcon 5000 (време мерења 300 s)**

Након одласка са контаминираног терена вршена је провера контаминације руку и обуће помоћу алфа бета монитора контаминације RadEye AB100. Иако овај инструмент није показао контаминацију обуће, узет је брис са чизама којима се поцепала заштитна навлака за време боравка на контаминираном терену. Овај брис је измерен у лабораторији у Винчи и у спектру је утврђено присуство  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  (слика 4). Време мерења је било 60000 s.



**Слика 4. Спектар бриса са чизама којима се поцепала заштитна навлака (време мерења 60000 s)**

Резултати читавања термолуминисцентних дозиметара дати су у табели 4. Дозиметри 2 и 4 су стално били у хотелу у граду Фукушими, а дозиметри 1 и 3 су ношени на контаминирани терен (у Окуму и Отозаву). Резултати мерења показују приближно исте вредности добијене дозиметрима за околину и личним дозиметрима: 86  $\mu\text{Sv}$  и 79  $\mu\text{Sv}$  за дозиметре који су само били у хотелској соби, а 144  $\mu\text{Sv}$  и 150  $\mu\text{Sv}$  код дозиметара који су ношени на контаминирани терен. У табели 4 су дате и израчунате вредности за дозу коју су дозиметри акумулирали у граду Фукушима (у табели колона: град), а на основу јачине амбијенталног еквивалента дозе измереног на стационарној мерној станици повезаној на соларни колектор (слика 2. б). Измерена вредност дозе електронским дозиметром Thermo EPD Mk2 на терену је 54  $\mu\text{Sv}$  (у табели колона: терен). У последњој колони табеле 4 дата је израчуната вредност дозе добијене у авиону, од 39  $\mu\text{Sv}$  до 59  $\mu\text{Sv}$ . Из разлике показивања дозиметара 1 и 2, односно 3 и 4, може се закључити да су

учесници из Србије на терену добили дозу 58  $\mu\text{Sv}$ , односно 71  $\mu\text{Sv}$ , што се слаже са вредношћу 60  $\mu\text{Sv}$  коју је очитала Лабораторија за дозиметрију МААЕ на дозиметру TLD-100 који је поделила учесницима.

**Табела 4. Резултати очитавања термолуминисцентних дозиметара**

ТЛД	Број	Измерено ( $\mu\text{Sv}$ )	Град ( $\mu\text{Sv}$ )	Терен ( $\mu\text{Sv}$ )	Авион ( $\mu\text{Sv}$ )
ТЛД за околину LiF:Mg, Cu, P(TLD-MCP)	1	144	37	54	53
	2	86	40	0	46
ТЛД лични LiF:Mg,Ti (TLD-100)	3	150	37	54	59
	4	79	40	0	39

#### 4. Закључак

Мерења јачине амбијенталног еквивалента дозе 1 m изнад тла различитим интрузивима у околини нуклеарне електране Фукушима Даичи показују вредности дозе од 3.4  $\mu\text{Sv/h}$  до 34.2  $\mu\text{Sv/h}$ . На основу гамаспектрометријског испитивања земљишта *in situ*, које је вршено у Окуми, очигледно је да ова доза највише потиче од веома високих активности  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$ , просечно  $(7.6 \pm 1.1) \cdot 10^5 \text{ Bq/m}^2$  и  $(2.3 \pm 0.3) \cdot 10^6 \text{ Bq/m}^2$ , респективно.

Резултати очитавања TLD-100, који су ношени на контаминираним терену, у Винчи и у МААЕ и измерена вредност дозе електронским дозиметром Thermo EPD Mk2 на терену се међусобно слажу. Становници Окуме и Отозаве се неће скоро вратити својим кућама, јер је би њихова годишња доза била много већа од 20 mSv.

#### Захвалница

Овај рад је подржан од стране Министарства за просвету, науку и технолошки развој Републике Србије, под пројектом број III43009.

#### Литература

- [1] [https://sh.wikipedia.org/wiki/Nesreća\\_u\\_nuklearnoj\\_elektrani\\_Fukushima\\_1](https://sh.wikipedia.org/wiki/Nesreća_u_nuklearnoj_elektrani_Fukushima_1)
- [2] R.Wakeford. Editorial: And now Fukusihima, *J.Radiol. Prot.* 31 (2011) 167-176.
- [3] M.Chino, H.Nakayama, H.Nagai, H.Terada, G.Katata and H.Yamazawa. Preliminary Estimation of Release Amounts of 131I and 137Cs Accidentally Discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the Atmosphere, *J. Nucl. Sci. Tech.* 48 (7) (2011) 1129–1134.
- [4] N. Momoshima, S. Sugihara, R. Ichikawa, H. Yokoyama. Atmospheric radionuclides transported to Fukuoka, Japan remote from the Fukushima Dai-ichi nuclear power complex following the nuclear accident, *J. Environ. Radioact.* 111 (2011) 28–32.
- [5] Final report of the international mission to support the remediation of large contaminated areas off-site of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (NPP). Document NE/NEFW/2011. Vienna, International Atomic Energy Agency, 2011 ([http://www.iaea.org/newscenter/focus/fukushima/final\\_report151111.pdf](http://www.iaea.org/newscenter/focus/fukushima/final_report151111.pdf))
- [6] P.P. Povinec, K.Hirose and M.Aoyama. Fukushima Accident. Radioactivity Impact on the Environment, 2013. Elsevier.



- [7] Health risk assessment from the nuclear accident after the 2011 Great East Japan Earthquake and Tsunami, based on a preliminary dose estimation, 2013. WHO.
- [8] J.Nikolić, M.Rajačić, D.Todorović, M.Janković, N.Sarap, G.Pantelić. Calibration of HP ge detectors for environmental samples using GEANT4 simulation, *Third International Conference on Radiation and Applications in Various Fields of Research*, Book of Abstracts, June 8-12, 2015, Budva, Montenegro. (2015) 584.

## **RADIATION MONITORING AND DOSE ESTIMATION AROUND THE FUKUSHIMA NPP THREE YEAR AFTER THE ACCIDENT**

**Gordana PANTELIĆ<sup>1</sup>, Maja EREMIĆ SAVKOVIĆ<sup>2</sup>, Azza HAMMOU<sup>3</sup>, Abdelkader YAICHE<sup>4</sup>, Djamel TAIEB ERRAHMANI<sup>4</sup>, Jelica KALJEVIĆ<sup>1</sup>, Jelena KRNETA NIKOLIĆ<sup>1</sup>, Milica RAJAČIĆ<sup>1</sup>, Dragana TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Marija JANKOVIĆ<sup>1</sup> and Nataša SARAP<sup>1</sup>**

*1) University of Belgrade, Vinča Institute for Nuclear Sciences, Radiation and Environmental Protection Department, Belgrade, Serbia, [pantelic@vinca.rs](mailto:pantelic@vinca.rs)*

*2) Serbian Radiation Protection and Nuclear Safety Agency, Serbia*

*3) Children's Hospital, Tunisia*

*4) Nuclear Research Centre of Algeria, Atomic Energy Commission, Algeria*

International Atomic Energy Agency organized a field exercises in April 2014 in areas of Fukushima Prefecture. These areas were evacuated after the 2011 accident at TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. The measurement of the personal equivalent dose was done by TLD-100 and electronic personal dosimeter Thermo EPD Mk2 and the measurement of the ambient equivalent dose rate by Radeye Prd-Er, AT6101C Backpack system and Teletector 6112M/H. In situ gamma spectrometry measurement was performed with BEGe, broad energy HPGe detector Falcon 5000. RadEye AB100 Alpha-Beta Contamination Monitors were used for checking hands and shoes contamination. The ambient equivalent dose rate measured 1 m above the ground in Okuma and Ottozawa ranged from 3.4  $\mu\text{Sv/h}$  to 10.9  $\mu\text{Sv/h}$  and from 4.7  $\mu\text{Sv/h}$  to 34.2  $\mu\text{Sv/h}$ , respectively. Very high  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  activity concentration was detected in the soil in Okuma. The results of TLD-100 measured in Vinca and in IAEA Laboratory were mutually consistent. Since the annual dose exceeded 20 mSv in Okuma and Ottozawa, the residents of those cities will remain evacuated for the time being.

## ANALIZA DINAMIKE SPECIFIČNE AKTIVNOSTI BERILIJUMA-7 U POVRŠINSKOM SLOJU ATMOSFERE

**Darko SARVAN<sup>1</sup>, Đorđe STRATIMIROVIĆ<sup>2,3</sup>, Suzana BLESIĆ<sup>3,4</sup> i Jelena AJTIĆ<sup>1,3</sup>**

- 1) *Univerzitet u Beogradu, Fakultet veterinarske medicine, Beograd, Srbija,*  
[darko.sarvan@vet.bg.ac.rs](mailto:darko.sarvan@vet.bg.ac.rs), [jelena.ajtic@vet.bg.ac.rs](mailto:jelena.ajtic@vet.bg.ac.rs)
- 2) *Univerzitet u Beogradu, Stomatološki fakultet, Beograd, Srbija,*  
[dj.stratimirovic@gmail.com](mailto:dj.stratimirovic@gmail.com)
- 3) *Institut za istraživanje i razvoj složenih sistema, Beograd, Srbija*
- 4) *Univerzitet u Beogradu, Institut za medicinska istraživanja, Beograd, Srbija,*  
[suzana@imi.bg.ac.rs](mailto:suzana@imi.bg.ac.rs)

### SADRŽAJ

*Dinamika specifične aktivnosti berilijuma-7 u površinskom sloju atmosfere analizirana je pomoću talasastih preslikavanja i vremenski zavisnim Hurstovim eksponentom. Specifična aktivnost berilijuma-7 merena je u Helsinkiju, Finska, od 1987. do 2011. godine, i baza podataka sadrži preko 4000 merenja. Izabrane metode analize daju informacije o periodičnosti, ili kvazi-periodičnosti, kao i o dugodometnoj korelisanosti unutar vremenske serijespecifične aktivnosti berilijuma-7. Kako vremenska rezolucija merenja nije fiksirana, od celokupnog skupa merenja napravljena su dva niza: jedan sa nedeljnim, a drugi sa dnevnim podacima. Poređenja radi, analiza dinamike urađena je na oba niza. Talasasta preslikavanja pokazuju postojanje karakterističnih vremenau oba analizirana niza: 30 dana – što odgovara mesečnom periodu, 80 dana – tromesečni period, 360 dana – godišnji period, i 1100 dana – trogodišnji period. Analiza vremenski zavisnim Hurstovim eksponentom dodatno pokazuje najjaču pozitivnu korelisanost na trogodišnjem periodu, potom na godišnjem, a zatim i na tromesečnom. Opadanje Hurstovog eskponenta sa smanjenjem karakterističnog perioda ukazuje na to da su duži periodi posledica globalnih uticaja, i stoga nisu lako podložni promenama. Pronađen je i pad u stepenu pozitivne korelisanosti za trogodišnji period tokom 1993–2003. godine.*

### 1.Uvod

Vremenske serijevišegodišnjih merenja pojedinih sastojaka atmosfere, pored podataka o periodima i trendovima tog sastojka, mogu dati i informacije o promenama nekih drugih atmosferskih jedinjenja ili procesa. Tako koncentracija prirodnog radionuklida berilijuma-7 (period poluraspada 53,28 dana), koji se većim delom stvara u stratosferi[1], može ukazati na količinu kosmičkog zračenja koja stiže do Zemljine atmosfere[2]. Berilijum-7 može poslužiti kao obeleživač stratosferskih vazdušnih masa[3], te merenje njegove specifične aktivnosti može indirektno dati informacije o, na primer, ozonu koji se takođe stvara u stratosferi, ili o izmeni vazdušnih masa između stratosfere i troposfere [4,5]. Takođe, kako je vlažna depozicija glavni mehanizam ukljanjanja Be<sup>7</sup> iz atmosfere [2], njegova specifična aktivnost u vazduhu može ukazati na učestalost padavina[6].

U ovom radu analizirana je dinamika specifične aktivnosti Be<sup>7</sup> merene u prizemnom sloju atmosfere u Helsinkiju, Finska, tokom 25 godina. Ovaj niz podataka, sa više od

4000 izmerenih vrednosti, pruža mogućnost ispitivanja kratkih i dužih perioda, kao i dugodometnih korelacija u ponašanju specifične aktivnosti  $Be^7$ .

## 2. Materijal i metode

U radu smokoristili specifične aktivnosti  $Be^7$  merene u Helsinkiju, Finska, u periodu od 05.01.1987. do 30.12.2011. godine. Ovi podaci deo su baze podataka Monitoring radioaktivnosti u životnoj sredini (na engleskom – Radioactivity Environmental Monitoring Database) koju održava grupa za Monitoring radioaktivnosti u životnoj sredini Instituta za transuranijske elemente Objedinjenog istraživačkog centra u Ispri, Italija (<https://ec.europa.eu/jrc/en/institutes/itu>). Bazu čine višegodišnja merenja specifične aktivnosti  $Be^7$  u prizemnom sloju vazduha koja se sprovode na 34 lokacije širom Evrope [7]. Iz ove baze izabrana je lokacija Helsinki jer ima najveći broj (4297) merenja specifične aktivnosti  $Be^7$ .

Specifična aktivnost  $Be^7$  merena je sa promenljivom vremenskom rezolucijom – do 1999. godine merenja su u uglavnom nedeljna, a potom dvodnevna ili dnevna. Da bismo koristili metode dinamičke analize i odredili karakteristične vremenske intervale, prvo smo izvršili linearnu interpolaciju cele serije dostupnih podataka na nedeljne vrednosti, a zatim i linearnu interpolaciju podataka tokom 1999–2011. godina na dnevne vrednosti. Radi poređenja rezultata, na tako dobijenim vremenskim serijama – jednoj koja sadrži dnevne, i drugoj koja sadrži nedeljne podatke o specifičnoj aktivnosti  $Be^7$ , primenjene su potom dve metode statističke analize: talasasta preslikavanja i analiza vremenski zavisnim Hurstovim eksponentom.

### 2.1 Talasasta preslikavanja vremenskih serija

U ovom radu koristili smo talasasta preslikavanja (WT, od engleskog naziva Wavelet Transformations) kako bismo analizirali dugodometnu dinamiku vremenskih serija specifične aktivnosti  $Be^7$  [8] i postojanje periodičnog ili kvazi-periodičnog ponašanja unutar ovih vremenskih serija [9, 10].

Talasasta preslikavanja predstavljaju uobičajenu tehniku analize vremenskih serija iz složenih sistema koje imaju osobinu nestacionarnog ponašanja na različitim vremenskim skalama [11]. Preslikavanje (transformacija) bilo koje vremenske serije  $s(t)$  u prostoru talasastih funkcija (vejvleta)  $\Psi_{a,b}(t)$  daje seriju vejvlet koeficijenata (amplituda) te funkcije koji su definisani na sledeći način:

$$W(a,b) = \int \psi_{a,b}(t)s(t)dt, \quad (1)$$

gde  $a$  predstavlja parametar skale, a  $b$  vremenski parametar datog koeficijenta.

Izračunavanje vejvlet koeficijenata funkcije omogućava definisanje vejvlet spektra snage (analogno definiciji klasičnog Furije spektra snage signala) kao integrala po vejvlet amplitudama duž vremenskog parametra  $b$ :

$$E_w(a) = \int W(a,b)db. \quad (2)$$

Za razliku od klasičnog Furije spektra snage, vejvlet spektri su glatki za nestacionarne serije [8, 12], te se mogu koristiti za analizu postojanja karakterističnih vremena ili intervala unutar vremenskih serija. Interpretacija rezultata koje daje WT analiza ista je, zbog analogije u definisanju funkcija preslikavanja, kao i u klasičnom Furije pristupu.

U ovom radu koristili smo set Morlet vejvleta za analizu vremenskih serija specifične aktivnosti  $Be^7$  u prizemnom sloju atmosfere. Vremenska skala  $a$  preračunata je tako da odgovara vrednostima realnog vremena  $t$ . Izračunati vejvlet spektri na taj način

predstavljaju varijacije analiziranog signala, prikazane u zavisnosti od vremena  $t$ . Vrednosti spektra snage signala rastu unutar intervala koji obuhvata karakteristična vremena periodičnog ili kvazi-periodičnog ponašanja signala – kako bismo detektovali postojanje ovih karakterističnih vremena vršili smo standardnu analizu pikova duž dobijenih WT spektara snage. Ova analiza pretražuje maksimume i prevojne tačke (za skrivene pikove) unutar spektra snage signala.

Vejvlet spektri snage izračunati su unutar vremenskih intervala od 1–2000 tačaka koji odgovaraju vremenskom rasponu od jednog dana do pet godina. Ovaj raspon vremenskih skala uzet je u obzir za računanje WT spektara kako bi se dobili statistički relevantni rezultati (imajući u vidu dužinu analiziranih vremenskih serija) [13].

## 2.2 Analiza vremenski zavisnim Hurstovim eksponentom

U ovom radu takođe smo koristili cDMA algoritam (cDMA, od engleskog naziva centered Detrended Moving Average) u kome se samosličnost i dugodometna korelacija procenjuju putem generalizovane varijanse oko pokretne srednje vrednosti. Generalizovana varijansa oko pokretne srednje vrednosti često se koristi u analizi raznih kompleksnih sistema, poput finansijskih tržišta [14].

Funkcionisanje cDMA algoritama svodi se na procenjivanje varijanse dugodometne korelisane vremenske serije  $y(i)$  oko pokretne srednje vrednosti  $\tilde{y}_n(i)$ :

$$\tilde{y}_n(i) = \frac{1}{n} \sum_{k=-\frac{n}{2}}^{\frac{n}{2}-1} y(i-k), \quad (3)$$

gde  $n$  predstavlja veličinu pokretnog prozora na kojem se računa srednja vrednost. Vremenska serija  $y(i)$  je detrendovana oduzimajući  $\tilde{y}(i)$ , pa standardnu devijaciju  $y(i)$  oko pokretne srednje vrednosti  $\tilde{y}(i)$  dobijamo računajući:

$$\sigma_{cDMA} = \sqrt{\frac{1}{N_{max}-n} \sum_{i=\frac{n}{2}}^{N_{max}-\frac{n}{2}} [y(i) - \tilde{y}_n(i)]^2}, \quad (4)$$

gde  $\tilde{y}_n(i)$  dobijamo iz jednačine (3) za različite vrednosti veličine pokretnog prozora  $n$  na kojem računamo srednju vrednost. Funkcija  $\sigma_{cDMA}$  je računata za različite vrednosti pokretnog prozora  $n$  na intervalu  $[\frac{n}{2}, N_{max} - \frac{n}{2}]$ , gde  $N_{max}$  predstavlja dužinu cele serije.

Funkcija  $\sigma_{cDMA}$  pokazuje stepenu zavisnost sa eksponentom  $H$  na  $n$  ( $\sigma_{cDMA} \propto n^H$ ), gde je  $H$  Hurstov eksponent koji govori o dugodometnim korelacionim svojstvima serije  $y(i)$ . Kada je  $0,5 < H < 1$  proces je korelisan, tj. ima pozitivnu dugodometnu korelaciju; za  $0 < H < 0,5$  proces je anitkorelisan, odnosno ima dugodometnu negativnu korelaciju; kada je  $H = 0,5$  proces odgovara nekorelisanom Braunovom procesu.

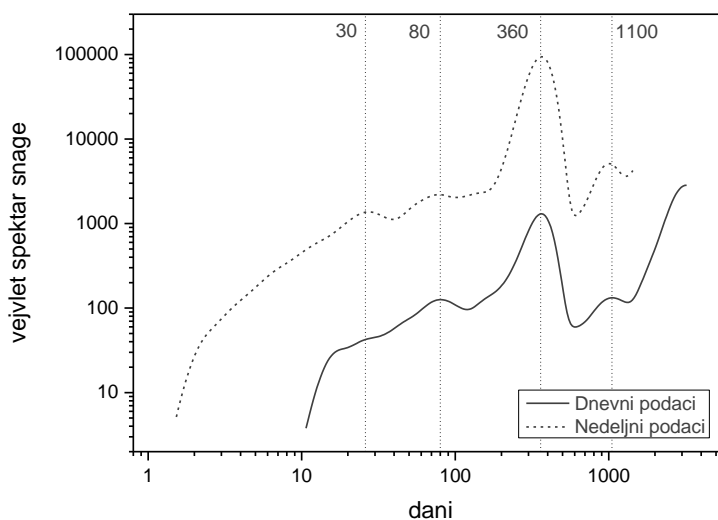
Računanju Hurstovog eksponenta  $H$  pristupili smo tako što smo iscertali vrednosti  $\sigma_{cDMA}$  kao funkciju od  $n$  na log-log ose, i izračunali koeficijent pravca koji predstavlja Hurstov eksponent. Koristili smo vrednosti  $\sigma_{cDMA}$  koje odgovaraju veličini prozora  $n$  od 2 do 1000, i od 2 do 500, za interpolisane vrednosti dnevnih, odnosno nedeljnih intervala specifične aktivnosti  $Be^7$ , sa korakom promene veličine prozora za 2.

Potom smo koristili lokalne Hurstove eksponente dobijene pomoću tdDMA (prefiks td, od engleskog izraza time-dependent) algoritma [15], na karakterističnim intervalima koje smo detektovali cDMA metodom kao i na vejvlet spektru snage (Slika 1), za dobijanje vrednosti Hurstovog eksponenta tih intervala tako što smo računali njihovu srednju vrednost  $\langle H(t) \rangle$ . Kreirali smo prozore veličine  $N_s$  čije smo vrednosti dobili uzimajući minimalnu veličinu prozora za koju važi zakon skaliranja u toj oblasti [16].

Lokalne vrednosti  $H(t)$  dobili smo tako što smo na prozoru veličine  $N_s$  koristili postupak cDMA metode za dobijanje vrednosti Hurstovog eksponenta menjajući veličinu prozora  $n$  tako da odgovara datim karakterističnim intervalima, zatim prozor pomerili duž serije za vrednosti  $\delta_s = 1$  računajući  $H$  na svakom od njih, sve dok nismo došli do kraja vremenske serije  $y(i)$ .

### 3. Rezultati i diskusija

Na Slici 1 prikazan je vejevlet spektar specifične aktivnosti  $Be^7$  merene u Helsinkiju. Obe vremenske serije, sa dnevnim i nedeljnim podacima, pokazuju jasno postojanje karakterističnih perioda u aktivnosti, koji odgovaraju lokalnim maksimumima unutar njihovih spektara snage. Ovi periodi nalaze se na sledećim karakterističnim vremenima (Slika 1): pik u blizini 30 dana koji odgovara mesečnom periodu, pik u blizini 80 dana – tromesečni period, pik u blizini 360 dana – godišnji period, i pik u blizini 1100 dana koji daje trogodišnji period.



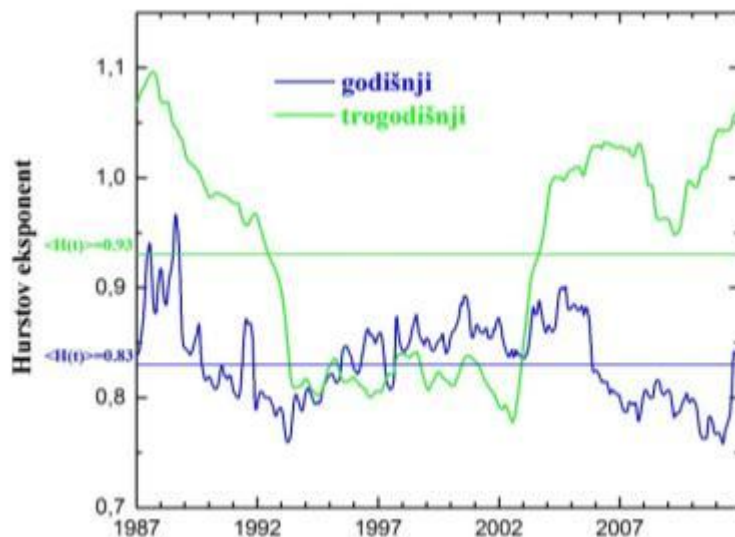
**Slika 1. Vejevlet spektri snage vremenskih serija specifične aktivnosti  $Be^7$ . Karakteristični vremenski intervali od 30, 80, 360 i 1100 dana su naznačeni**

Postojanje sezonskih promena (ili periodičnosti) već je uočeno u ponašanju  $Be^7$  vremenskih serija [9, 17, 18]. Sezonsku periodičnost u vejevlet analizi specifične aktivnosti  $Be^7$  dala je i studija [19], a trogodišnji period takođe je detektovan u radu [20]. Ove periodičnosti pripisane su uticaju transporta velikih vazdušnih masa na hemisferskom nivou.

Na Slici 2 prikazan je grafik lokalnih Hurstovih eksponenata koristeći nedeljne podatke specifične aktivnosti  $Be^7$ , zajedno sa vrednostima Hursta  $\langle H(t) \rangle$  za godišnji i trogodišnji period. Pozitivna korelisanost dobijena za date karakteristične periode najveća je za najduži, trogodišnji, period, te se može zaključiti da je taj period dosta robustan i inertan na promene. Stoga se dalje može pretpostaviti da na njega utiču samo promene globalnog karaktera.

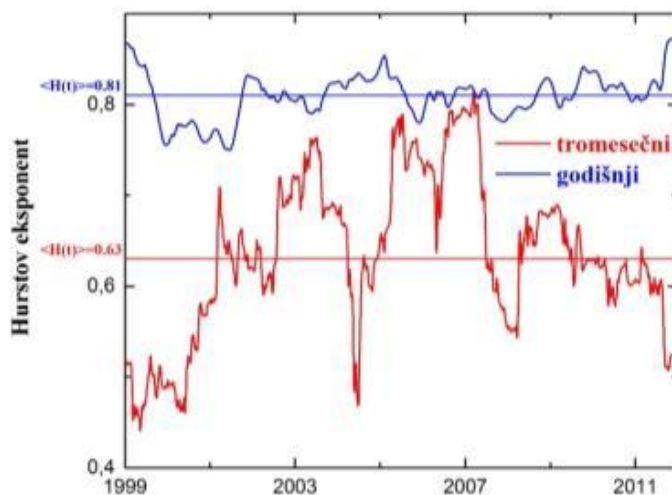
Primetan je pad u stepenu korelisanosti za trogodišnji period tokom 1993–2003. godine, kada je u proseku manji od stepena korelisanosti za godišnji period (Slika 2). Period 1993–2003. godine približno je dužine jednog solarnog ciklusa: obuhvata završetak solarnog ciklusa 22 (1986–1996), i veći deo solarnog ciklusa 23 (1996–2008). Za

razliku od solarnog ciklusa 22, sa visokom Sunčevom aktivnošću, solarni ciklus 23 je bio primetno slabiji [21], tako da pad korelisanosti na trogodišnjem periodu možda oslikava promene u Sunčevoj aktivnosti. Treba napomenuti da ovaj pad korelisanosti na trogodišnjem nivou nije praćen smanjenom specifičnom aktivnošću  $\text{Be}^7$  tokom 1993–2003. godine.



**Slika 2. Lokalni Hurstovi eksponenti kao funkcija vremena za nedeljne podatke specifične aktivnosti  $\text{Be}^7$ . Prikazani su godišnji i trogodišnji karakteristični vremenski intervali sa označenim vrednostima Hursta  $\langle H(t) \rangle$**

Dnevni podaci specifične aktivnosti  $\text{Be}^7$  korišćeni su za dobijanje lokalnih Hurstovih eksponenata (Slika 3). Na Slici 3 takođe su prikazane vrednosti Hursta za tromesečni i godišnji period. Vrednosti Hurstovog eksponenta za godišnji interval računatekoristeći nedeljne i dnevnepodatke, neznatno se razlikuju.



**Slika 3. Lokalni Hurstovi eksponenti kao funkcija vremena za dnevne podatke specifične aktivnosti  $\text{Be}^7$ . Prikazani su tromesečni i godišnji karakteristični vremenski intervali sa označenim vrednostima Hursta  $\langle H(t) \rangle$**

Vrednosti Hursta za sve karakteristične periode pokazuju pozitivno korelisane procese. Hurstovi eksponenti opadaju sa smanjenjem karakterističnih perioda, što ukazuje na to da su duži karakteristični intervali posledica globalnih uticaja koji nisu lako podložni promenama .

#### 4. Zaključak

Analiza spektara snage signala pomoću talasastih preslikavanja omogućila je identifikaciju četiri karakteristična perioda unutar vremenskih serija snimljene specifične aktivnosti  $Be^7$ : mesečnog, tromesečnog, godišnjeg i trogodišnjeg perioda, što je u saglasnosti sa rezultatima ranijih analiza. U ovom radu pokušali smo da tačno odredimo vremena pojave tih ciklusa kako bismo u budućnosti mogli da upoređujemo vremensko ponašanje specifične aktivnosti  $Be^7$  sa drugim atmosferskim parametrima, kao što su meteorološki uslovi snimljeni u istom periodu na istom mestu.

Analiza vremenski zavisnog Hurstovog eksponenta dala je dodatni uvid u kompleksnost dinamike koja karakteriše ponašanje specifične aktivnosti  $Be^7$ . Vrednosti Hurstovog eksponenta za tromesečni, godišnji i trogodišnji period pokazuju pozitivnu korelaciju, koja raste kako se karakterističan period produžava. Lokalno ponašanje dosta je kompleksnije prirode i ne može se lako objasniti. Zanimljivo je da postoji vidljivi pad u stepenu pozitivne korelisanosti za trogodišnji period tokom 1993–2003. godine, što može biti predmet dalje analize.

#### 5. Zahvalnica

*Ovaj rad je realizovan u okviru projekata „Napredne, analitičke, numeričke i metode analize primenjene mehanike fluida i kompleksnih sistema“ (174014), „Fazni prelazi i kritični fenomeni u neorganskim i organskim sredinama“ (171015) i „Istraživanje klimatskih promena na životnu sredinu: praćenje uticaja, adaptacija i ublažavanje“ (43007) koje finansira Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije za period 2011-2015. godine. Autori se zahvaljuju REM grupi koja je obezbedila podatke iz REM baze (REMdb at the Institute of TransUranium Elements, REM group, DJ JRC Ispra site, European Commission).*

#### 6. Literatura

- [1] D. Lal and B. Peters, Cosmic ray produced radioactivity on the earth. *Handb. Phys.* 46 (1967) 551–612.
- [2] M. K. Pham, M. Betti, H. Nies, and P. P. Povinec. Temporal changes of  $^7Be$ ,  $^{137}Cs$  and  $^{210}Pb$  activity concentrations in surface air at Monaco and their correlation with meteorological parameters . *J. Environ. Radioact.* 102 (2011) 1045-1054.
- [3] E. F. Danielsen. Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity. *J. Atmos. Sci.* 25 (1968) 502–518.
- [4] P. Zanis et al. An estimate of the impact of stratosphere-to-troposphere transport (STT) on the lower free tropospheric ozone over the Alps using  $^{10}Be$  and  $^7Be$  measurements. *J. Geophys. Res.* 108 (2003) doi:10.1029/2002JD002604.
- [5] P. Cristofanelli et al., 2006. A 6-year analysis of stratospheric intrusions and their influence on ozone at Mt. Cimone (2165 m above sea level). *J. Geophys. Res.* 111 (2006) doi:10.1029/2005JD006553.
- [6] L. Jiwen, V. N. Starovoitova, and D. P. Wells. Long-term variations in the surface air  $^7Be$  concentration and climatic changes. *J. Environ. Radioact.* 116 (2013) 42-47.

- [7] M. A. Hernández-Ceballos, G. Cinelli, M. Marín Ferrer, T. Tollefsen, L. De Felice, E. Nweke, P. V. Tognoli, S. Vanzo, and M. De Cort. A climatology of  $^7\text{Be}$  in surface air in European Union. *J. Environ. Radioact.* 141 (2015) 62–70.
- [8] C. Torrence and G.P. Compo. A Practical Guide to Wavelet Analysis. *B. Am. Meteorol. Soc.* 79 (1998) 61-78.
- [9] M. Bracic and A. Stefanovska. Wavelet-based Analysis of Human Blood-flow Dynamics. *B. Math. Biol.* 60(1998) 919–935.
- [10] S. Kikuchi, H. Sakurai, S. Gunji, and F. Tokanai. Temporal variation of  $^7\text{Be}$  concentrations in atmosphere for 8y from 2000 at Yamagata, Japan: solar influence on the  $^7\text{Be}$  time series. *J. Environ. Radioact.* 100 (2009) 515-521.
- [11] J. Lewalle, M. Farge, and K. Schneider. "Wavelet transforms", in Handbook of Experimental Fluid Mechanics. Eds. C. Tropea, A. L. Yarin and J. F. Foss. Springer, (2007) 1378-1398.
- [12] Dj. Stratimirović, S. Milošević, S. Blesić, and M. Ljubisavljević. Wavelet analysis of discharge dynamics of fusimotor neurons. *Physica A* 291 (2001) 13-23.
- [13] C.-K. Peng, S.V. Buldyrev, A.L. Goldberger, S. Havlin, M. Simons, and H.E. Stanley. Finite-size effects on long-range correlations: Implications for analyzing DNA sequences. *Phys. Rev. E* 47 (1993) 3730-3733.
- [14] D. Sarvan, D. Stratimirović, S. Blesić, and V. Miljković. Scaling analysis of time series of daily prices from stock markets of transitional economies in the Western Balkans. *Eur. Phys. J. B* 87 (2014) 297-304.
- [15] A. Carbone, G. Castellia, and H.E. Stanley. Time-dependent Hurst exponent in financial time series. *Physica A* 344 (2004) 267-271.
- [16] G. Consolini, R. De Marco, and P. De Michelis. Intermittency and multifractional Brownian character of geomagnetic time series. *Nonlin. Processes Geophys.* 20 (2013) 455-466.
- [17] J. V. Ajtić, D. J. Todorović, J. D. Nikolić, and V. S. Đurđević. A multi-year study of radioactivity in surface air and its relation to climate variables in Belgrade, Serbia. *Nucl. Technol. Radiat.* 28 (2013) 381-388.
- [18] L. Bourcier et al. Comparative trends and seasonal variation of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  at two altitude sites in the central part of France. *J. Environ. Radioact.* 102 (2011) 294-301.
- [19] A.-P. Leppänen and J. Paatero.  $^7\text{Be}$  in Finland during the 1999–2001 Solar maximum and 2007–2009 Solar minimum. *J. Atmos. Sol. Terr. Phys.* 97 (2013) 1-10.
- [20] E. Gerasopoulos, C. S. Zerefos, C. Papastefanou, P. Zanis, and K. O'Brien. Low-frequency variability of beryllium-7 surface concentrations over the Eastern Mediterranean. *Atmos. Environ.* 37 (2003) 1745-1756.
- [21] NASA (National Aeronautics and Space Administration), Marshall Space Flight Center, <http://solarscience.msfc.nasa.gov/predict.shtml> pristupljeno 28.06.2015.



## ANALYSIS OF DYNAMICS OF BERYLLIUM-7 SPECIFIC ACTIVITY IN SURFACE AIR

**Darko SARVAN<sup>1</sup>, Đorđe STRATIMIROVIĆ<sup>2,3</sup>, Suzana BLESIC<sup>3,4</sup> and Jelena AJTIĆ<sup>1,3</sup>**

- 1) *University of Belgrade, Faculty of Veterinary Medicine, Belgrade, Serbia, [darko.sarvan@vet.bg.ac.rs](mailto:darko.sarvan@vet.bg.ac.rs), [jelena.ajtic@vet.bg.ac.rs](mailto:jelena.ajtic@vet.bg.ac.rs)*
- 2) *University of Belgrade, School of Dental Medicine, Belgrade Serbia, [dj.stratimirovic@gmail.com](mailto:dj.stratimirovic@gmail.com)*
- 3) *Institute for Research and Advancement in Complex Systems, Belgrade, Serbia*
- 4) *University of Belgrade, Institute for Medical Research, Belgrade, Serbia, [suzana@imi.bg.ac.rs](mailto:suzana@imi.bg.ac.rs)*

### ABSTRACT

The dynamics of the  $^7\text{Be}$  specific activity in surface air is analysed using wavelet transformations and time-dependant Hurst exponent. The investigated  $^7\text{Be}$  specific activity database contains more than 4000 measurements conducted in Helsinki, Finland, over 1987–2011. The chosen methods of analysis offer information on periodicities and long-range correlations in the  $^7\text{Be}$  specific activity time series. Since the temporal resolution of the measurements varied, two data subseries are interpolated: one containing weekly, the other containing daily data. The analysis of the dynamics is performed on both subseries for comparison. Wavelet transformations show an existence of characteristic times in both subseries. Four periods are found: 30 days corresponding to a monthly cycle, 80 days corresponding to a seasonal cycle, 360 days corresponding to an annual cycle, and 1100 days that correspond to a three-year cycle. Time-dependant Hurst exponent analysis further shows the strongest positive correlation in the three-year period, followed by weaker positive correlations in the annual and seasonal periods. The increase in Hurst exponent with an increase in the duration of the characteristic period indicates that the longer periods are influenced by large-scale mechanisms not prone to changes. A decrease over 1993–2003 in the positive correlation in the three-year period is found.

# KORELACIJA IZMEĐU SPECIFIČNE AKTIVNOSTI $^7\text{Be}$ U AEROSOLIMA I UKUPNOM DEPOZITU I METEOROLOŠKIH INDEKSA NAO, EA, EAWR I SCA

**Milica RAJAČIĆ<sup>1</sup>, Dragana TODORVIĆ<sup>1</sup>, Vladimir ĐURĐEVIĆ<sup>2</sup>, Ivan PETROVIĆ<sup>1,3</sup>, Marija JANKOVIĆ<sup>1</sup>, Jelena NIKOLIĆ<sup>1</sup>, Gordana PANTELIĆ<sup>1</sup> i Nataša SARAP<sup>1</sup>**

- 1) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija, milica100@vinca.rs*
- 2) *Univerzitet u Beogradu, Institut za meteorologiju, Fizički fakultet, Beograd, Srbija*
- 3) *Univerzitet u Beogradu, Fizički fakultet, Beograd, Srbija*

## SADRŽAJ

*Određivanjem koeficijenta korelacije (Pirsonovog i Spirmanovog) ispitano je da li postoji veza između specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  u suvom i vlažnom depozitu, kao i u aerosolnim česticama prizemnog sloja atmosfere sa meteorološkim indeksima oscilacija: NAO, EA, EAWR i SCA. Aktivnosti su određene na HPGe detektorima (Canberra, 20 % i 50% relativne efikasnosti). Zbog vremena poluraspada  $^7\text{Be}$  (53 dana), aktivnosti su korigovane na sredinu meseca tokom kog su uzorci sakupljeni. Značajnost koeficijenta je proverena t-testom i ustanovljeno je da, iako su za pojedine slučajeve oni bliski nuli, ne mogu se zanemariti.*

## 1. Uvod

Kosmogeni radioizotop  $^7\text{Be}$  nastaje pretežno (oko 70%) u stratosferi i višim slojevima troposfere, interakcijom kosmičkog zračenja (protona i neutrona) sa molekulima azota i kiseonika [1,2]. Ubrzo se formiraju molekuli BeO ili Be(OH)<sub>2</sub>, koji se lako vezuju za aerosolne čestice dimenzija 0.3 - 0.6  $\mu\text{m}$  čije je vreme zadržavanja u atmosferi oko 20 dana ( za čestice čiji je dijametar manji od 1.1  $\mu\text{m}$ , vezuje se u procentu od 88%, dok se manje od 1% vezuje za čestice sa dijametrom većim od 7  $\mu\text{m}$ ) [3,4].

Jedan od osnovnih načina transporta  $^7\text{Be}$  iz viših slojeva troposfere do površine Zemlje su padavine. Ovaj proces je tipičan za prolećne i letnje mesece kada je kretanje vazdušnih masa iz stratosfere u troposferu uzrokovano zagrevanjem Zemljine površine. Višegodišnjim praćenjem  $^7\text{Be}$  u aerosolima i ukupnom depozitu uočavaju se jasne sezonske varijacije sa izraženim maksimumima aktivnosti u letnjim i minimumima u zimskim mesecima [5]. Atmosferska kretanja duž longituda su poznata kao zonalne cirkulacije – telekonekcije. To je uticaj udaljenih, a značajnih klimatskih događaja, kao što su Severno-atlantska oscilacija (NAO), Istočno-atlantska oscilacija (EA), Istočno-atlantska/zapadno-ruska oscilacija (EAWR), Skandinavska oscilacija (SCA) i dr., na klimu nekog regiona. Uočavamo da koncentracija  $^7\text{Be}$  u prizemnom sloju atmosfere, kao i u atmosferskim padavinama zavisi kako od suvih, tako i od vlažnih procesa koji se u njoj odvijaju [6]. Ustanovljeno je da su parametri klime u Srbiji i širem regionu visoko korelisani sa indeksima NAO i EA.

NAO je klimatska pojava nad Severnim Atlantikom i predstavlja funkciju vazdušnog pritiska na površini mora između dve stanice smeštene blizu centra Islandskog niskog i centra Azorskog visokog pritiska [7]. Ove fluktuacije direktno utiču na kretanje ciklona

istočnije, pa samim tim i na vremenske prilike u Evropi. Pozitivan NAO indeks označava jaku, a negativan slabu razliku između pomenutih nivoa pritiska.

EA obrazac je sličan NAO, i zasnovan je na razlici u vazдушnom pritisku između centra niskog i visokog vazdušnog pritiska nad Severnim Atlantikom u pravcu istok-zapad i usko povezan sa grebenom subtropskog pojasa visokog pritiska.

Poznavanje koncentracije prirodnih radionuklida u prizemnom sloju atmosfere je od suštinskog značaja, jer doprinosi proučavanju kretanja vazdušnih masa [8]. Posebno za period od novembra do aprila, NAO je odgovoran za većinu varijacija u vremenu u Severno-atlantskom regionu, posebno utičući na promene brzine smera vetra, promene u temperaturi i distribuciji intenziteta vlažnosti, kao i broja i putanja oluja koje se javljaju u ovom regionu. Čestice radionuklida, kao što je  $^7\text{Be}$ , se koriste za praćenje kretanja zagađivača i aerosolnih čestica, određivanje brzine njihovog deponovanja i vremena boravka u troposferi [9-15].

## 1. Metode

Uzorci vlažnog i suvog depozita, kao i aerosolnih čestica se u okviru Istituta „Vinča“ (N: 44°53'33.7'', E: 20°35'58.4'') prikupljaju od početka organizovanja monitoringa Instituta, ali se početkom 1994. godine uvodi spektrometrija gama emitera u zbirnim mesečnim uzorcima. Mokri i suvi depozit, zajedno, sakuplja se u kolektorima površine 0,16m<sup>2</sup> tokom celog meseca. Priprema uzorka obuhvata, uparavanje zbirnog mesečnog uzorka do suvog ostatka i mineralizaciju na 450°C.

Uzorci aerosola sakupljaju se svakodnevno na filter papirima, relativne efikasnosti 80% na slobodno nataloženu prašinu, sistemima za uzorkovanje aerosola konstantnog protoka 25 m<sup>3</sup>/h. Zbirni mesečni uzorak dobija se mineralizacijom dnevnih uzoraka aerosola, na 370°C.

Specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  su određene gamaspektrometrijskom metodom, merenjem na HPGe detektorima firme Canberra (relativnih efikasnosti 18%, 20% i 50%), preko njegove energije 477 keV i izražene u Bq/m<sup>2</sup> za ukupni depozit i Bq/m<sup>3</sup> za aerosole. Rezolucija svih detektora je 1.8 keV na energiji od 1332 keV. Dobijene specifične aktivnosti korigovane su na dan uzorkovanja s obzirom na to da je vreme poluraspada  $T_{1/2} (^7\text{Be}) = 52.9$ . dana, a za dan uzorkovanja je uzeta sredina meseca tokom kog su se uzorci sakupljali.

Vreme merenja uzoraka je 60 ks. Rezultati merenja dati su sa mernom nesigurnošću koja je izražena kao proširena merna nesigurnost za faktor  $k = 2$  koji za normalnu raspodelu odgovara nivou poverenja od 95 %.

Kalibracija detektora za merenje uzoraka aerosola i ukupnog depozita, urađena je sekundarnim referentnim radioaktivnim materijalom u geometriji fiola i plastične posude od 125cm<sup>3</sup> matriksa aerosolni prah, koji je dobijen od primarnog referentnog radioaktivnog materijala, Czech Metrological Institute, Prague, 9031-OL-427/12, type ERX, ukupne aktivnosti 72.40 kBq na 31.08.2012.godine ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ )[1,16-19].

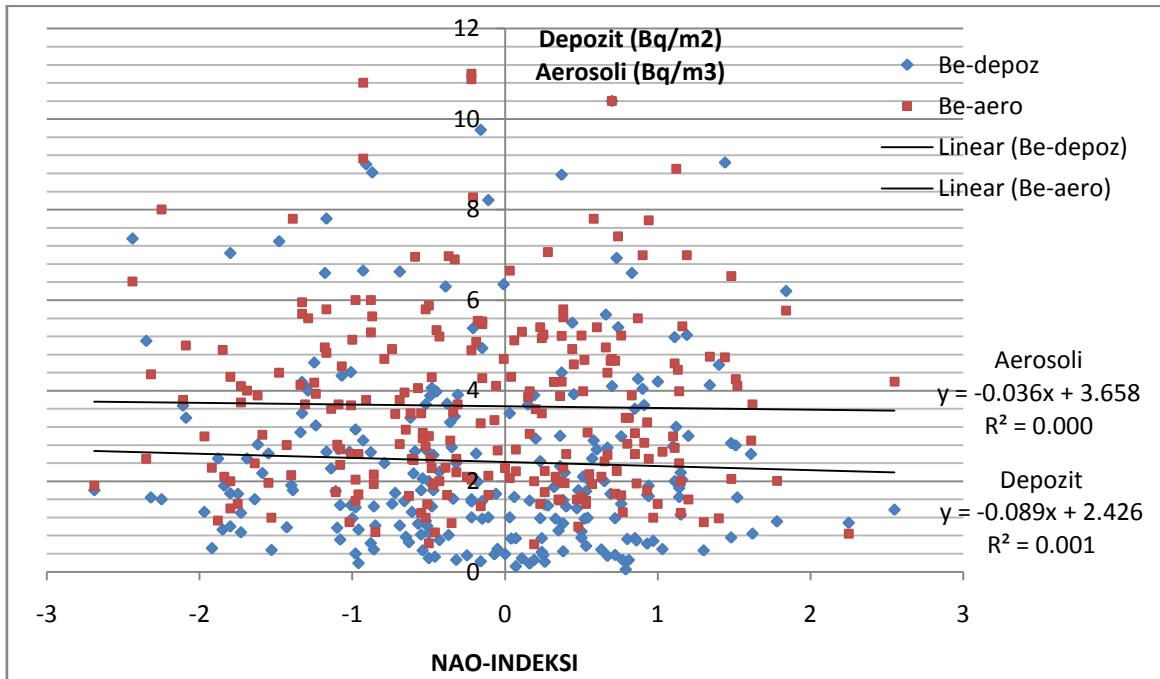
Linearni koeficijent korelacije određen je preko Pirsonovog koeficijenta na osnovu jednačine (1). Korišćen je i Spirmanov koeficijent koji ukazuje na postojanje bilo kog oblika korelacije na osnovu jednačine (2). Moguće vrednosti oba koeficijenta se kreću u intervalu (-1, 1) odnosno apsolutna vrednost koja je bliža jedinici, ukazuje na veću koreliranost. Negativan predznak govori o antikorelaciji.

$$r_{xy} = \frac{N \sum xy - (\sum x \sum y)}{\sqrt{[N \sum x^2 - (\sum x)^2][N \sum y^2 - (\sum y)^2]}} \quad (1)$$

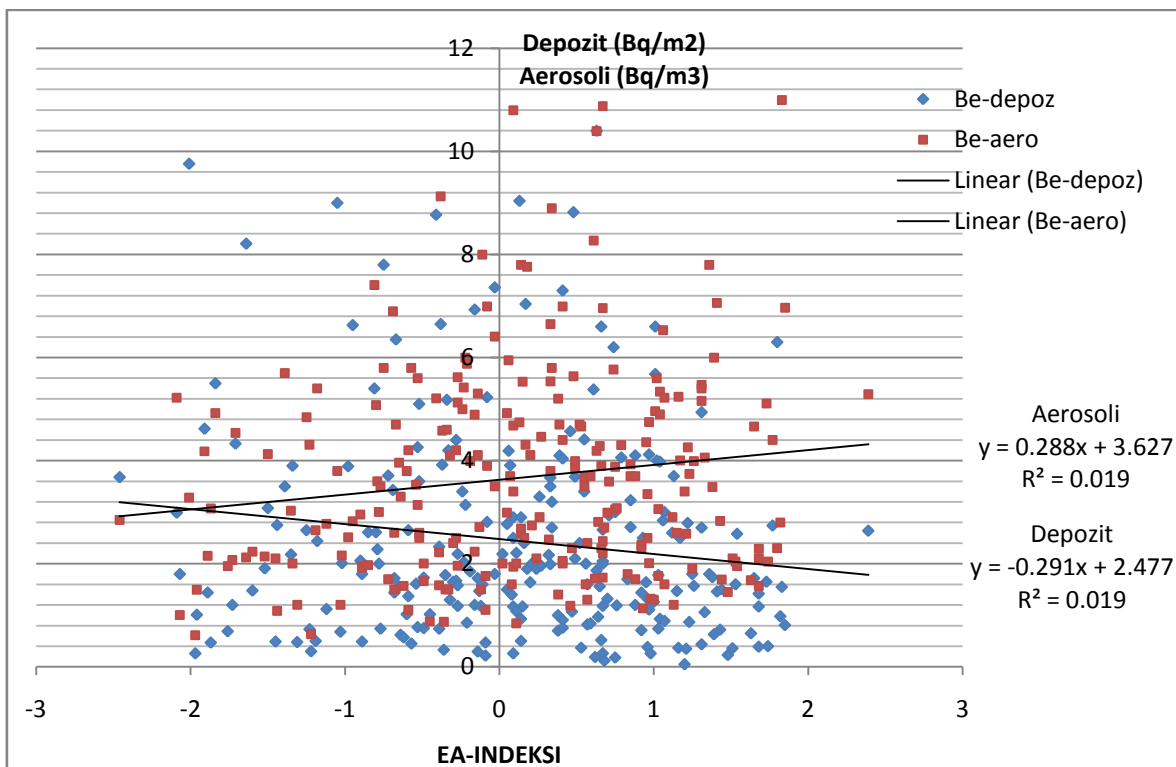
$$r_s = 1 - \frac{6 \sum_{i=1}^n d_i^2}{n(n^2 - 1)} \quad (2)$$

#### 4. Rezultati

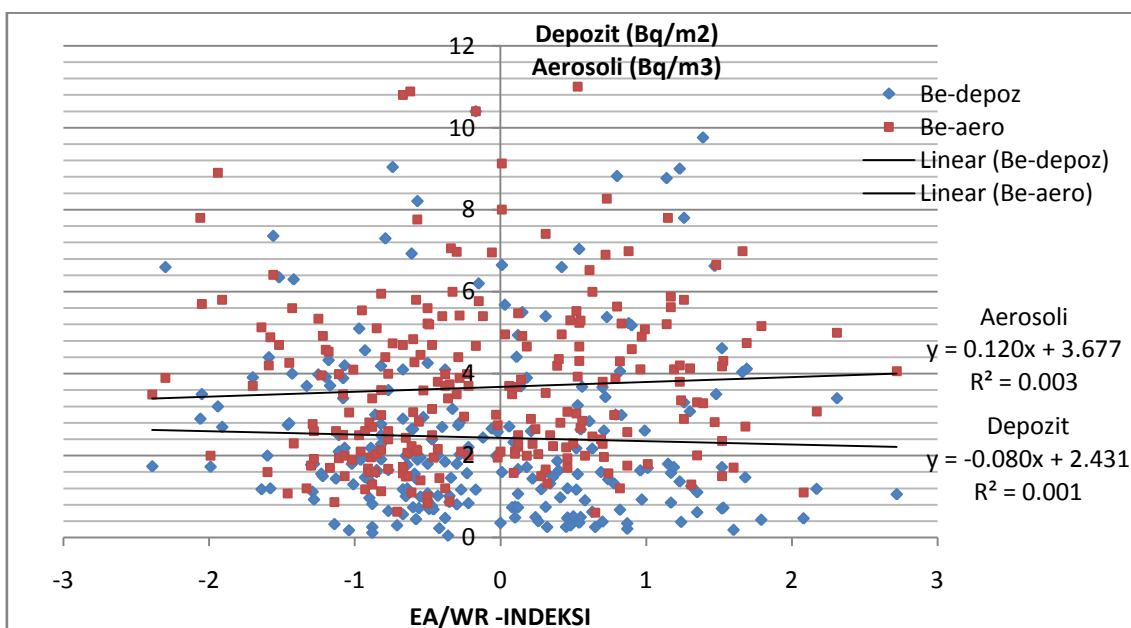
Na Slikama 3-6, respektivno su prikazani grafici zavisnosti aktivnosti  $^7\text{Be}$  u aerosolima i ukupnom depozitu u funkciji NAO, EA, EAWR i SCA indeksa. U Tabelama 1 i 2 su prikazane vrednosti Pirsonovog i Spirmanovog koeficijena za koreliranost  $^7\text{Be}$  u aerosolima i depozitu sa sva četiri ispitivana indeksa oscilacija. Podaci za indekse su preuzeti sa sajta američkog Centra za predviđanje klime (Climate Prediction Center: <http://www.cpc.ncep.noaa.gov/>).



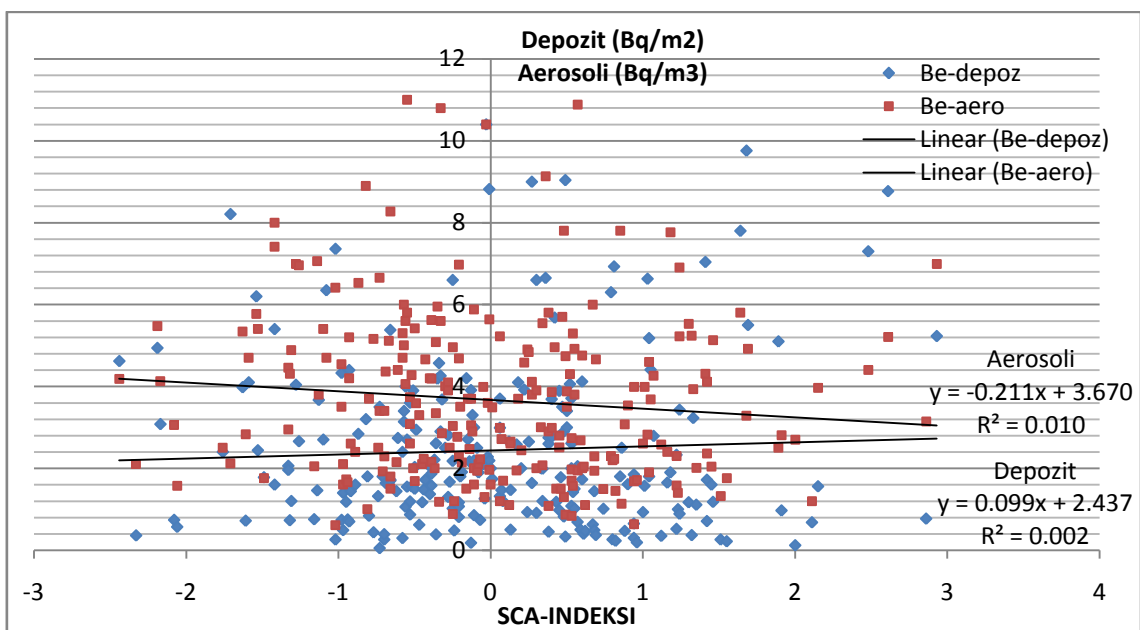
Slika 3. Grafik zavisnosti aktivnosti  $^7\text{Be}$  u aerosolima i depozitu u funkciji vrednosti NAO indeksa



Slika 4. Grafik zavisnosti aktivnosti <sup>7</sup>Be u aerosolima i depozitu u funkciji vrednosti EA indeksa



Slika 5. Grafik zavisnosti aktivnosti <sup>7</sup>Be u aerosolima i depozitu u funkciji vrednosti EA/WR indeksa



Slika 6. Grafik zavisnosti aktivnosti  $^7\text{Be}$  u aerosolima i depozitu u funkciji vrednosti SCA indeksa

Tabela 1. Vrednosti Pirsonovog koeficijenta korelacije za  $^7\text{Be}$  u aerosolima, odnosno ukupnom depozitu i NAO, EA, EAWR i SCA

X\Y	NAO	EA	EAWR	SCA
<b>Aerosoli</b>	0,044	<b>0,147</b>	0,053	-0,102
<b>Depozit</b>	-0,044	<b>-0,139</b>	0,038	0,048

Tabela 2. Vrednosti Spirmanovog koeficijenta korelacije za  $^7\text{Be}$  u aerosolima, odnosno ukupnom depozitu i NAO, EA, EAWR i SCA

X\Y	NAO	EA	EAWR	SCA
<b>Aerosoli</b>	0.047	<b>0.111</b>	<b>0.116</b>	<b>-0.146</b>
<b>Depozit</b>	-0.052	<b>-0.135</b>	<b>-0.128</b>	-0.058

Za svaki od dobijenih koeficijenata korelacije je urađen i t-test značajnosti, po jednačini (3) i upoređen sa tabličnom vrednošću  $t(0,05)=1,66$ .

$$t = r \sqrt{\frac{N-2}{1-r^2}} \quad (3)$$

## 5. Diskusija i zaključak

Iz Tabela 1 i 2 se vidi da, na osnovu Pirsonovog i Spirmanovog koeficijenta, nema korelacije između NAO, EA, EAWR i SCA indeksa i specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  u aerosolnim česticama, kao ni u ukupnom depozitu. Međutim, ako se ovaj zaključak postavi kao nulta hipoteza ( $H_0$ ), rezultati t-testa značajnosti govore da, iako su koeficijenti korelacije bliski nuli, za pojedine slučajeve (EA za obe korelacije, EAWR za Spirmanovu i SCA za Spirmanovu sa aerosolima) se nulta hipoteza ne može prihvatiti kao tačna, jer je verovatnoća za grešku veća od 5%. Na osnovu ovoga, dalji

tok istraživanja biće usmeren ka ispitivanju korelacije između EA indeksa i  $^7\text{Be}$  sa usrednjenim sezonskim vrednostima (u zimskom, odnosno letnjem periodu), zatim, u periodima kada su izvesni indeksi dominantni, kao i geografska korelacija između indeksa i  $^7\text{Be}$ .

## 5. Zahvalnica

Ovaj rad je finansijski podržan od strane Ministarstva za prosvetu, nauku i tehnološki razvoj Republike Srbije, u okviru projekta broj III43009.

## 6. Literatura

- [1] M. Yoshimori. Production and behavior beryllium 7 radionuclide in the upper atmosphere. *Adv. Space. Res.* 36 (2005) 922-926.
- [2] Y. Narazaki, K. Fujitaka, S. Igarashi, Y. Ishikawa and N. Fujinami. Seasonal variation of  $^7\text{Be}$  deposition in Japan. *J. Radioan. Nucl. Chem.* 256(3) (2003) 489-496.
- [3] S. Gafney, A. Marley and M. Cunningham. Natural radionuclides in fine aerosols in the Pittsburgh area. *Atmosph. Environ.* 38 (2004) 3191-3200.
- [4] F. Zhangb, B. Zhang and M. Yang. Beryllium-7 atmospheric deposition and soil inventory on the northern Loess Plateau of China. *Atmosph. Environ.* 77 (2013) 178-184.
- [5] M. Rajačić, D. Todorović, M. Janković, J. Nikolić, N. Sarap and G. K. Pantelić.  $^7\text{Be}$  in atmospheric deposition: determination of seasonal indices. *J. Radioan. Nucl. Chem.* 303 (2015), 2523-2538.
- [6] J. Chao, Y. Chiu, H. Lee and M. Lee. Deposition of beryllium-7 in Hsinchu, Taiwan. *Appl. Radiat. Isot.* 70 (2012) 415-422.
- [7] A. Leppanen, A. Pacini, I. Usoskin, A. Aldahan, E. Echer, H. Evangelista, S. Klemola, G. Kovaltsov, K. Mursula and G. Possnert. Cosmogenic  $^7\text{Be}$  in air: A complex mixture of production and transport. *J. Atm. Solar-Terres. Phys.* 72 (2010) 1036-1042.
- [8] E. Gomez, F. Garcias, M. Casas and V. Cerda, Determination of natural gamma emitters in surfaces air. *J. Environ. Anal. Chem.* 56 (1994) 327-335.
- [9] C. Papastefanou, A. Ioannidou, S. Stoulos and M. Manolopoulou. Atmospheric deposition of cosmogenic  $^7\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  from fallout of the Chernobyl accident. *Sci. Total Environ.* 170 (1995) 151-156.
- [10] R. Winkler, F. Dietl, G. Frank and J. Tschiersch. Temporal variations of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  size distributions in ambient aerosol. *Atmosph. Environ.* 32 (1998) 983-991.
- [11] J. A. Young and W. B. Silker, Aerosol deposition velocities on the Pacific and Atlantic Oceans calculated from  $^7\text{Be}$  measurements. *Earth. Planet. Sci. Lett.* 50 (1980) 92-104.
- [12] E. A. Creelius. Prediction of marine atmospheric deposition rates using  $^7\text{Be}$  deposition velocities. *Atmos. Environ.* 15 (1981) 579-582.
- [13] K. K. Turekian, L. K. Benninger and E. P. Dione.  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  total deposition fluxes at New Haven, Connecticut and at Bermuda, *J. Geophys. Res.* 88 (1983) 5411-5415.
- [14] G. Lujaniene. Study of removal processes of  $^7\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  from the atmosphere. Czechoslovak, *J. Phys.* 53 (2003) 57-65.
- [15] C. Papastefanou and A. Ioannidou. Influence of air pollutants in the  $^7\text{Be}$  size distribution of atmospheric aerosols. *Aerosol. Sci. Technol.* 24 (1996) 102-106.
- [16] Measurements of Radionuclides in Food and the Environment, Technical Report Ser. No. 295. 1989. IAEA, Vienna

- [17] M. Janković, D. Todorović, B. Janković, J. Nikolić, G. Pantelić and M. Rajačić. Beryllium-7 concentration analysis in ground level air in Serbia. In: S. Anić and Ž. Čupić. Proceedings of the 11th International Conference on Fundamental and Applied Aspects of Physical Chemistry, pp. 639-641, Belgrade, Serbia, 24-28 September 2012. Society of Physical Chemists of Serbia.
- [18] M. Janković, D. Todorović, J. Nikolić, M. Rajačić, G. Pantelić and N. Sarap. Temporal changes of beryllium-7 and lead-210 in Serbia. *Hem. Ind.* 68 (1) (2014) 83–88
- [19] D. Todorović, D. Popović, G. Djurić and M. Radenković.  $^7\text{Be}$  to  $^{210}\text{Pb}$  concentration ratio in ground level air in Belgrade area. *J. Environ. Radioact.* 79 (2005) 297-307.

**A CORRELATION BETWEEN THE SPECIFIC ACTIVITIES OF  $^7\text{Be}$  IN  
AEROLS AND TOTAL DEPOSITION AND METEOROLOGICAL INDICES  
NAO, EA, EAWR AND SCA**

**Milica RAJAČIĆ<sup>1</sup>, Dragana TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Vladimir ĐURĐEVIĆ<sup>2</sup>, Ivan  
PETROVIĆ<sup>1,3</sup>, Marija JANKOVIĆ<sup>1</sup>, Jelena NIKOLIĆ<sup>1</sup> and Gordana  
PANTELIC<sup>1</sup>**

- 1) *University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences, Radiation and Environmental Protection Department, Belgrade, Serbia, milica100@vinca.rs*
- 2) *University of Belgrade, Institute for Meteorology, Faculty of Physics, Belgrade, Serbia*
- 3) *University of Belgrade, Faculty of Physics, 11000 Belgrade, Serbia*

**ABSTRACT**

Particles of radionuclides, such as  $^7\text{Be}$ , can be used as a tracer to track the movement of pollutants and aerosol particles, determining the speed of their deposits and mean atmospheric residence time. Multi-annual monitoring of  $^7\text{Be}$ , presented in this paper, observed clear seasonal variations with maximum activity peaks in summer and minimum in winter months. Due to the fact that the creation of  $^7\text{Be}$  takes place in the atmosphere, the investigation of the linear correlation of  $^7\text{Be}$  specific activity, measured in dry and wet deposit of aerosol particles and ground-level air, with meteorological indices oscillations of NAO, EA, EAWR and SCA was performed.

The calculation of Pearsons and Spearman's correlation coefficient showed no correlation between NAO, EA, EAWR and SCA and  $^7\text{Be}$  specific activity in aerosol and deposit. However, the t-test values calculated for these results indicate that correlation can not be dismissed. The potential correlation between seasonal average of EA index and  $^7\text{Be}$ , as well as geographical correlation between these values is yet to be tested.



## BERILIJUM-7 I VISINA TROPOPAUZE: ANALIZA KORELACIJA PO POJASEVIMA GEOGRAFSKE ŠIRINE

**Jelena AJTIĆ<sup>1,2</sup>, Vladimir ĐURĐEVIĆ<sup>3</sup>, Darko SARVAN<sup>1</sup>, Dragana  
TODOROVIĆ<sup>4</sup> i Jelena NIKOLIĆ<sup>4</sup>**

- 1) Univerzitet u Beogradu, Fakultet veterinarske medicine, Beograd, Srbija,  
[jelena.ajtic@vet.bg.ac.rs](mailto:jelena.ajtic@vet.bg.ac.rs), [darko.sarvan@vet.bg.ac.rs](mailto:darko.sarvan@vet.bg.ac.rs)
- 2) Institut za istraživanje i razvoj složenih sistema, Beograd, Srbija
- 3) Univerzitet u Beogradu, Fizički fakultet, Institut za meteorologiju, Beograd, Srbija,  
[vdj@ff.bg.ac.rs](mailto:vdj@ff.bg.ac.rs)
- 4) Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke Vinča, Laboratorija za Zaštitu  
od zračenja i Zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija, [beba@vinca.rs](mailto:beba@vinca.rs),  
[jnikolic@vinca.rs](mailto:jnikolic@vinca.rs)

### SADRŽAJ

Linearna korelacija između specifične aktivnosti berilijuma-7 u prizemnom sloju atmosfere i visine tropopauze, analizirana je na 21 lokaciji u Evropi. Geografska širina odabranih lokacija je u rasponu 37–69 °N. Lokacije su grupisane u pet pojaseva geografske širine. Za svaku lokaciju, koeficijenti linearne korelacije računati su sa „vremenskom razdvojenosti“ – izmerena specifična aktivnost berilijuma-7 korelisana je sa srednjom vrednošću visine tropopauze tokom određenog broja dana koji je prethodio merenju. Ovaj broj dana varirao je od 0 do 31. Za dobijene nizove linearnih korelacionih koeficijenata pronađeni su maksimumi kao i broj dana vremenske razdvojenosti na kojima su maksimumi dostignuti. Poređenja radi, dati su i rezultati za mernu stanicu Vinča, Beograd, za koju su koeficijenti linearne korelacije izračunati na osnovu srednjih mesečnih specifičnih aktivnosti berilijuma-7 i srednjih mesečnih visina tropopauze. Srednja vrednost maksimalnog koeficijenta linearne korelacije za sve stanice: iznosi 0,350 i u proseku se dostiže posle 10 dana; raste od severa ka jugu. Merne stanice duž obale Atlanskog okeana ili u njegovoj blizini imaju najniže vrednosti maksimalnog koeficijenta korelacije. Srednja sezonska vrednost maksimalnog koeficijenta korelacije raste od 0,249 tokom zime do 0,470 tokom jeseni, i praćena je rastom srednjeg sezonskog broj dana vremenske razdvojenosti – tokom zime iznosi sedam dana, a tokom jeseni 16 dana. U sezonskim korelacijama razlikuju se dva pojasa geografske širine, severno i južno od 55 °N, u kojima linearna povezanost specifične aktivnosti berilijuma-7 i visine tropopauze ima drugačiji karakter.

### 1. Uvod

Berilijum-7 je prirodni radionuklid (period poluraspada 53,28 dana) koji se stvara u reakcijama kosmičkog zračenja i lakih elemenata u atmosferi [1]. Oko 70 % produkcije je u stratosferi, a ostatak u višim slojevima troposfere [1]. Berilijum-7 brzo se vezuje za aerosole [2, 3, 4] i potom se transportuje kroz atmosferu i stiže do površine zemlje. Glavni mehanizam uklanjanja <sup>7</sup>Be iz atmosfere je vlažna depozicija [5]. Specifična aktivnost <sup>7</sup>Be u vazдушnim masama stoga može biti pokazatelj istorije transporta vazduha, pogotovu ako vazdušne mase stižu iz stratosfere [6]. U tom slučaju, <sup>7</sup>Be je transportovan kroz prelazni sloj između stratosfere i troposfere – tropopauzu.

Tropopauza predstavlja prelazni sloj između troposfere i stratosfere u kome se termalne, dinamičke i hemijske osobine atmosfere menjaju. Jedna od definicija tropopauze oslanja se na promenu vertikalnog profila temperature [7], koja oslikava činjenicu da je

vertikalno strujanje u stratosferi sporije nego u troposferi, kao i da se transport kroz njihov granični sloj neretko odvija pri posebnim uslovima [8]. Prenos vazdušnih masa iz stratosfere u troposferu menja hemijski sastav troposfere. Tako hemijske supstance koje se stvaraju samo u stratosferi, na primer ozon, stižu do površine zemlje [9]. Berilijum-7 takođe, čija produkcija je većim delom u stratosferi, dolazi do prizemnog sloja vazduha posle spuštanja kroz tropopauzu. Njegov vertikalni profil uniforman je iznad tropopauze, dok ispod nje, koncentracija zavisi od visine [10].

Pozitivna korelacija između specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  u prizmenom sloju atmosfere i visine tropopauze pokazana je na četiri evropske merne stanice nadmorske visine iznad 2000 m [11], i za Solun, Grčka [12]. Takođe je pokazano da je korelacija maksimalna kada se korelišu specifična aktivnost  $^7\text{Be}$  i visina tropopauze tri dana pre merenja specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  [12].

U ovom radu upotrebljeni su nizovi specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  u površinskom sloju vazduha i visine tropopauze na više od 20 mernih lokacija u Evropi, kako bi se detaljnije proučila njihova međusobna povezanost.

### 3. Materijal i metode

Merenja specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  preuzeta su iz baze podataka Monitoring radioaktivnosti u životnoj sredini (na engleskom „Radioactivity Environmental Monitoring Database“, u daljem tekstu REM baza) koju održava grupa za Monitoring radioaktivnosti u životnoj sredini Instituta za transuranijske elemente Objedinjenog istraživačkog centra u Ispri, Italija (<https://ec.europa.eu/jrc/en/institutes/itu>). Bazu čine višegodišnja merenja specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  u prizemnom sloju vazduha koja se sprovode na 34 lokacije širom Evrope [13].

Od 34 lokacije, u ovom radu obrađena su merenja sa 21 merne stanice na kojima je broj uzoraka veći od 300. Detalji ovih lokacija dati su u Tabeli 1, gde je naveden i početak uzorkovanja. Za svaku mernu stanicu, početak uzorkovanja naveden u REM bazi određen je godinom pristupanja date zemlje u Evropsku uniju. Dostupni podaci završavaju se sa decembrom 2011. godine. U radu su takođe obrađena merenja specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  koja se kontinualno sprovode u Institutu za nuklearne nauke Vinča, Beograd.

Merne stanice podeljene su u pet pojaseva geografske širine (Tabela 1).

Merenja specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  u prizmenom sloju vazduha vršena su pomoću uzorkivača vazduha na filter papirima. Detalji o merenjima u REM bazi mogu se naći u [13], a u Institutu za nuklearne nauke Vinča u [14].

Visina tropopauze dobijena je prema proceduri opisanoj u [12]. Ulazni podaci za proračun preuzeti su iz NCEP/NCAR reanalize [15]. U proceduri je hidrostatička aproksimacija upotrebljena za ekstrapolaciju izobarske visine iznad i ispod tropopauze na pritisak tropopauze. Srednja vrednost ove dve ekstrapolisane visine uzeta je za visinu tropopauze. Na ovaj način dobijene su dnevne vrednosti visine tropopauze za svako merno mesto tokom perioda uzorkovanja.

Linearna zavisnost između merenih specifičnih aktivnosti  $^7\text{Be}$  i visine tropopauze ispitivana je pomoću Pirsonovog koeficijenta linearne korelacije. Za svaki dobijeni koeficijent korelacije, izračunata je i njegova statistička značajnost (Studentov t-test, na nivou značajnosti  $p=0,05$ ) i u radu su predstavljeni samo statistički značajni koeficijenti. Za svako merno mesto (osim Beograda), izračunata su 32 niza Pirsonovih koeficijenata linearne korelacije na sledeći način. Svakom merenju specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  pripisana je srednja visina tropopauze tokom  $n$  dana koji su prethodili datom merenju

<sup>7</sup>Be. Broj dana  $n$  varirao je od 0 do 31. U slučaju  $n=0$ , korelisana je specifična aktivnost <sup>7</sup>Be sa visinom tropopauze istog dana kada je izvršeno merenje <sup>7</sup>Be. U slučaju  $n>0$ , korelacija je rađena sa srednjom vrednošću visine tropopauze izračunate za dan merenja i  $n-1$  dana koji su prethodili danu merenja. Osim na celokupnom nizu podataka dostupnih za svako merno mesto, korelacije su takođe razvrstane po godišnjim dobima. Na mernoj lokaciji Beograd, korelacija je izračunata za srednje mesečne vrednosti specifične aktivnosti <sup>7</sup>Be i srednje mesečne vrednosti visine tropopauze.

**Tabela 1. Lokacije na kojima je merena specifična aktivnost <sup>7</sup>Be. Za svako merno mesto dati su i datum početka uzorkovanja kao i broj uzoraka.**

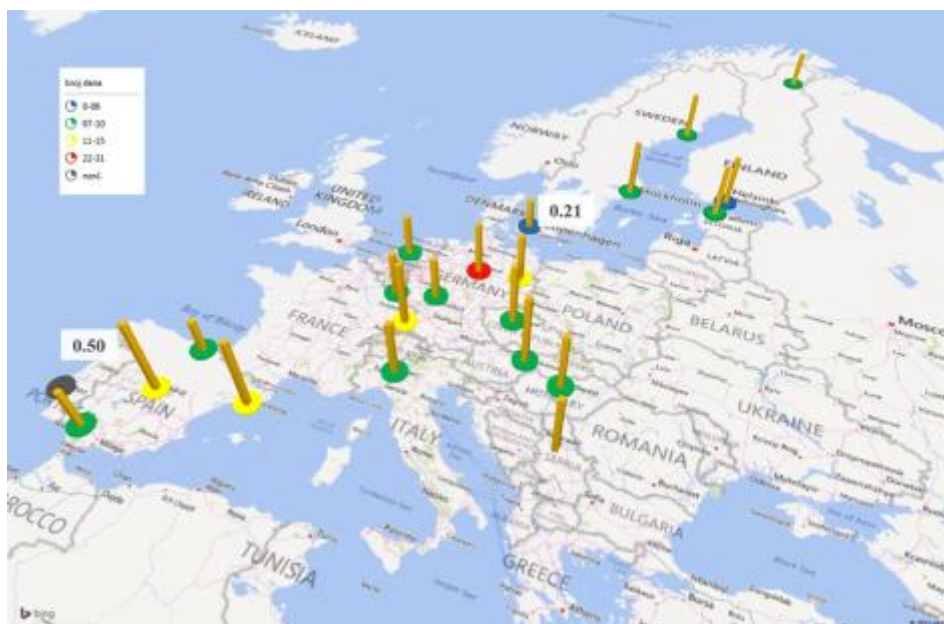
Pojas geografske širine	Merno mesto	Geografska širina i dužina (°N; °E)	Početak uzorkovanja	Broj uzoraka
> 60 °N	Ivalo	(68,64; 27,57)	februar 1987	1189
	Umea	(63,85; 20,34)	januar 1995	875
	Helsinki	(60,21; 25,06)	januar 1987	4297
55-60 °N	Kista	(59,40; 17,93)	maj 1984	1463
	Harku	(59,39; 24,58)	januar 2003	465
	Risoe	(55,69; 12,10)	jun 1986	1400
50-55 °N	Berlin	(52,53; 13,42)	februar 1984	406
	Braunšvajg	(52,25; 10,50)	januar 1982	336
	Biltoven	(52,11; 05,18)	februar 1987	1048
	Ofenbah	(50,10; 08,77)	januar 2001	503
	Prag	(50,09; 14,42)	januar 2002	553
45-50 °N	Luksemburg	(49,63; 06,13)	januar 1987	1159
	Beč	(48,22; 16,35)	maj 1982	1528
	Frajburg	(48,20; 07,87)	januar 1989	1115
	Budimpešta	(47,50; 19,11)	januar 1987	490
	Milano	(45,47; 09,18)	februar 1988	473
<45 °N	Bilbao	(43,17; -2,94)	jul 2000	609
	Barselona	(41,38; 02,12)	januar 2001	581
	Madrid	(40,45; -3,69)	januar 1998	720
	Sakaven	(38,72; -9,13)	februar 1991	305
	Sevilja	(37,39; -6,01)	oktobar 2000	583
	Beograd	(44,48; 20,28)	februar 1991	232

U dobijenim nizovima korelacionih koeficijenata, izdvojeni su maksimumu i dani na kojima su ti maksimum korelacionih koeficijenata dostignuti. Ovaj broj dana „vremenske razdvojenosti“ ukazuje na to koliko je vremena potrebno da se u površinskom sloju vazduha registruju izmene vazduha koje se događaju u sloju tropopauze.

## 5. Rezultati i diskusija

Maksimalni koeficijent linearne korelacije i broj dana na kome je dostignut maksimum korelacije dati su na Slici 1, gde visina predstavljenog stubića odgovara vrednosti korelacionog koeficijenta, a minimalna (0,21 za Riso) i maksimalna vrednost (0,50 za Madrid) su naznačene. Koeficijent linearne korelacije za Beograd takođe je dat.

Osim za Sakaven u Portugaliji, pozitivne korelacije između specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  i visine tropopauze dobijene su za sve lokacije (Slika 1). Pozitivna korelisanost posledica je činjenice da zagrevanje troposfere dovodi do veće visine tropopauze, i istovremeno, to zagrevanje pospešuje razmenu između troposfere i stratosfere, što dovodi do povećane troposferske koncentracije  $^7\text{Be}$  [9, 11]. Srednja vrednost maksimalnog koeficijenta linearne korelacije za sve lokacije iznosi 0,350, dok je srednji broj dana na kome su dostignuti maksimumi korelacije 10 („total“ u Tabeli 2). Za većinu lokacija broj dana je između 7 i 10 (Slika 1), što nije u saglasnosti sa rezultatima [12] koji su maksimalan koeficijent linearne korelacije dobili na tri dana. U [12], međutim, uzeta su merenja samo tokom jedne godine, i metod korelisanja nije identičan metodu primenjenom u našem radu.



**Slika 1. Maksimalni koeficijent linearne korelacije (stubići) između specifične aktivnosti  $^7\text{Be}$  i srednje visine tropopauze tokom broja dana na kome je dostignut maksimum korelacije (datih kao kružić u podnožju stubića). Sivi kružić označava da korelacija nije statistički značajna (na ovoj slici, za Sakaven u Portugaliji).**

Na kontinentalnim stanicama koeficijenti korelacije veći su nego na mernim stanicama duž obale Atlanskog okeana ili u njegovoj blizini – Riso, Bilbao, Ivalo, Biltoven, Sevilja, Ofenbah i Luksemburg imaju najniže koeficijente korelacije, između 0,21 i 0,30 (Slika 1). Razlog za ovo može ležati u činjenici da su priobalne oblasti često pod uticajem maritimnih vazdušnih masa, koje donose zapadni vetrovi tipični za umerene geografske širine, a koje, sa druge strane, generalno imaju niske vrednosti aerosola, te tako i niske koncentracije  $^7\text{Be}$  vezanog za aerosole. Sličan zaključak iznet je u [11]. Srednja vrednost maksimalnog koeficijenta korelacije menja se tokom godišnjih doba. Najniža vrednost je tokom zime, zatim raste tokom proleća i leta, i dostiže najveću

vrednost u jesen (Tabela 2). Srednji broj dana na kome je maksimum korelacije takođe raste od zime (7 dana) do jeseni (16 dana). Statistički značajne i veće vrednosti koeficijenta korelacije tokom godišnjih doba proleće, leto i jesen ukazuju na postojanje procesa koji dovode do promene koncentracije  $^{7}\text{Be}$  u nižim slojevima troposfere, a koji su, sa druge strane, povezani sa visinom tropopauze. Tokom zime, isti procesi ne doprinose značajno specifičnoj aktivnosti  $^{7}\text{Be}$  u površinskom sloju atmosfere. Detaljnija analiza cirkulacionih sistema tokom ovih meseci verovatno bi mogla dati precizniji odgovor o kojim procesima je reč. Jedan od mogućih razloga za veće vrednosti koeficijenta korelacije tokom toplijeg dela godine može ležati u činjenici da tada subtropsko polje visokog pritiska, sa tipičnim silaznim strujanjima, ima češće intruzije u severne geografske širine.

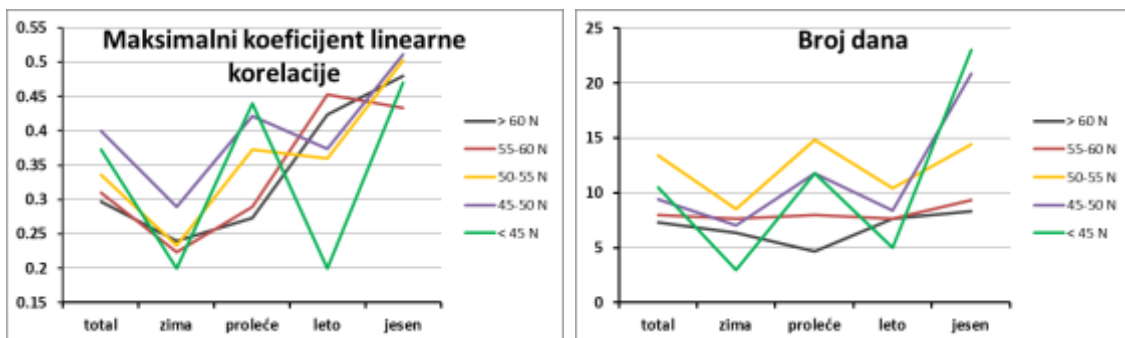
**Tabela 2. Srednja vrednost maksimalnog koeficijenta linearne korelacije kao i srednji broj dana na kome su dostignute maksimalne korelacije, za sve merne lokacije.**

	<b>Srednja vrednost maksimalnog koeficijenta linearne korelacije</b>	<b>Broj dana</b>
total	0,350	10
zima	0,249	7
proleće	0,376	11
leto	0,384	8
jesen	0,470	16

Linearna povezanost specifične aktivnosti  $^{7}\text{Be}$  i visine tropopauze raste od severa ka jugu (Slika 2 – „total“ označava korelacije na celokupnom skupu podataka). Izuzetak je korelacija za najjužniji pojas, geografskih širina manjih od  $45^{\circ}\text{N}$ , koja je nešto niža nego u pojasu  $45\text{--}55^{\circ}\text{N}$ . Sezonski rezultati za zimu i leto ukazuju na razlike u pojasu južno od  $45^{\circ}\text{N}$ . Sve merne stanice u ovom geografskom pojasu locirane su na Pirinejskom poluostrvu, i tokom zime i leta, osim za mernu stanicu Barselona, korelacije nisu statistički značajne. Stoga rezultate za zimu i proleće u ovom pojasu geografske širine (Slika 2) treba uzeti sa rezervom.

Iako je u svim geografskim pojasevima tokom zime koeficijent korelacije najniži, a tokom jeseni najviši, postoje razlike između proleća i leta. Oblasti severno od  $55^{\circ}\text{N}$  imaju slične vrednosti maksimalnog koeficijenta korelacije tokom godine, kao i njihove promene tokom leta i jeseni. Sa druge strane, oblasti južno od  $55^{\circ}\text{N}$ , pored jesenjeg maksimuma imaju i sekundarni maksimum tokom proleća, a tokom leta vrednosti su niže u odnosu na ova dva maksimuma. Ovakva diferencijacija oblasti severno i južno od  $55^{\circ}\text{N}$  uočava se i na grafiku sa brojem dana (Slika 2). Za oblasti severno od  $55^{\circ}\text{N}$ , promena broja dana na kome se dostiže maksimum linearne korelacije relativno je mala, između pet i devet. Za oblasti južno od  $55^{\circ}\text{N}$ , varijacija ovog broja je veća, sa dva maksimuma, tokom jeseni i proleća.

Na osnovu ovoga može se zaključiti da u Evropi postoje dva pojasa geografske širine u kojima je linearna zavisnost specifične aktivnosti  $^{7}\text{Be}$  i visine tropopauze različita: pojas geografskih širina severno od  $55^{\circ}\text{N}$ , i južno od  $55^{\circ}\text{N}$ .



Slika 2. Maksimalni koeficijent linearne korelacije po pojasevima geografske širine (levo) i broj dana na kome je taj maksimum dostignut (desno).

Koeficijenti korelacije dobijeni za Beograd ne razlikuju se mnogo od koeficijenata dobijenih za najbližu stanicu Budimpešta, Mađarska. Na primer, za celokupan skup podataka, koeficijent korelacije za Beograd je 0,41 a za Budimpeštu 0,40. Tokom proleća i jeseni u Beogradu koeficijent iznosi 0,38 i 0,54, dok u Budimpešti koeficijenti tokom ovih godišnjih doba imaju vrednosti 0,43 i 0,53. U Beogradu, međutim, kao i za većinu mernih stanica južno od 45 °N, korelacioni koeficijenti za zimu i leto nisu statistički značajni.

Treba takođe napomenuti da variranje broja dana pri korelisanju specifične aktivnosti  $^{7}\text{Be}$  i srednje visine tropopauze predstavlja odgovarajući pristup u „horizontalno stacionarnoj“ troposferi, tj. kada vazdušne mase koje prođu kroz tropopauzu vertikalnim transportom stignu do površine Zemlje. Horizontalan transport kroz troposferu koji je u ovom slučaju zanemaren, takođe može imati značajan uticaj na specifičnu aktivnost  $^{7}\text{Be}$  u prizemnom sloju vazduha.

## 6. Zaključak

Za 21 lokaciju u Evropi, linearna zavisnost specifične aktivnosti  $^{7}\text{Be}$  i srednje visine tropopauze analizirana je sa vremenskom razdvojenošću od 0 do 31 dana. Maksimalan koeficijent linearne korelacije između ovih veličina u proseku iznosi 0,350, i dostiže se za 10 dana. Na mernim lokacijama koje su u blizini Atlanskog okeana, dobijeni su niži koeficijenti korelacije nego na ostalim mernim mestima. Sezonski maksimalni koeficijenti korelacije najmanji su tokom zime, a najveći u jesen, i rastu kako se smanjuje geografska širina. Promena maksimuma koeficijenata linearne zavisnosti, kao i broja dana na kom se oni dostižu, tokom godišnjih doba ukazuje na postojanje dva pojasa u kome je međusobna zavisnost specifične aktivnosti  $^{7}\text{Be}$  i visine tropopauze različita. Te oblasti su severno i južno od 55 °N.

## 7. Zahvalnica

Ovaj rad je realizovan u okviru projekta „Istraživanje klimatskih promena na životnu sredinu: praćenje uticaja, adaptacija i ublažavanje“ (43007) koji finansira Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije u okviru programa Integriranih i interdisciplinarnih istraživanja za period 2011-2015. godine. Autori se zahvaljuju REM grupi koja je obezbedila podatke iz REM baze (REMdb at the Institute of TransUranium Elements, REM group, DJ JRC Ispra site, European Commission).

## 8. Literatura

- [1] D. Lal and B. Peters, Cosmic ray produced radioactivity on the earth. *Handb. Phys.* 46 (1967) 551–612.
- [2] D. M. Koch, D. J. Jacob, and W. C. Graustein. Vertical transport of tropospheric aerosols as indicated by  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in a chemical tracer model. *J. Geophys. Res.* 101 (1996) 18651–18666.
- [3] T. Tokieda, K. Yamanaka, K. Harada, and S. Tsunogai. Seasonal variations of residence time and upper atmospheric contribution of aerosols studied with  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Po}$  and  $^7\text{Be}$ . *Tellus B.* 48 (1996) 690–702.
- [4] U. Heikkilä, J. Beer, and V. Alfimov. Beryllium-10 and beryllium-7 in precipitation in Dübendorf (440 m) and at Jungfraujoch (3580 m) Switzerland, (1998–2005). *J. Geophys. Res.* 113 (2008) doi:10.1029/2007JD009160.
- [5] M. K. Pham, M. Betti, H. Nies, and P. P. Povinec. Temporal changes of  $^7\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Pb}$  activity concentrations in surface air at Monaco and their correlation with meteorological parameters. *J. Environ. Radioact.* 102 (2011) 1045–1054.
- [6] E. F. Danielsen. Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity. *J. Atmos. Sci.* 25 (1968) 502–518.
- [7] WMO (World Meteorological Organization), Commission for Aerology. Abridged Final Report of the Second Session, No. 65, RP.27, 1957.
- [8] J. R. Holton, P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood, and L. Pfister. Stratosphere-troposphere exchange. *Rev. Geophys.* 33 (1995) 403–439.
- [9] P. Zanis, E. Gerasopoulos, A. Priller, C. Schnabel, A. Stohl, C. Zerefos, H. W. Gäggelar, L. Tobler, P. W. Kubik, H. J. Kanter, H. E. Scheel, J. Luterbacher, and M. Berger. An estimate of the impact of stratosphere-to-troposphere transport (STT) on the lower free tropospheric ozone over the Alps using  $^{10}\text{Be}$  and  $^7\text{Be}$  measurements. *J. Geophys. Res.* 108 (2003) doi:10.1029/2002JD002604.
- [10] J. Simon, J. Meresova, I. Sykora, M. Jeskovsky, and K. Holy. Modeling of temporal variations of vertical concentration profile of  $^7\text{Be}$  in the atmosphere. *Atmos. Environ.* 43 (2009) 2000–2004.
- [11] E. Gerasopoulos, P. Zanis, A. Stohl, C. S. Zerefos, C. Papastefanou, W. Ringer, L. Tobler, S. Hübener, H. W. Gäggelar, H. J. Kanter, L. Tositti, and S. Sandrini. A climatology of  $^7\text{Be}$  at four high-altitude stations at the Alps and the Northern Apennines. *Atmos. Environ.* 35 (2001) 6347–6360.
- [12] A. Ioannidou, A. Vasileiadis, and D. Melas. Time lag between the tropopause height and  $^7\text{Be}$  activity concentrations on surface air. *J. Environ. Radioact.*, 129 (2014) 80–85.
- [13] M. A. Hernández-Ceballos, G. Cinelli, M. Marín Ferrer, T. Tollefsen, L. De Felice, E. Nweke, P. V. Tognoli, S. Vanzo, and M. De Cort. A climatology of  $^7\text{Be}$  in surface air in European Union. *J. Environ. Radioact.* 141 (2015) 62–70.
- [14] J. V. Ajtić, D. J. Todorović, J. D. Nikolić, and V. S. Đurđević. A multi-year study of radioactivity in surface air and its relation to climate variables in Belgrade, Serbia. *Nucl. Technol. Radiat.* 28 (2013) 381–388.
- [15] E. Kalnay, M. Kanamitsu, R. Kistler, W. Collins, D. Deaven, L. Gandin, M. Iredell, S. Saha, G. White, J. Woollen, Y. Zhu, A. Leetmaa, R. Reynolds, M. Chelliah, W. Ebisuzaki, W. Higgins, J. Janowiak, K. C. Mo, C. Ropelewski, J. Wang, R. Jenne, D. Joseph. The NCEP/NCAR 40-Year Reanalysis Project. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 77 (1996) 437–471.

## **BERYLLIUM-7 AND TROPOPAUSE HEIGHT: AN ANALYSIS OF CORRELATIONS ACROSS LATITUDINAL BELTS**

**Jelena AJTIĆ<sup>1,2</sup>, Vladimir ĐURĐEVIĆ<sup>3</sup>, Darko SARVAN<sup>1</sup>, Dragana TODOROVIĆ<sup>4</sup> and Jelena NIKOLIĆ<sup>4</sup>**

- 1) *University of Belgrade, Faculty of Veterinary Medicine, Belgrade, Serbia, [jelena.ajtic@vet.bg.ac.rs](mailto:jelena.ajtic@vet.bg.ac.rs), [darko.sarvan@vet.bg.ac.rs](mailto:darko.sarvan@vet.bg.ac.rs)*
- 2) *Institute for Research and Advancement in Complex Systems, Belgrade, Serbia*
- 3) *University of Belgrade, Faculty of Physics, Institute of Meteorology, Belgrade, Serbia, [vdj@ff.bg.ac.rs](mailto:vdj@ff.bg.ac.rs)*
- 4) *University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences, Laboratory for Environmental and Radiation Protection, Belgrade, Serbia, [beba@vinca.rs](mailto:beba@vinca.rs), [jnikolic@vinca.rs](mailto:jnikolic@vinca.rs)*

### **ABSTRACT**

Linear correlation between the <sup>7</sup>Be specific activity in surface air and tropopause height is analysed for 21 locations in Europe. The latitude of the locations spans from 37 °N to 69 °N. The locations are grouped into five latitudinal belts. For each location, the linear correlation coefficients are calculated with a time lag – the measured <sup>7</sup>Be specific activity is correlated with the mean tropopause height over a number of days that preceded the day of the measurements. Time lag varied from 0 to 31. The maxima are found in the calculated arrays of the linear correlation coefficients, as well as the number of days for which the maxima are reached. For comparison, the results for a measurement location Vinča in Belgrade, Serbia, are also given. For this site, the linear correlation coefficients are calculated using the monthly means of the <sup>7</sup>Be specific activity and tropopause height. The mean value of the maximum linear correlation coefficient for the whole set of measurements is 0.350, and is on average reached after the time lag of ten days. In the investigated latitudinal belts, this mean value increases as the latitude decreases. The measurement locations along the coast of the Atlantic or in its proximity show the least linear correlation. The mean seasonal maximum correlation coefficient increases from 0.249 during winter to 0.470 during autumn, and is matched by an increase in the mean time lag which ranges from 7 days in winter to 16 days in autumn. The seasonal correlations show two latitudinal belts, north of 55 °N and south of 55 °N, in which the linear correlation of the <sup>7</sup>Be specific activity and tropopause height exhibits somewhat different characteristics.



# ЗАВИСНОСТ АТМОСФЕРСКЕ ДЕПОЗИЦИЈЕ $^7\text{Be}$ И $^{210}\text{Pb}$ ОД ПАДАВИНА МЕРЕНА УЗ ПОМОЋ БИОМОНИТОРА

**Миодраг КРМАР<sup>1</sup>, Драгутин Т. МИХАИЛОВИЋ<sup>2</sup>, Инес ПАП<sup>2</sup>  
и Илија АРСЕНИЋ<sup>2</sup>**

- 1) Департман за физику, ПМФ, Нови Сад, Србија, [krmar@df.uns.ac.rs](mailto:krmar@df.uns.ac.rs)  
2) Пољопривредни факултет, Нови Сад, Србија, [guto@polj.uns.ac.rs](mailto:guto@polj.uns.ac.rs)

## САДРЖАЈ

У овом раду је извршена анализа серије мерења активности  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  у узорцима маховина сакупљаних на једној локацији током годину дана са циљем да се добије веза између атмосферске депозиције радионуклида и количине и дужине трајања падавина. Показано је да се на основу добијених активности радионуклида у узорцима маховина могу јасно уочити различити режими у динамици падавина.

## 1. Увод

Природни радионуклиди  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  се веома често користе у својству обележивача у истраживању атмосферских појава [1]. Иако им је порекло другачије, ( $^7\text{Be}$  настаје дејством космичког зрачења у стратосфери и вишој тропосфери док је  $^{210}\text{Pb}$  пореклом из тла) оба радионуклида непосредно након настанка бивају хемијски везани за честице аеросола. То значи да  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  следе све атмосферске путеве транспорта аеросола [2]. Присуство  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  у ваздуху и падавинама се мери већ неколико деценија путем узорковања ваздуха [3] или сакупљањем падавина [4]. Мерења су показала [5] слабу директну пропорционалност између активности депонованих радионуклида и укупне количине падавина, док је мерење активности у ваздуху дало такође слабу, али овог пута негативну корелацију између количине падавина и активности  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  [6].

Биомонитори, међу којима посебно маховине, рутински се користе у изучавању атмосферске депозиције тешких елемената, а учињени су и неки покушаји да се овом техником прате  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  [7]. Велика област природне распрострањености, једноставно узорковање и лако мерење су велике предности биомонитора у радиоэколошким истраживањима. Мерења су показала [7] да између активности  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  у узорцима маховина и количине падавина нису корелирани. То је у потпуности разумљиво пошто се у маховинама сакупља активност  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  током дужег периода времена. Како оба радионуклида до тла долазе искључиво путем атмосферске депозиције, јасно је да се некаква веза између падавина и мерених активности у узорцима маховина може очекивати. У овом раду је учињен покушај да се испитају неке могућности путем којих би се мерене вредности активности  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  у узорцима маховина као и количина падавина и њихово трајање. могле довести у неки међусобну везу.

## 2. Мерења и обрада података

Узорци маховина су узимани једанпут недељно са локације величине око 300 m<sup>2</sup> (кров на Департману за биологију) током 14 месеци. Након уклањања механичких нечистоћа, узорци су сушени до константне масе, да би након тога били паковани у стандардну геометрију и мерени HPGe детектором. Подаци о количини

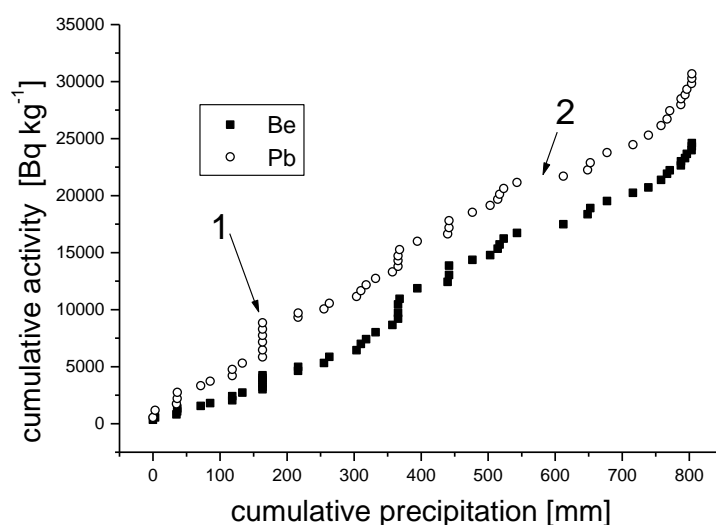
падавина као и о њиховом трајању добијени су из најближе метеролошке станице у Римским Шанчевима. Више детаља о мерењу се може наћи у референци [7]. Како су измерене активности радионуклида у узорцима маховина резултат дужег процеса паралелне депозиције и распада, основна идеја је била да се узастопним мерењима узорака покупљених на истој локацији одреди "кумулятивна активност" која би се упоредила са кумулативним вредностима количине падавина и њиховог трајања. Кумулативна активност би се добила сабирањем измерених вредности активности  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}$  појединачних узорака који су мерени путем установљеног ритма узорковања. Овако дефинисана кумулативна активност се до извесне мере разликује од кумулативне вредности количине падавина превасходно због тога што маховине увек поседују извесну активност  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}$  која не потиче од доприноса добијеног искључиво у периоду између два узорковања као што је то случај са падавинама. У периодима када узастопна мерења дају константну вредности активности  ${}^7\text{Be}$  или  ${}^{210}\text{Pb}$ , кумулативна активност је линеарна растућа функција времена а њен нагиб је једнак константној вредности мерене активности. Уколико би се активности неког од посматраних радионуклида усталиле на некој другачијој вредности, дошло би до промене нагиба функције која описује временску зависност кумулативне активности. У случају да сваки нови узорак маховина има вредност већу од претходне, кумулативна активност би била степена функција времена итд. Кумулативна активност се може пратити и као функција кумулативне вредности количине падавина или њихове дужине трајања.

### 3. Резултати и дискусија

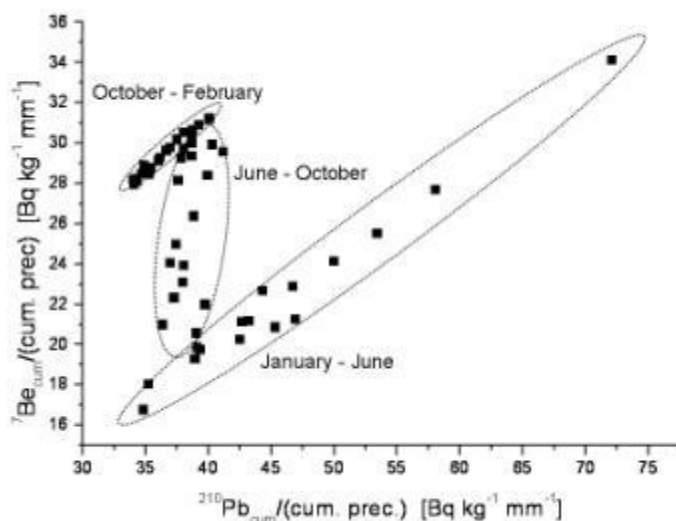
Када се графички прикаже зависност кумулативне активности  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}$  од кумулативне количине падавина добија се генерално растући тренд са тачкама које се групишу у зависности од међусобног односа ових величина. Тако на пример, на Слици 1 је означена област 1 карактеристична за период у коме су падавине потпуно изостале. Може се видети да су тачке у тој области поредане потпуно вертикално, што одговара периоду суве депозиције. Област 2 означена на графику одговара рекордној количини падавина. Сличан график се добије уколико се представи зависност кумулативне активности  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}$  од кумулативне дужине трајања падавина.

Примећено је [7] да се концентрација  ${}^{210}\text{Pb}$  у маховинама не мења значајно током године, док се код  ${}^7\text{Be}$  уочавају знатне сезонске промене. У том случају је корисно погледати како би изгледала корелација између измерених вредности  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}$ . То је приказано на слици 2. Да би се елиминисао могући утицај падавина, добијене вредности кумулативних активности  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}$  су нормиране одговарајућим вредностима кумулативне количине падавина. На Слици 2 се лако може уочити да се у једном оваквом графичком приказу тачке групишу у три добро издвојене целине. Свака од тих целина одговара једном посматраном периоду. Такође се може видети да су тачке измерене током једног од тих периода поредане на тај начин да указују на линеарну зависност између нормираних вредности кумулативних активности  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}$ . Јасно се уочава да је нагиб пореданих тачака у периоду јануар – јун веома сличан нагибу тачака добијених у периоду октобар – фебруар, док тачке карактеристичне за период јун- октобар указују на знатно већу промену вредности кумулативне активности  ${}^7\text{Be}$  него

кумулятивне активности  $^{210}\text{Pb}$ . Слично се добија и нормализацијом на дужину трајања падавина.



Слика 1. Кумулативне активности  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  као функција кумулативне количине падавина



Слика 2. Корелација између кумулативних активности  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  нормираних вредностима кумулативне количине падавина

#### 4. Закључак

Маховине као најраспрострањенији биомонитори пружају извесне могућности за истраживање. Будући да се у њима врши акумулација  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$ , начини на који се из мерења њихових активности може добити информација се разликују у односу на постојеће. У овом раду је показано како се одговарајућим третманом података кумулативних активности  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}$  из податке о падавинама могу раздвојити временске области које се разликују по динамици депозиције.

## 5. Литература

- [1] A.C. Carvalho, M. Reis, L. Silva and M.J. Madruga. A decade of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  activity in surface aerosols measured over the Western Iberian Peninsula. *Atmosph. Environ.* 67 (2013) 193-202.
- [2] J.M. Kaste, S.A. Norton and C. Hess. Environmental chemistry of  $^7\text{Be}$ . *Rev. Mineral. Geochem.* 50 (2002) 271-289.
- [3] A. Kulan, A. Aldahan, G. Possnert and I. Vintersved I. Distribution of  $^7\text{Be}$  in surface air of Europe. *Atmosph. Environ.* 40 (2006) 3855–3868.
- [4] P.J. Wallbrink and A.S. Murray. Fallout of  $^7\text{Be}$  in South Eastern Australia. *J. Environ. Radioact.* 25 (1994) 213-228.
- [5] S. Caillet, P. Arpagaus, F. Monna and J. Dominik. Factors controlling  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  atmospheric deposition as revealed by sampling individual rain events in the region of Geneva, Switzerland. *J. Environ. Radioact.* 53 (2001) 241–256.
- [6] A.S. Likuku. Factors influencing ambient concentrations of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  over city of Edinburgh. *J. Environ. Radioact.* 87 (2006) 289-304.
- [7] M. Krmar, D. Radnović, D.T. Mihailović, B. Lalić, J. Slivka and I. Bikit. Temporal variations of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in moss samples over 14 month period. *Appl. Radiat. Isot.* 67 (2009) 1139–1147

### DEPENDENCE OF $^7\text{Be}$ AND $^{210}\text{Pb}$ ATMOSPHERIC DEPOSITION OF PRECIPITATION MEASURED BY THE USE OF BIOMONITORS

**Miodrag KRMAR<sup>1</sup>, Dragutin T. MIHAILOVIĆ<sup>2</sup>, Ines PAP<sup>2</sup> i Ilija ARSENIĆ<sup>2</sup>**

1) *Physics Department, Faculty of Science, Novi Sad, Serbia, krmar@df.uns.ac.rs*

2) *Faculty of Agriculture, Novi Sad, Serbia, guto@polj.uns.ac.rs*

#### ABSTRACT

This paper focuses on analysis of the time series of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  activity measured by the moss technique to gain a better understanding of the possible relationships of the airborne radionuclide deposition and amount as well as duration of precipitation. Our idea is to use data of cumulative precipitation and cumulative duration of precipitation and then explore relations between those datasets and measured  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  activities. From obtained time series of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  activity dataset of “cumulative activities” of airborne radionuclides in mosses was derived. Cumulative activities of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  were calculated by simple addition of successive measured values until the end of the studied period of time. It is shown that data of cumulative activities of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  normalized by precipitation (amount or duration) plotted on a scatter graph will give the points grouped on such way that they show different regimes of depositional dynamic of airborne radionuclides.

## УТИЦАЈ ВЕГЕТАЦИЈЕ НА АТМОСФЕРСКУ ДЕПОЗИЦИЈУ РАДИОНУКЛИДА

**Миодраг КРМАР<sup>1</sup>**, **Драган РАДНОВИЋ<sup>2</sup>**, **Јан ХАНСМАН<sup>1</sup>**,  
**Наташа ТОДОРОВИЋ<sup>1</sup>**, **Јована НИКОЛОВ<sup>1</sup>** и **Никола ЈОВАНЧЕВИЋ<sup>1</sup>**

1) Департман за физику, Нови Сад, Србија, *krmar@df.uns.ac.rs*

2) Департман за биологију, Нови Сад, Србија, *dragan.radnovic@dbe.uns.ac.rs*

### САДРЖАЈ

*Активност природних радионуклида  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  је мерена у маховинама узоркованим на десет различитих локација да би се установио утицај шумске вегетације на њихово атмосферско депоновање. Узорци маховина су узимани са по две блиске локације, од којих је једна била у шуми док је друга била на површини која није покривена високом вегетацијом. Узорковање је вршено у пролеће пре листања шума, као и у јесен непосредно пре него што ће лишће отпасти. Намера је била да се установи у којој мери крошње дрвећа представљају препреку атмосферској депозицији природних радионуклида.*

### 1. Увод

Радионуклиди  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  (unsupported  ${}^{210}\text{Pb}$ ) се већ деценијама користе у испитивању транспортних процеса у атмосфери као природни радио – обележивачи [1]. Берилијум -7 се ствара у нуклеарним реакцијама које настају дејством космичког зрачења у сударима са језгрима атома гаса у атмосфери док  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  настаје као потомак  ${}^{222}\text{Rn}$  који у атмосферу улази из тла. Оба радионуклида бивају везана за честице аеросола и на тај начин учествују у атмосферским кретањима [2]. Садржај ових радионуклида се систематски прати у атмосфери [3], као што се мери и њихово депоновање на површину тла [4].

Маховине се као биомонитори већ неколико деценија употребљавају у мапирању атмосферске депозиције тешких елемената на великим површинама [5]. Учињени су и неки покушаји да се депозиција радионуклида такође прати узорковањем и мерењем маховина [6]. Основна предност употребе маховина је њихова широка распрострањеност, лако узорковање, једноставно мерење итд.

Основна идеја овог рада је била да се одговарајућим узорковањем маховина процени да ли шумска вегетација до извесне мере успорава депозицију аеросола. Из тог разлога су узорковане маховине на по две блиске локације, од којих је једна била у шуми, док је друга била на отвореном пољу где нису постојале никакве препреке за атмосферско депоновање природних радионуклида. Да би се уочила разлика могућег утицаја дрвећа на депозицију  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$ , узорковање је вршено у пролеће, непосредно пре олиставања шума као и у јесен, пре него што је лишће почело опадати. Мерене су активности  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  у узетим узорцима маховина, да би се на основу њих проценило до које мере крошње дрвећа представљају препреку депоновању радионуклида на тло.

### 2. Узорковање и мерење

Узорци маховина су сакупљани на локацијама од Фрушке Горе до Аранђеловца са отворених локација и оближњих шума. Водило се рачуна да између та два места не буде већа раздаљина од пар стотина метара. Прва серија узорака је сакупљена у првој недељи априла док је друга серија узорковања обављена у последњој

недељи октобра и првој недељи новембра. Укупно је узето седамнаест пари узорака на десет локација. Где год је то било могуће, одабирана је једна иста врста маховина.

Маховинама су одстрањене механичке нечистоће, осушене су до константне масе и мерене у нискофонском HPGe детекторском систему релативне ефикасности 32%. Употребљени детектор је имао берилијумски прозор што је омогућило мерење гама зрачења  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$ . Између 25 g и 46 g сувог материјала је паковано у стандардну геометрију ( $d = 67 \text{ mm}$ ,  $h = 62 \text{ mm}$ ) а мерења су трајала до 42000 s, да би укупна неодређеност резултата активности  $^{210}\text{Pb}$  била испод 15%.

### 3. Резултати и дискусија

Мерене вредности концентрације  $^7\text{Be}$  су се кретале у опсегу од 260(40) Bq/kg до 1170(170) Bq/kg. Вредности  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  су добијене на тај начин што су измерене концентрације  $^{210}\text{Pb}$  кориговане за допринос оног  $^{210}\text{Pb}$  који се налази у равнотежи са пост-радонским члановима низа. Добијене вредности  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  су се кретале у опсегу од 256(29) Bq/kg до 1478(120) Bq/kg.

Добијене вредности концентрација  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  су груписане по два основа: по тренутку узорковања, да ли је то урађено у пролеће или јесен и на основу локације, тј. да ли су узорци узети са отвореног терена или у шуми. За оба посматрана радионуклида су израчунати односи активности измерених у јесен и пролеће на истој локацији  $A_j/A_p$  (где је са  $A_j$  означена мерена вредност активности посматраног радионуклида у јесен, док је  $A_p$  активност истог тог радионуклида измерена у пролеће). Добијене вредности односа активности измерене у јесен и активности измерене у пролеће за све локације узорковања су усредњене и резултати су приказани у Табели 1.

**Табела 1. Средњи однос активности мерених у јесен и пролеће**

радионуклид	$A_j/A_p$ отворено	$A_j/A_p$ испод крошњи
$^7\text{Be}$	2.40(29)	1.87(21)
$^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$	1.09(16)	1.13(16)

Из горње табеле се може видети да се односи концентрација активности  $A_j/A_p$  за  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  не мењају значајно с обзиром на доба године када је узорковање извршено. Средњи однос активности јесен/пролеће се може сматрати јединицом у оквиру експерименталне неодређености која је дата на нивоу од  $1\sigma$  у табелама. Евидентно је да је активност  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  приближно једнака на одређеној локацији у јесен и у пролеће, независно од тога да ли је узорковање вршено на отвореном терену или у шуми. Овај резултат је потпуно разумљив уколико се узме у обзир чињеница да депозиција  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  мерена уз помоћ биомонитора не показује значајније сезонско одступање.

Код  $^7\text{Be}$  је ситуација нешто мало другачија. Из Табеле 1 се може видети да су средње вредности односа концентрација активности  $A_j/A_p$   $^7\text{Be}$  мерених на истој локацији у јесен и пролеће веће од јединице, како на отвореном простору тако и испод дрвећа. На отвореном простору је средњи однос јесен/пролеће за концентрације  $^7\text{Be}$  једнак  $A_j/A_p = 2.40(29)$ . Средња вредност односа мерених активности у јесен и пролеће је показала да се на отвореном простору концентрација  $^7\text{Be}$  у јесен повећа преко два пута у односу на вредност мерену у

пролеће. Слична је ситуација за маховине узорковане испод дрвећа, уз разлику што је средњи однос јесен/пролеће нешто мало мањи. Овај резултат се може објаснити чињеницом да је депозиција  $^7\text{Be}$  током летњих месеци нешто мало већа него током остатка године. На отвореном простору где се депозиција врши без препрека може се очекивати да концентрација  $^7\text{Be}$  у маховинама у јесен буде преко два пута већа него што је то у пролеће. Чињеница да је однос активности у јесен и пролеће мерен испод дрвећа нешто мало мањи би могао да се објасни задржавањем аеросола у крошњама дрвећа. Наиме, пролећно узорковање је изведено до момента када је дрвеће олистало тако да се може претпоставити да голе гране нису биле у стању да у значајној мери зауставе депоновање  $^7\text{Be}$ . Јесење узорковање је извршено након периода када су маховине у шуми биле заклоњене лишћем тако да се може очекивати да је депозиција  $^7\text{Be}$  била делимично успорена. Мања количина  $^7\text{Be}$  која је доспела до маховина које су се налазиле испод крошњи разлог је због кога је однос активности јесен/пролеће за узорке из шуме нешто мало мањи од односа забележеног на отвореном терену. Уз претпоставку да  $^7\text{Be}$  не бива апсорбован од стране лишћа, мања количина  $^7\text{Be}$  у маховинама из шуме би се могла објаснити и делимичним задржавањем аеросола на лишћу, до момента док их падавине не сперу и транспортују до маховина. С обзиром да је период полураспада  $^7\text{Be}$  релативно кратак, (52 дана) током задржавања аеросола на лишћу, део  $^7\text{Be}$  се могао распасти.

Да би се добила квантитативна мера смањења депозиције на шумским локацијама, за оба радионуклида су израчунати односи активности мерени на једној локацији на отвореном простору и у шуми  $A_{op}/A_s$ . Овде је са  $A_{op}$  означена измерена активност посматраног радионуклида на отвореном простору, док је са  $A_s$  означена активност истог тог радионуклида измерена у шуми. Идентична процедура је поновљена за узорке узете у пролеће и јесен. Средње вредности  $A_{op}/A_s$  отворено/испод крошњи су приказане у Табели 2.

**Табела 2. Средњи однос активности мерених на отвореној локацији и испод крошњи**

радионуклид	$A_{op}/A_s$ пролеће	$A_{op}/A_s$ јесен
$^7\text{Be}$	1.55(19)	2.01(22)
$^{210}\text{Pb}_{us}$	0.97(16)	1.04(16)

На основу бројних вредности приказаних у горњој табели може се закључити да се активност  $^{210}\text{Pb}_{us}$  мерена на отвореном и испод дрвећа не разликује значајно. Средња вредност односа активности  $^{210}\text{Pb}_{us}$  на отвореном и у шуми једнака је јединици (у оквиру експерименталне грешке) и то је забележено и у јесен и у пролеће. Уколико лишће не врши апсорпцију честица аеросола, оне ће у коначном исходу путем падавина бити транспотроване до тла. С обзиром да је период полураспада  $^{210}\text{Pb}$  двадесет година, током временског интервала којег честице аеросола проведу на лишћу не долази до значајнијег смањења активности  $^{210}\text{Pb}$ . То би могао бити основни разлог због којег не постоји разлика у односу активности  $^{210}\text{Pb}_{us}$  на отвореном терену и у шуми, како у пролеће тако у јесен. Вредности приказане у Табели 2 показују да је однос средње активности  $^7\text{Be}$  у узорцима маховина са исте локације, где је један узорак са отворене области а други из шуме, већи од јединице и у пролеће и у јесен. То значи да су систематски мерене веће вредности концентрације  $^7\text{Be}$  на отвореним локацијама. Овај однос је

знатно већи у корист узорака са отвореног терена за мерења изведена у јесен. Како се из Табеле 1 може видети, у јесен је средња активност  ${}^7\text{Be}$  у узорцима са отворене области била двоструко већа од активности узорака из шуме. Тако се нешто и могло очекивати пошто крошње дрвећа представљају препреку за несметану депозицију  ${}^7\text{Be}$ . Остаје само да се процени колики би могао бити утицај крошњи дрвећа на депозицију  ${}^7\text{Be}$ .

Претпоставимо да на број атома  ${}^7\text{Be}$  у узорку утичу само два фактора, депозиција и радиоактивни распад. У поједностављеном моделу можемо претпоставити да постоје два различита режима депозиције, летњи и зимски и да су временске границе ових периода баш у моменту када су узорци узимани. У летњем периоду је виша депозиција  $D$  док је у зимском периоду она нешто нижа о износи  $d$ . Временска промена активности  ${}^7\text{Be}$  у маховинама у летњем периоду се може изразити као

$$A(t) = A_0(t)e^{-\lambda t} + D(1 - e^{-\lambda t}) \quad (1)$$

где је са  $A_0(t)$  означена активност маховина мерена на самом почетку летњег периода. У нашем случају је то активност коју смо добили мерењем у априлу. Уколико за вредност  $A(t)$  узмемо резултате мерења из новембра, а  $t$  је време између два узорковања, из горње једначине се може израчунати депозиција  $D$  за сваку локацију. Усредњавањем ових вредности се добија да би средња депозиција по јединици масе маховина износила 1040 Вq за отворене локације док би за узорке из шуме средња депозиција износила 507 Вq. Евидентно је да се количина  ${}^7\text{Be}$  која стигне у летњем периоду до маховина на отвореној локацији и оних испод крошњи дрвећа разликује за фактор 2. Имајући у виду да је активност  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  једнака у маховинама на обе стране, може се претпоставити да лишће само по себи не врши трајну апсорпцију аеросола. Они након одређеног периода проведеног на лишћу путем падавина бивају сапрани и коначно транспортовани до маховина. То значи да је једини механизам путем кога се може објаснити недостатак  ${}^7\text{Be}$  у маховинама из шуме у ствари фички распад током периода задржавања на лишћу. На основу чињенице да се на крају летњег периода у узорцима маховина испод дрвећа налази дупло мања активност  ${}^7\text{Be}$  него што је то случај на отвореном, може се проценити и неко средње време задржавања аеросола на лишћу. Добија се да је количина  ${}^7\text{Be}$  преполовљена услед распада, што би требало да води ка закључку да је средње време задржавања овог радионуклида на лишћу око 50 дана.

#### 4. Закључак

Мерењем активности  ${}^7\text{Be}$  и  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  у узорцима маховина узетим у пролеће па затим и у касну јесен, на локацијама где су маховине биле изложене несметаној депозицији као и у шуми испод крошњи дрвећа, добијено је неколико веома занимљивих резултата. Примећено је да је однос активности  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  у узорцима са отвореног терена и из шуме једнак јединици, у оквиру експерименталне грешке. Исти такав однос се добија када се пореде узорци са једне врсте локације (отворено или шума) у јесен и пролеће. Од раније је било познато да се депозиције  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  не разликује много током године. Но чињеница да је активност  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  једнака у узорцима који су узети са отвореног простора и шуме говори у прилог претпоставке да се након извесног периода задржавања на лишћу



комплетан садржај аеросола путем падавина транспортује до маховина. С обзиром да период полураспада  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  износи 20 година, задржавање на лишћу не доводи до смањења укупне активности  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  која доспе до маховина. Са  $^7\text{Be}$  је нешто мало другачија ситуација. С обзиром да је његов период полураспада знатно краћи, задржавање честица аеросола у лишћу доводи до крајње последице да је активност овог радионуклида дупло мања испод дрвећа него што је то на отвореном простору. На основу средње вредности односа активности  $^7\text{Be}$  на отвореном простору и испод дрвећа добијена је процена да је средње време задржавања аеросола у лишћу око 50 дана. За то време се активност  $^7\text{Be}$  преполови тако да се коначно добија двоструко мања средња активност овог радионуклида у маховинама из шуме у односу на маховине узете на отвореном простору. Добијени резултати показују да се путем биомонитора може грубо проценити утицај вегетације на депоновање радионуклида  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  и  $^7\text{Be}$  до нивоа земљишта. Ови би се резултати могли поврдити мерењима активности  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  и  $^7\text{Be}$  у аеросолима или таложним колекторима који би се поставили на адекватне локације на отвореном простору или испод крошњи дрвећа.

## 5. Литература

- [1] A.C. Carvalho, M. Reis, L. Silva and M.J. Madruga. A decade of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  activity in surface aerosols measured over the Western Iberian Peninsula. *Atmosph. Environ.* 67 (2013) 193 - 202.
- [2] J.M. Kaste, S.A. Norton and C. Hess. Environmental chemistry of  $^7\text{Be}$ . *Rev. Mineral. Geochem.* 50 (2002) 271 - 289.
- [3] A. Kulan, A. Aldahan, G. Possnert and I. Vintersved I. Distribution of  $^7\text{Be}$  in surface air of Europe. *Atmosph. Environ.* 40 (2006) 3855–3868.
- [4] P.J. Wallbrink and A.S. Murray. Fallout of  $^7\text{Be}$  in South Eastern Australia. *J. Environ. Radioact.* 25 (1994) 213 - 228.
- [5] A. Buse, D. Norris, H. Harmens, H. Bölker, P. Ashenden, G. Mills. Heavy metals in European mosses: 2000/2001 survey. *UNECE ICP Vegetation.* (2003)
- [6] M. Krmar, D. Radnović, D.T. Mihailović, B. Lalić, J. Slivka and I. Bikit. Temporal variations of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in moss samples over 14 month period. *Appl. Radiat. Isot.* 67 (2009) 1139–1147.

## INFLUENCE OF VEGETATION ON ATMOSPHERIC DEPOSITION OF AIRBORNE RADIONUCLIDES

**Miodrag KRMAR<sup>1</sup>, Dragan RADNOVIĆ<sup>2</sup>, Jan HANSMAN<sup>1</sup>,  
Nataša TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Jovana NIKOLOV<sup>1</sup> and Nikola JOVANČEVIĆ<sup>1</sup>**

*1) Physics Department, Faculty of Science, Novi Sad, Serbia, krmar@df.uns.ac.rs*

*2) Biology Department, Faculty of Science, Novi Sad, Serbia,*

*dragan.radnovic@dbe.uns.ac.rs*

### ABSTRACT

Activity of airborne radionuclides  $^7\text{Be}$  и  $^{210}\text{Pb}_{\text{us}}$  (unsupported  $^{210}\text{Pb}$ ) was measured in moss samples taken on ten different locations and seventeen sampling points. The objective was to estimate influence of the forest vegetation on atmospheric deposition of airborne radionuclides attached to aerosols. Mosses were collected at two close sampling points (not more than couple of hundred meters between them) taking care that one of them was from open sky area, not covered by high vegetation and another one sampling point was in the forest under crowns of trees. Samples were taken in the spring season, right before trees come into leaf and in the fall season, right before trees drop their leaves. Measurements indicate that leaves do not capture airborne radionuclides permanently. As a result of this measurement it is obtained estimation how long aerosols and  $^7\text{Be}$  stay on the leaves before eventually precipitation washes it out to the ground mosses.

## PROVERA MATEMATIČKIH MODELA ZA ATMOSFERSKU DISPERZIJU U OKVIRU IAEA PROGRAMA MODARIA

**Zoran GRŠIĆ<sup>1</sup>, Dragan DRAMLIĆ<sup>2</sup>, Stefan DRAMLIĆ<sup>2</sup>, Dalibor ABUTINA<sup>1</sup>,  
DušanNIKEZIĆ<sup>3</sup>, Slavko DIMOVIĆ<sup>3</sup>, Dušan JOKSIMOVIĆ<sup>4</sup>**

1) JP Nuklearni objekti Srbije, Beograd, Srbija, [grsa@vinca.rs](mailto:grsa@vinca.rs)

2) Institut za fiziku, Univerzitet u Beogradu, Zemun-Beograd, Srbija,  
[dramlic@ipb.ac.rs](mailto:dramlic@ipb.ac.rs)

3) Institut za nuklearne nauke Vinča, Univerzitet u Beogradu, Vinca-Beograd,  
Srbija, [dusan@vinca.rs](mailto:dusan@vinca.rs)

4) Kriminalističko policijska akademija, Univerzitet u Beogradu, Zemun-  
Beograd, Srbija, [djoksimovic@gmail.com](mailto:djoksimovic@gmail.com)

### SADRŽAJ

*U radu su prikazani preliminarni rezultati provere matematičkih modela atmosferske disperzije, koji se operativno koriste u JP Nuklearni objekti Srbije. Matematički modeli pod radnim nazivom NFS\_Vinca (rutinska i akcidentalna verzija) prijavljeni su na listu matematičkih modela radne grupe WG2, programa MODARIA (IAEA), radi provere na eksperimentalnim podacima sa traserima. Obe verzije modela, kojom se simuliraju i požari kao jedan tip scenarija akcidenta na nuklearnim objektima, proveravane su sa ulaznim podacima o emisiji SO<sub>2</sub> kao traserom iz termoelektrane Šoštanj u Sloveniji. Rezultati poređenja sa eksperimentalnim merenjima, dobijeni sa obe verzije modela, Gausov pravolinijski model dimne pejanice za kontinualnu emisiju i "puff" model gausovskog tipa, značajno zavise od izbora niza parametara, efektivne visine izvora, standardnih devijacija  $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$  ulaznih meteoroloških podataka, ... Efektivna visina izvora, visina ose perjanice ili visina centra puffa iznad tla, modelirana je sa tri modula za efektivnu visinu Briggs, Brummage i Holland. Najbolje slaganje sa eksperimentalnim merenjima dobijeno je Brummageovim modelom za efektivnu visinu (Concawe) sa desetominutnim meteorološkim podacima.*

### 1.Uvod

Pre puštanja u rad nuklearnog objekta, u fazi izbora lokacije, projektovanja i izgradnje objekta i planiranja i projektovanja kontra mera u akcidentalnim situacijama, značajni su klimatološki meteorološki podaci sa lokacije, iskazani statistikama (učestanost pojava, srednje vrednosti, ekstremne vrednosti itd.).

Neprekidna meteorološka merenja u okolini nuklearnih objekata uspostavljaju se posle izbora lokacije za njihovu izgradnju, u toku gradnje, eksploatacije i dekomisije nuklearnog objekta. Program meteoroloških merenja planira se prema zahtevima matematičkih modela koji se koriste za brze procene rasprostiranja radioaktivnosti kroz granični sloj atmosfere u rutinskim i naročito u akcidentalnim situacijama [1]. Pored zahteva matematičkih modela za ulaznim meteorološkim podacima, na planiranje programa meteoroloških merenja na lokaciji nuklearnog objekta, značajno utiče kompleksnost terena na kome se nalazi lokacija nuklearnog objekta. Na kompleksnim terenima planira se uspostavljanje više "on line" povezanih automatskih meteoroloških stanica, koje podatke izmerene u realnom vremenu prosleđuju službi za kontrolu okoline nuklearnog objekta. Na osnovu ovih podataka, podataka o fizičkim karakteristikama izvora, jačini izvora (brzini emisije), karakteristika reljefa i tla i fizičko hemijskih karakteristika emitovane supstance, matematički model u praktično realnom

vremenu daje sliku rasprostiranja na ekranima kontrolne sobe i na ekranima računara korisnika različitih prioriteta. U JP Nuklearni objekti Srbije operativno se koriste matematički modeli koji ispunjavaju navedene uslove, sa modulima za doze koje bi primio hipotetički (ili realan) stanovnik u okolini nuklearnih objekata u Vinči i okolnim naseljima.

U INN Vinča, posle akcidenta na RB 1958., a pre puštanja u rad nuklearnog reaktora RA, uspostavljena su meteorološka merenja unovembru 1959.g., kao uslov za puštanje u rad reaktora RA. " Institut je bio obavezan da, upravo zbog potreba kontrole radioaktivnosti okoline, izgradi meteorološku stanicu na teritoriji Instituta i oformi meteorološku službu, što je bio jedan od uslova da od nadležnih državnih organa bude odobreno puštanje u rad reaktora RA u pogon." [2]. Reaktor RA pušten je u pogon u decembru 1959.g. Do 1984.g., u periodičnim izveštajima, na osnovu meteoroloških merenja na klasičnim meteorološkim stanicama u INN Vinča i na meteorološkoj stanici Usek, standardno su prikazivane uglavnom detaljne statistike meteoroloških podataka. Od 1984. god. u INN Vinča, za izradu godišnjih izveštaja sigurnosti reaktora RA korišćeni su matematički modeli, koji su razvijeni u odeljenju za zaštitu okoline Laboratorije za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta Vinča. Matematički modeli su razvijeni prema preporukama USNRC [3], IAEA[4],... Između matematičkih modela raznih kompleksnosti opredelili smo se za Gausov pravolinijski model dimne perjanice i "multi puff" model, modele za dugotrajne, kratkotrajne i trenutne emisije radioklida u granični sloj atmosfere, imajući u vidu;

- njihovu skromnu potrebu za ulaznim meteorološkim podacima
- ograničenja programa meteoroloških merenja u INN Vinča, koji je uspostavljen 1959. da bi reaktor RA mogao da bude pušten u rad
- da su to u praksi u svetu najviše korišćeni modeli atmosferske disperzije
- da ovi modeli prihvatljivo zoniraju okolinu izvora (dimenzije i geometrija zone uticaja nuklearnog objekta, maksimalne relativne ili apsolutne koncentracije, njihovo rastojanje u odnosu na izvor)
- da su pogodni za primene u realnom vremenu
- da su uz oprezno korišćenje primenjivi i na umereno kompleksnim terenima.

Značajan datum sa stanovišta primene matematičkih modela u realnom vremenu u INN Vinča bio je april 1997. god, kada je Institut za fiziku iz Zemuna pustio u rad svoju automatsku meteorološku stanicu, na meteorološkom stubu visine 37m u INN Vinča. Sastavni deo automatske meteorološke stanice bio je i matematički model atmosferske disperzije za rutinsku i akcidentalnu emisiju radioaktivnosti sa modulima za efektivnu visinu izvora, brzinu vetra na fizičkoj i efektivnoj visini izvora, za visinu ose perjanice iznad tla i visinu centra "puff-a" iznad tla, za suhu i mokru depoziciju, za resuspenziju sa tla deponovanih radionuklida, modulom za koncentraciju aktivnosti na mreži računskih tačaka i modulom za doze. Automatska stanica, grafički korisnički interfejs i matematički model atmosferske disperzije čine sistem koji u realnom vremenu daje sliku rasprostiranja radioaktivnosti iz tačkastog, površinskog ili zapreminskog izvora nuklearnog objekta.

Iako su matematički modeli, tj. jednačine kojima se opisuje atmosferska difuzija, pre nego što su dospeli na listu preporučenih modela imali eksperimentalne provere, zbog mogućih grešaka nastalih prilikom pisanja kompjuterskih kodova kao i zbog načina uzimanja u obzir procesa u graničnom sloju atmosfere opisanih u modulima, kompjuterski kodovi se eksperimentalno proveravaju.

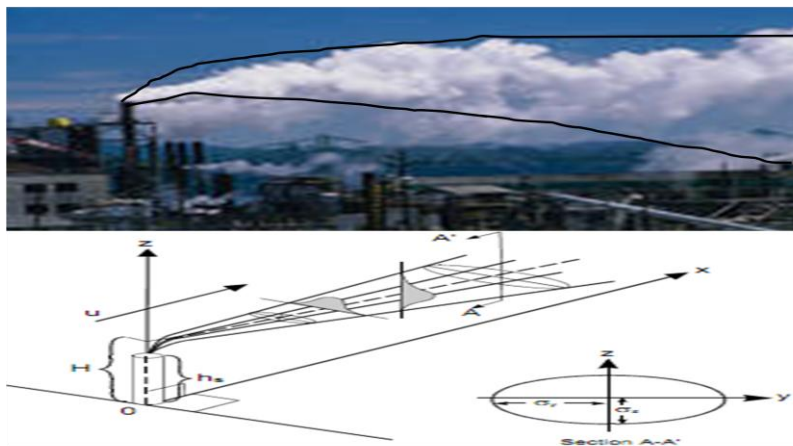
IAEA JE 2012. g. pokrenula program MODARIA Modelling and Data for Radiological Impact Assessments [5], a jedan od ciljeva programa je *testiranje i upoređivanje rezultata matematičkih modela*. Matematički modeli pod radnim nazivom NFS\_Vinca (rutinska i akcidentalna verzija) prijavljeni su na prvoj konferenciji 2012 na listu matematičkih modela programa MODARIA, radi provere na eksperimentalnim podacima sa traserima.

## 2. Matematički model NFS\_Vinca

Matematički model NFS\_Vinca ima dve verzije, za rutinsku i za akcidentalnu emisiju NFS\_Vinca\_R i NFS\_Vinca\_A, respektivno.

Matematički model NFS\_Vinca\_R atmosferske disperzije za kontinualnu emisiju radioaktivnosti u granični sloj (rutinska emisija, akcidentalna emisija u toku požara...), zasniva se na Gausovoj jednačini za visoki tačkasti izvor tzv. "plume" koncept:

$$C(x, y, z, H) = \frac{Q}{2\pi\sigma_y\sigma_z u} \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{y^2}{\sigma_y^2}\right) \left\{ \exp\left[-\frac{1}{2} \frac{(z-H)^2}{\sigma_z^2}\right] + \exp\left[-\frac{1}{2} \frac{(z+H)^2}{\sigma_z^2}\right] \right\} \quad (1)$$



Slika 1. Grafiki prikaz "plume" koncepta

Trenutna emisija (eksplozija), akcidentalni model NFS\_Vinca\_A, tzv. "puff" koncept:

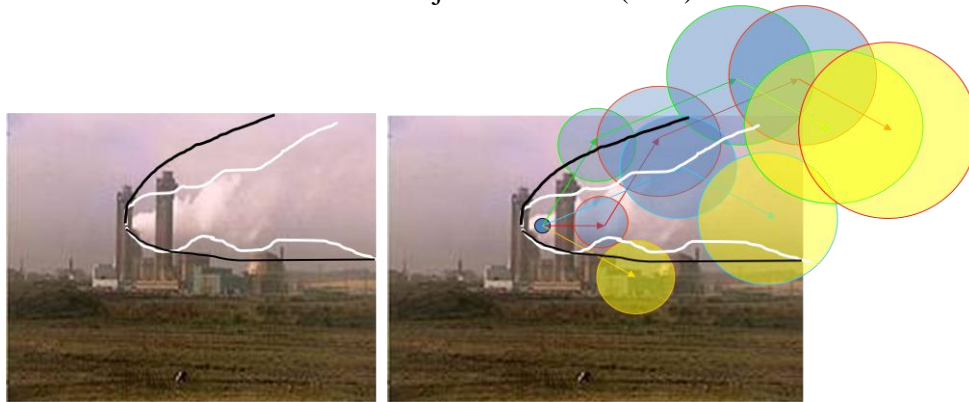
$$C(x, y, z, t) = \frac{q}{\sqrt{(2\pi)^3 \sigma_x \sigma_y \sigma_z}} \exp\left(-\left[\frac{(x-ut)^2}{2\sigma_x^2} + \frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right]\right) \times \left\{ \exp\left[-\frac{(z-H)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[-\frac{(z+H)^2}{2\sigma_z^2}\right] \right\} \quad (2)$$

Akcidentalna verzija modela, može se koristiti i za modeliranje disperzije za kontinualne emisije u rutinskom radu ili u akcidentalnim situacijama kada je kontinualna emisija posledica požara. Kontinualna emisija tada se simulira serijom sukcesivnih diskretnih zapremina "puffova".

Promenljive u jednačinama (1) i (2) imaju uobičajeno značenje:

- $Q$  jačina izvora (kontinualna emisija aktivnosti) ( $Bq s^{-1}$ )
- $q$  količina aktivnosti po "puff-u" (Bq)

$y$	bočno rastojanje računске tačke od ose perjanice u xy ravni (m)
$\sigma_x \sigma_y \sigma_z$	standardne devijacije (m)
$H$	efektivna visina izvora (m)
$X$	rastojanje od izvora niz vetar (m)
$u$	brzina vetra na efektivnoj visini izvora ( $\text{ms}^{-1}$ )



**Slika 2. Grafički prikaz "puff" koncepta**

Prema prikazanim formulama koncentracija pri tlu  $C(x,z,0)$  obrnuto je proporcionalna kvadratu efektivne visine izvora  $H$ , zbog čega se poklanja velika pažnja projektovanju visine dimnjaka i ostalim parametrima koji utiču na njegovu efektivnu visinu, a samim tim i zaštiti okoline izvora. Postoji veliki broj formula, modela za računanje efektivne visine dimnjaka teorijskih i empirijskih, JP NOS se opredelio za tri modela čiji su autori Briggs, Brummage sa više autora i Holland [6], uzimajući u obzir i skromne zahteve modela za ulaznim podacima.

Parametri  $\sigma_x$ ,  $\sigma_y$ ,  $\sigma_z$  računati su kao Briggsove (1974) sigme u funkciji od rastojanja od izvora niz vetar i atmosferske stabilnosti za ruralnu oblast [7]:

**Tabela 1. Disperzioni parametri  $\sigma_y$ ,  $\sigma_z$  za ruralne terene  $100\text{m} \leq x \leq 10000\text{m}$  [**

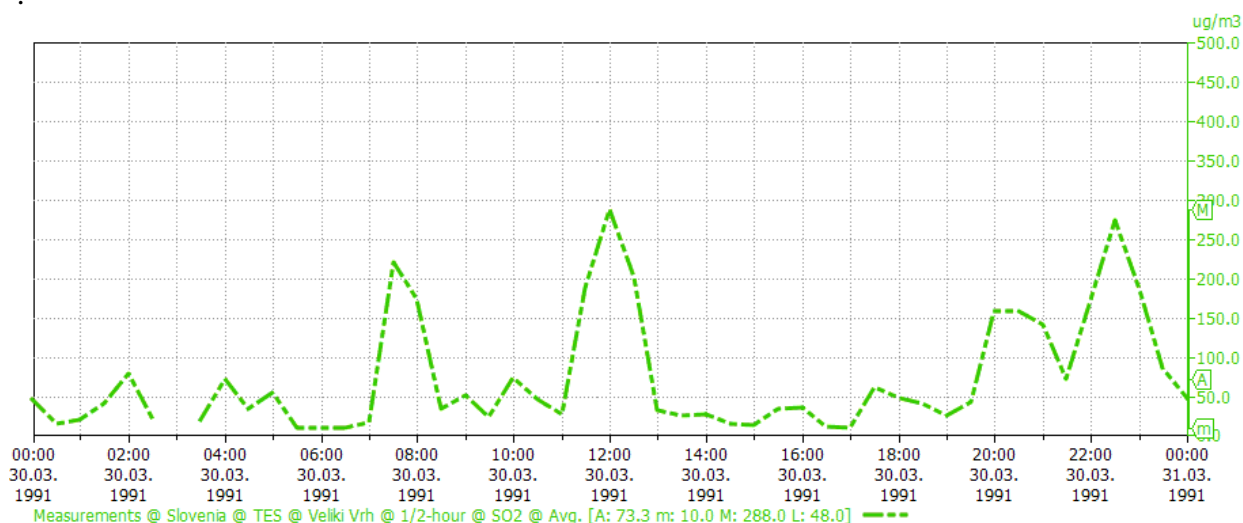
Pasquillova stabilnosti	klasa	$\sigma_y(\text{m})$	$\sigma_z(\text{m})$
A		$0.22x(1+0.0004x)^{-0.5}$	$0.20x$
B		$0.16x(1+0.0004x)^{-0.5}$	$0.12x$
C		$0.11x(1+0.0004x)^{-0.5}$	$0.08x(1+0.0002x)^{-0.5}$
D		$0.08x(1+0.0004x)^{-0.5}$	$0.06x(1+0.0015x)^{-0.5}$
E		$0.06x(1+0.0004x)^{-0.5}$	$0.03x(1+0.0003x)^{-1}$
F		$0.04x(1+0.0004x)^{-0.5}$	$0.016x(1+0.0003x)^{-1}$

### 3. Eksperimentalna provera modela NFS\_Vinca\_R i NFS\_Vinca\_A

Na sajtu slovenačke firme MEIS [8] nalaze se ulazni podaci za proveru matematičkih modela za kontinualnu emisiju polutanata u granični sloj atmosfere na kompleksnim terenima. Ponuđena su dva seta ulaznih podataka. Meteorološki podaci i podaci o emisiji SO<sub>2</sub> za datum 30.3.1991., sa izmerenim izraženim pikom koncentracija SO<sub>2</sub> u 12h, u kontrolnoj tački Veliki Vrh, udaljenoj oko 2500 m od dimnjaka visine 100m i 48 časovni set meteoroloških podataka i podataka o kontinualnoj emisiji SO<sub>2</sub> iz dva dimnjaka, visine 100m i 280m i koncentracije SO<sub>2</sub> u šest kontrolnih tačaka, za dva

datuma 1. i 2.4.1991. Meteorološki podaci su mereni automatskim meteorološkim stanicama sa senzorima postavljenim na jarbolu visine 10m u kontrolnim tačkama, gde se merila i koncentracija trasera SO<sub>2</sub>, na svakih 30min. Na lokaciji izvora, Termoelektrana Šoštanj podaci su prikupljani akustičkim radarom (SODAR) do raspoložive visine 744 m iznad tla, a jačina izvora automatski je merena na svakih 30min.

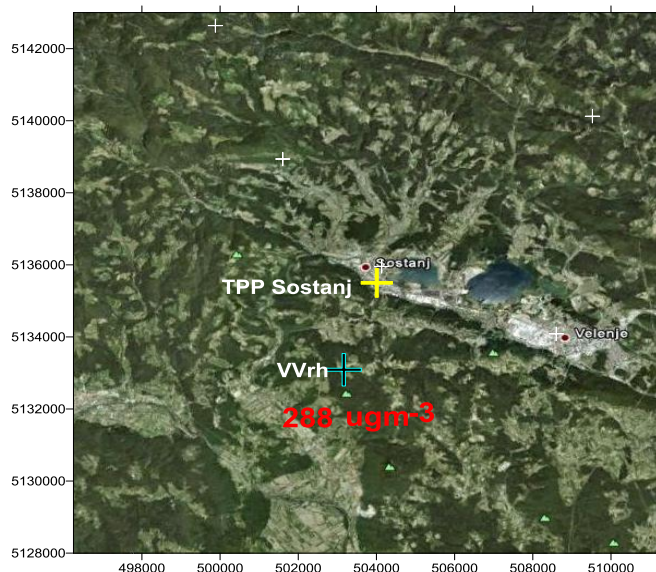
Izraženi pik koncentracija SO<sub>2</sub> u 12h na kontrolnoj tački Veliki Vrh od 288 µg<sup>-3</sup> bio je interesantan za proveru modela za kontinualnu emisiju jer je tog datuma, zbog remonta bio aktivan samo jedan izvor visine 100m u TE Šoštanj koji je emitovao 1.2th<sup>-1</sup> SO<sub>2</sub>, a preovlađujući pravac vetra na visini izvora (meren akustičkim radarom) imao je smer duvanja u 11h30min i 12h00min ka kontrolnoj tački Veliki Vrh brzinom od oko 4.5 ms<sup>-1</sup>.



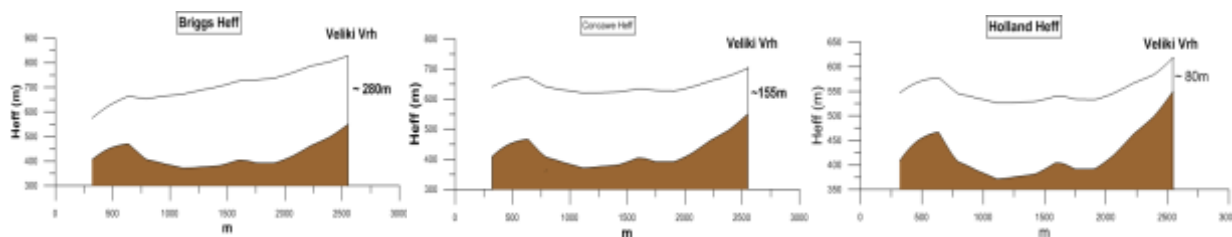
**Slika 3. Izrženi pik koncentracija SO<sub>2</sub> u 12h u tački Veliki Vrh**

Računski domen je imao dimenzije 15km X 15km i bio je pokriven mrežom računskih tačaka sa gridom 100m.

Koncentracija pri tlu niz vetar, kao što je rečeno opada sa efektivnom visinom izvora, dimnjaka. Efektivna visina dimnjaka je zbir njegove fizičke visine i podizanja perjanice usled mehaničkog i termičkog potiska. Modeli NFS\_Vinca testirani su sa tri predložena modela za podizanje efluenta iz dimnjaka čiji su autori Briggs, Brummage i više autora i Holland [6]. Modeli u literaturi nose imena autora osim modela Brumagea i više autora čiji je naziv Concawe.



**Slika 4. Računski domen, lokacije termoelektrane Šoštanj i kontrolne tačke Veliki Vrh**



**Slika 5. Visina ose perjanice/centra puffa iznad tla (Briggs, Brummage, Holland)**

Uradjena su tri eksperimenta sa meteorološkim podacima usrednjenim na 1 minut, 10 minuta i na 30minuta. Izbor meteorološkog seta zavisi od prostorno vremenskog razmera procesa koji se modelira, koji u ovom slučaju određuju rastojanje kontrolne tačke Veliki Vrh od izvora kao i brzina vetra na efektivnoj visini izvora. Kada je puff model u pitanju treba voditi računa i o vremenu formiranja puffova da bi došlo do njihovog preklapanja niz vetar od izvora. Za proračun disperzije u modelu su direktno učitavani podaci o jačini izvora  $Q$  ( $th^{-1}$ ) i meteorološki podaci mereni akustčkim radarom na visini dimnjaka (104m), brzina vetra  $vv$  ( $ms^{-1}$ ), pravac vetra  $dd$  ( $^{\circ}$ ) i temperatura ambijentalnog vazduha  $T$  ( $^{\circ}C$ ), Tabela 2.

Urađeno je više matematičkih eksperimenata sa modelom za kontinualnu emisiju i sa modelom za akcidentalnu emisiju, kombinacijama teorija o efektivnoj visini izvora i minutnih, desetominutnih i polučasovnih meteoroloških podataka.

Modelom za kontinualnu emisiju, "plume" koncept, dobijena je vrednost koncentracije trasera u posmaranom terminu od  $256.9 \mu g m^{-3}$  sl. 6., koje se najbolje slažu sa izmerenim vrednostima koncentracije  $SO_2$  u kontrolnoj tački Veliki Vrh od  $288 \mu g m^{-3}$ , pri čemu je podizanje dimne perjanice računato sa Concawe modelom i kada su korišćeni deseto minutni meteorološki podaci. Briggsov model daje velike vrednosti ( $\sim 280m$ ), a Hollandov model male vrednosti za visinu ose perjanice iznad kontrolne tačke Veliki Vrh ( $\sim 80m$ ) u posmatranom terminu, sl. 5. što za direktnu posledicu ima prikazane vrednosti koncentracija trasera u kontrolnoj tački Tabela 3.



**Tabela 2. Meteorološki podaci brzina vetra vv, pravac vetra dd i jačina izvora Q na fizičkoj visini dimnjaka**

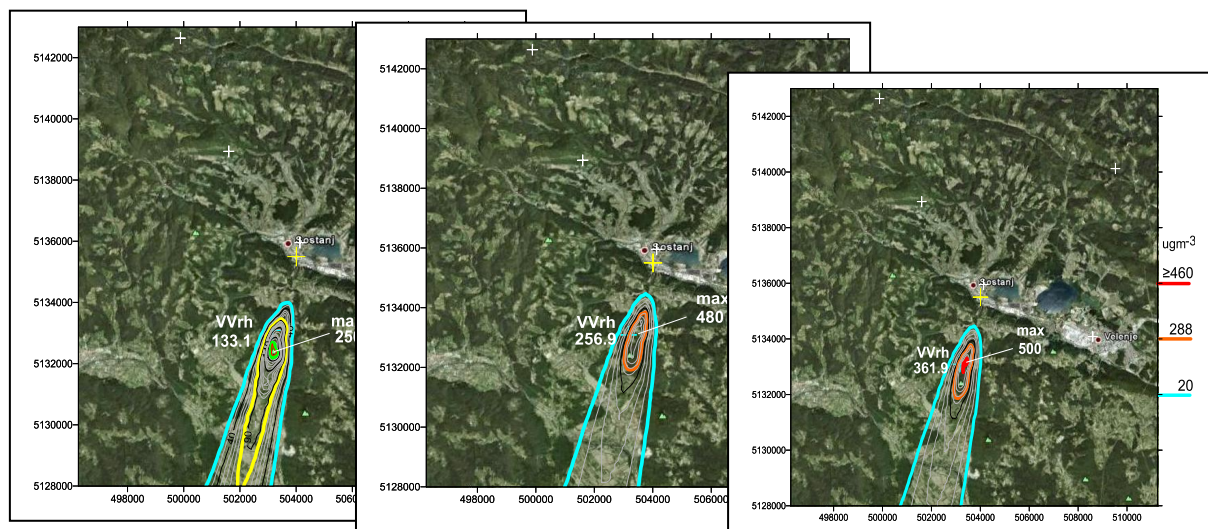
			T (104m)				vv (104m)		dd Vrh (104m)	Q	
30	3	1991	<u>11 46</u>	2.51	4.50	138.86	64.79	4.56	3.54	11.80	1.611
30	3	1991	<u>11 47</u>	2.51	4.50	135.37	65.07	4.57	3.53	11.60	1.611
30	3	1991	<u>11 48</u>	2.52	4.50	131.88	65.36	4.58	3.52	11.40	1.612
30	3	1991	<u>11 49</u>	2.53	4.50	128.39	65.65	4.59	3.51	11.20	1.613
30	3	1991	<u>11 50</u>	2.53	4.50	124.90	65.93	4.60	3.50	11.00	1.613
30	3	1991	<u>11 51</u>	2.54	4.50	121.41	66.22	4.61	3.49	10.80	1.614
30	3	1991	<u>11 52</u>	2.55	4.50	117.92	66.51	4.62	3.48	10.60	1.615
30	3	1991	<u>11 53</u>	2.55	4.50	114.43	66.79	4.63	3.47	10.40	1.615
30	3	1991	<u>11 54</u>	2.56	4.50	110.94	67.08	4.64	3.46	10.20	1.616
30	3	1991	<u>11 55</u>	2.57	4.50	107.45	67.37	4.65	3.45	10.00	1.617
30	3	1991	<u>11 56</u>	2.57	4.50	103.96	67.65	4.66	3.44	9.80	1.617
30	3	1991	<u>11 57</u>	2.58	4.50	100.47	67.94	4.67	3.43	9.60	1.618
30	3	1991	<u>11 58</u>	2.59	4.50	96.98	68.23	4.68	3.42	9.40	1.619
30	3	1991	<u>11 59</u>	2.59	4.50	93.49	68.51	4.69	3.41	9.20	1.619
30	3	1991	<u>12 0</u>	2.60	4.50	90.00	68.80	4.70	3.40	9.00	1.620

**Tabela 3. Koncentracije SO2 u kontrolnoj tački Veliki Vrh, "plume" koncept**

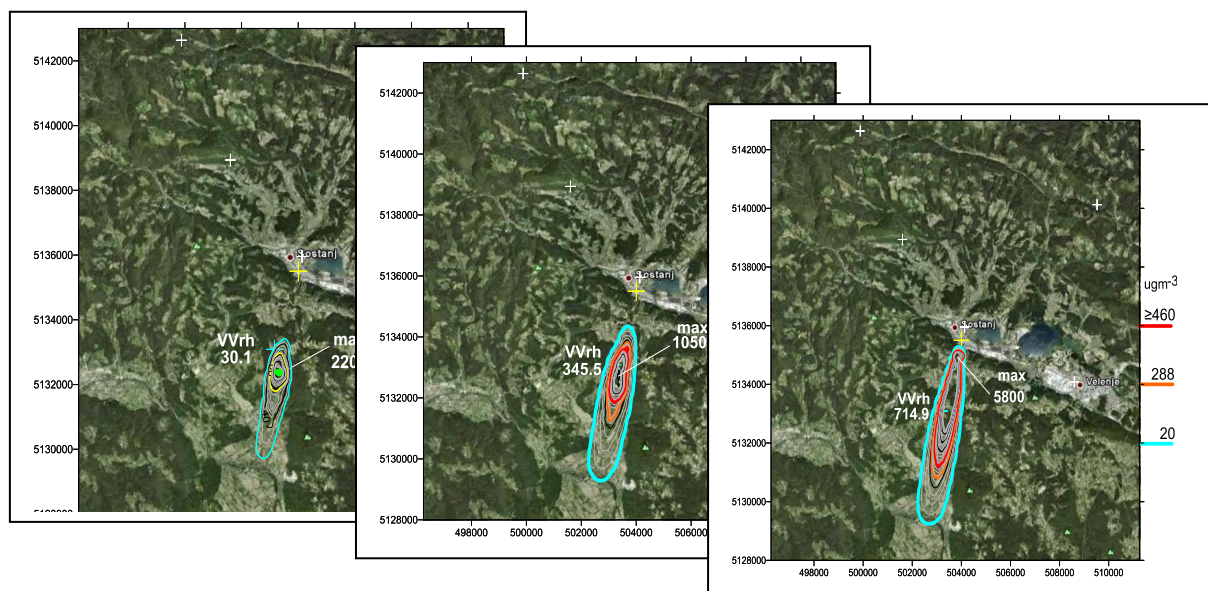
Model	VVrh ( $\mu\text{gm}^{-3}$ )	$\Delta t$
Briggs	133.1	30min
Concawe	256.9	10 min
Holland	361.7	10 min

Akcidentalni model kojim je simulirana kontinualna emisija, tako što je emitovana serija diskretnih zapremina trasera, puffova, na svaki minut u periodu od 11:30 do 12:00 u kome su merene koncentracije SO2, koristio je iste module za proračun efektivne visine izvora i visinu ose perjanice iznad kontrolne tačke kao u prethodnom slučaju. Akcidentalni model je puštan samo sa minutnim meteorološkim podacima, da bi zbog jačine vetra bio ispunjen zahtev za preklapanem puffova. Sa puff modelom dobijeno je ponovo najbolje slaganje sa izmerenom koncentracijom od  $288 \mu\text{gm}^{-3}$ , kada je korišćen model Concawe za računanje efektivne visine izvora i kada je dobijena koncentracija od  $345.5 \mu\text{gm}^{-3}$  sl.7., mada lošije u odnosu na model za kontinualnu emisiju kada je dobijena vrednost koncentracije od  $256.9 \mu\text{gm}^{-3}$ , Tabela 4.

Akcidentalni model i model za kontinualnu emisiju koriste iste setove za parametre  $\sigma_x$ ,  $\sigma_y$ ,  $\sigma_z$ , mada je poznato da su ovi parametri za dva modela različiti. Jedan od pravaca istraživanja, da bi se popravili rezultati simulacije disperzije za kontinualnu emisiju, akcidentalnim modelom, je korišćenje analitičkih formula za navedene sigma parametre, ali i bolja meteorološka podloga za ovu vrstu analiza, naročito imajući u vidu da se u slučaju TE Šoštanj radi o kompleksnom terenu.



Slika 6. Polje koncentracija SO<sub>2</sub> (Briggs, Concawe, Holland), "plume" koncept



Slika 7. Polje koncentracija SO<sub>2</sub> (Briggs, Concawe, Holland), "puff" koncept

Tabela 4. Koncentracije SO<sub>2</sub> u kontrolnoj tački Veliki Vrh, "puff" koncept

Model	VVrh (µg <sup>m</sup> - <sup>3</sup> )	Δt
Briggs	30.1	1min
Concawe	345.5	1 min
Holland	741.9	1min

## 5. Napomena

U radu su prikazani preliminarni rezultati provere matematičkih modela za atmosfersku disperziju NFS\_Vinca, u okviru programa MODARIA. Dve su stvari u ovom momentu važne, da su se matematički modeli razvijeni u Vinči našli na listi modela IAEA pored

modela iz mnogo razvijenijih zemalja i drugo da naši rezultati relativno dobro simuliraju vrednosti dobijene eksperimentalnim merenjima.

## 6. Reference

- [1] S.E.Gryning. Meteorological measurement programs for air pollution studies, *Riso-M-2259*. (1980)
- [2] Pola veka Instituta Vinča (1948-1998), Institut "Vinča", Beograd (2000)  
ISBN 86-7306-044-3
- [3] USNRC, Regulatory Guide 1.111, Methods for estimating atmospheric transport and dispersion of gaseous effluents in routine releases from light-water-cooled reactors, USNRS office of standards development, Washington, D.C, (1976)
- [4] IAEA Safety Series, Atmospheric Dispersion in Nuclear Power Plant Siting, No.50-SG-S3, Vienna, 1980.
- [5] <http://www-ns.iaea.org/projects/modaria>
- [6] J.E.Carson and H. Moses. The validity of several plume rise formulas. *J. of the Air Pollution Control Association*, 19 (1969) 862-866.
- [7] G.A. Briggs. Diffusion Estimation for Small Emissions, in Environmental Research Laboratories, Air Resources Atmosphere Turbulence and Diffusion Laboratory 1973 Annual Report, USAEC Report ATDL-106, National Oceanic and Atmospheric Administration, December 1974
- [8] <http://www.harmo.org/conferences/Proceedings/Varna/publishedSections/PPT/H16-075-Mlakar-pr.pdf>

## VERIFICATION MATHEMATICAL MODELS FOR ATMOSPHERIC DISPERSION UNDER IAEA PROGRAMME MODARIA

**Zoran GRŠIĆ<sup>1</sup>, Dragan DRAMLIĆ<sup>2</sup>, Stefan DRAMLIĆ<sup>2</sup>, Dalibor ABUTINA<sup>1</sup>,  
Dušan NIKEZIĆ<sup>3</sup>, Slavko DIMOVIĆ<sup>3</sup>, Dušan JOKSIMOVIĆ<sup>4</sup>**

1) Nuclear Facilities of Serbia, Belgrade, Serbia, [grsa@vinca.rs](mailto:grsa@vinca.rs)

2) Institute of Physics, University of Belgrade, Zemun-Belgrade, Serbia,

[dramlic@ipb.ac.rs](mailto:dramlic@ipb.ac.rs)

3) Institute of Nuclear Sciences Vinca, University of Belgrade, Vinca-Belgrade, Serbia,

[dusan@vinca.rs](mailto:dusan@vinca.rs)

4) Academy of Criminalistic and Police Studies, University of Belgrade, Belgrade,  
Serbia,

[djoksimovic@gmail.com](mailto:djoksimovic@gmail.com)

### Abstract

This paper presents the preliminary results of the tests of mathematical models of atmospheric dispersion, which are operationally used in PC Nuclear Facilities of Serbia. Mathematical models codenamed NFS\_Vinca (routine and accidental version), have been reported in the list of mathematical models of the working group WG2, program MODARIA (IAEA), to be validated on the experimental data with a tracer. Both versions of the models, which simulate and fires as one type of accidental scenario on the nuclear facilities, validated on the emission of SO<sub>2</sub>, as a tracer, from the thermal power plant in Slovenia. Results of comparison with experimental measurements obtained with both versions of the model, Gaussian straight line plume model for continuous emission and "puff" model of Gaussian type, significantly depend on the choice of a number of parameters, the effective height of source, standard deviation  $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ , meteorological input data, ... Effective source height, the final height of axis plume or height of puff center above the ground, is modeled with three modules for the effective height based on the Briggs, Brummage and Holland theory. The best agreement with the experimental results were obtained with Brummage model for the effective height (Concawe), using a ten-minute meteorological data.

# РАДИОНУКЛИДИ ТЕРЕСТРИЧНОГ И КОСМОГЕНОГ ПОРЕКЛА У РАЗЛИЧИТИМ УЗОРЦИМА БИЉАКА СА ПОДРУЧЈА КОСОВА И МЕТОХИЈЕ

**Гордана МИЛИЋ, Радмила ТРАЈКОВИЋ, Љиљана ГУЛАН, Биљана  
ВУЧКОВИЋ, Јелена ЖИВКОВИЋ РАДОВАНОВИЋ и Душица РИСТИЋ**

*Природно-математички факултет, Универзитет у Приштини, 38220  
Косовска Митровица, Србија [gmgordanamilic@gmail.com](mailto:gmgordanamilic@gmail.com)*

## САДРЖАЈ

*Специфичне активности радионуклида  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^7\text{Be}$  мерене су у различитим узорцима биљака сакупљених у урбаним срединама Централног Косова и Метохије. У земљишту са којег су узорковане биљке мерене су специфичне активности  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^7\text{Be}$ . Мерења у свим сувим узорцима урађена су на HPGe детектору коаксијалног типа методом спектрометрије гама зрачења. Израчунати трансфери радионуклида из земљишта у различитим биљним узорцима су у интервалу од 0.3-3.3, 0.04-0.14, 0.07-1.51 и 0.04-2.34 за  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{137}\text{Cs}$ , респективно. Максималне концентрације активности радионуклида  $^7\text{Be}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{232}\text{Th}$  измерене су у маховини и износе 699, 137, 36, 32.8 и 19 Bq/kg, респективно. У блитви се максимално акумулирао  $^{40}\text{K}$  (1290 Bq/kg), а  $^{226}\text{Ra}$  у блитви (<1 Bq/kg) и у бршљану (<1 Bq/kg).*

## 1. Увод

Пренос радионуклида кроз ланац исхране је предмет интензивног истраживања од 60-их година прошлог века. Тестирање нуклеарног оружја и акциденти током мирнодопског коришћења нуклеарне енергије довели су до емисије вештачких радионуклида у околину [1]. Међу физицима продукција најзначајнији индикатор антропогеног загађења атмосфере због дугог периода полураспада (30.05 год.) је  $^{137}\text{Cs}$ . Концентрације  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту су пре свега последица хаварије нуклеарне електране у Чернобилу 1986. године када је дошло до радиоактивне контаминације испуштањем у атмосферу око 1.85 EBq вештачког радиоактивног материјала [2]. Коренов систем биљака лако усваја вештачке радионуклиде што је добар предуслов за цезијум да се укључи у геолошко и биолошко кружење материје. На Косову и Метохији је увећан ризик од излагања јонизујућем зрачењу након НАТО бомбардовања 1999. године када је коришћена и муниција са осиромашеним уранијумом. Уношење осиромашеног уранијума у ланац исхране јесте реална опасност имајући у виду да није познато да су предузете активности за уклањање настале контаминације. Таложње радионуклида на тло и вегетацију представља полазну тачку за њихов пренос у биосферу. Због заинтересованости, а и забринутости становништва Косова и Метохије услед ризика од радиоактивне контаминације праћење нивоа радиоактивности у животној средини је од фундаменталног значаја.

Човек је стално изложен зрачењима и од различитих природних радионуклида, примордијалног и космогеног порекла. Примордијални радионуклиди као и њихови продукти распада (чврсти и гасовити) представљају најзначајнији извор јонизујућег зрачења у животној средини. Доминантно спољашње озрачивање потиче од гама зрачења насталог распадом радионуклида у радиоактивним

низовима  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и од  $^{40}\text{K}$ . Ови радионуклиди доприносе и унутрашњем озрачивању када путем ланаца исхране ингестијом или инхалацијом доспевају у људски организам и на различите органе дејствују алфа, бета честицама и гама зрачењем. Са биолошке тачке гледишта веома је важан елемент калијум, чији је изотоп  $^{40}\text{K}$  заступљен са 140 грама у организму човека масе 70 килограма [3].

Космогена група природних радиоактивних елемената настаје у нуклеарним реакцијама деловањем космичког зрачења, углавном протона  $p^+$  и  $\alpha$ -честица на компоненте гасне смеше у Земљиној атмосфери (у вишим слојевима стратосфере) првенствено на  $\text{N}_2$  и  $\text{O}_2$ . У таквим процесима, бомбардовањем  $^{14}\text{N}$  протонима настаје и радиоактивни  $^7\text{Be}$  који је у овом истраживању мерен у неким узорцима. Време полураспада  $^7\text{Be}$  је 53.22 дана [4].

У оквиру радиолошких истраживања спроведених крајем прошле и у овој деценији на територији Косова и Метохије истраживани су радионуклиди у ваздуху затворених просторија (радон, торон и потомци радона и торона) и радионуклиди у земљишту [5,6,7]. У овом раду су представљене у насумично одабраним биљним културама измерене специфичне активности радионуклида терестричног, космогеног и антропогеног порекла. Мерења су обављена и у узорцима земљишта да би се поред радиоактивне контаминације проценили и механизми акумулације радионуклида у различитим деловима биљних култура.

## 2. Експериментални рад

У раду се износе процене садржаја радионуклида кроз мерења специфичне активности  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^7\text{Be}$  у узорцима биљних култура сакупљених у вртovima у близини кућа у Липљану и Косову Пољу, у којима су раније спроведена мерења радона и торона. Маховина је узоркована у процепу између тротоара и куће у Липљану где се слива кишница, а фомес на живом стаблу шљиве. Узорковани су надземни делови, очишћени од нечистоћа, а затим сушени на собној температури и након тога уситњавани. Припрема узорака и мерења специфичне активности радионуклида обављена су у лабораторији на Институту за медицину рада и радиолошку заштиту "Др. Драгомир Карајовић" Клиничког центра Србије у Београду. Гамаспектрометријска мерења вршена су на три чиста германијумска детектора фирме EG&G "ORTEC". Детектори су повезани са вишеканалним анализатором (8192 канала) истог произвођача и са одговарајућом рачунарском опремом. Енергетска калибрација, као и калибрација ефикасности детектора обавља се помоћу радиоактивног стандарда фирме Amersham [8,9,10]. Време мерења једног узорка је 250000s.

Композитни узорци земљишта направљени су од више узорака земљишта до 20 cm дубине на месту гајења биљака. Узорци земљишта су сушени на  $105\text{ }^{\circ}\text{C}$ , уситњавани и хомогенизовани. Ради успостављања радиоактивне равнотеже припремљени узорци су у херметички затвореним посудама стајали 30 дана после чега је извршено мерење гама активности узорака. Снимање спектра за сваки узорак и за фон је трајало 10800 s. Помоћу програма MAESTRO 32 снимљени спектри су анализирани уз претходно одузимање фона [11].

## 3. Резултати и дискусија

У табелама 1 и 2 наведени су резултати гамаспектрометријске анализе концентрације радионуклида:  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^7\text{Be}$  у узорцима биљака и земљишта и израчунате вредности трансфер фактора. У табели 2

наведени су и односи максималних вредности трансфер фактора у свим узорцима, из обе табеле.

Трансфер је процес којим се прерасподељују радионуклиди из земљишта на коме се развијају (узгајају) до других делова биљака који нису били контаминирани директно. Трансфер фактор (TF) се дефинише као однос концентрације активности датог радионуклида у биљци (Bq/kg) и концентрације активности у земљи (Bq/kg) за сушене узорке биљака и земљишта [12]:

$$TF = \frac{Aktivnost_{biljke}}{Aktivnost_{zemljišta}} \quad (1)$$

**Табела 1. Специфичне активности радионуклида у узорцима биљака и земљишту из Липљана и трансфер фактори**

Радионуклид	<sup>40</sup> K	<sup>232</sup> Th	<sup>238</sup> U	<sup>235</sup> U	<sup>226</sup> Ra	<sup>137</sup> Cs	<sup>7</sup> Be
узорци	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
Першун	520±16	2.0±0.9	< 4.7	< 0.2	< 2.3	0.6±0.2	30±4
Бршљан	638±25	< 3.8	< 28	< 1	< 1.8	< 1	19.7±7.3
Маховина	293±11	19±2	137±70	< 0.6	36±8	32.8±1.1	699±29
Фомес	74±4	< 2	< 18	< 0.6	< 9	1.1±0.3	21.8±8.0
Земљиште	289±5	26.7±1.8		2.5	23.9±1.2	14.0±0.4	
<b>Трансфер фактори</b>							
Першун	1.8	0.075			0.096	0.043	
Бршљан	2.21	0.142			0.075	0.071	
Маховина	1.01	0.71			1.51	2.34	
Фомес	0.26	0.075			0.38	0.079	

**Табела 2. Специфичне активности радионуклида у узорцима биљака и земљишту из Косова Поља и трансфер фактори**

Радионуклид	<sup>40</sup> K	<sup>232</sup> Th	<sup>238</sup> U	<sup>235</sup> U	<sup>226</sup> Ra	<sup>137</sup> Cs	<sup>7</sup> Be
Узорци	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
Першун	369±13	< 1.1	< 6.8	< 0.2	< 3.5	0.8±0.2	38.7±7.2
Целер	748±26	< 2.1	< 11	< 0.4	< 6.7	< 0.5	67.7±9.6
Блитва	1290±43	< 3.1	< 42	< 1	< 12	< 0.8	173±19
Матичњак	460±16	2.7±0.8	< 6.4	< 0.2	< 3.3	0.8±0.2	211±10
Невен	1170±38	< 2.5	< 12	< 0.5	< 8.9	1.5±0.4	90±10
Земљиште	358±6	27.1±2		2.1	27.4±1	10.9±0.4	
<b>Трансфер фактори</b>							
Першун	1.03	0.04			0.13	0.073	
Целер	2.09	0.08			0.25	0.046	
Блитва	3.60	0.11			0.44	0.073	
Матичњак	1.29	0.098			0.12	0.073	
Невен	3.267	0.092			0.33	0.138	
TF <sub>max</sub> /TF <sub>min</sub>	14.2	3.55			20.1	54.4	

Пренос радионуклида из земљишта у биљке зависи од физичких, хемијских и биолошких фактора. Те факторе одређују особине радионуклида, тип биљне културе и карактеристике земљишта [13]. Вредности специфичних активности радионуклида у земљишту на Косову и Метохији (табеле 1 и 2) су мање од просечних вредности специфичних активности природних радионуклида у свету [14]: 32. 45 и 420 Bq kg<sup>-1</sup> за <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th и <sup>40</sup>K, као и цезијума [15].

Резултати мерења у Липљану и Косову Пољу показују да како су остали фактори исти за све радионуклиде у земљишту (нпр. стандардизовани слој до дубине 20 cm), трансфер у биљкама зависи од неколико фактора: физичкохемијских карактеристика радионуклида, биолошких фактора и атмосферских прилика које су највише дошле до изражаја код калијума. Калијум је највише акумулиран у лишћу: највећа концентрација је у блитви (1290 Bq/kg), затим следе невен, целер, док је <sup>40</sup>K најмање акумулиран у фомесу. Трансфер фактор за <sup>40</sup>K већи је од 1.0 код свих поменутих биљних култура, изузев у фомесу, а за <sup>137</sup>Cs и <sup>232</sup>Th су знатно нижи (реда 10<sup>-2</sup>), за радијум 10<sup>-1</sup>. Фомес, који се као паразит развијао на живом стаблу шљиве, показује акумулацију калијума попут воћа, где је стабло посредник у трансферу из тла преко корена. Трансфер фактор за <sup>40</sup>K већи од 1.0 добијен је и у истраживањима других аутора [16, 17].

Већа концентрација <sup>40</sup>K у лишћу у односу на узорке земљишта указује на механизме акумулације из земље преко корена и фолијарне депозиције из атмосфере. Фолијарној депозицији биљним културама у Косову Пољу вероватно доприноси и дим и пепео из термоелектране у Обилићу која за свој рад користи лигнит у чијем пепелу и диму су веће концентрације <sup>40</sup>K, <sup>232</sup>Th, <sup>235</sup>U него у самом лигниту [18]. Ружа ветрова је скоро увек усмерена ка Косову Пољу (са обилним количинама пепела и дима) које је више угрожено него Обилић, а стиже и до Липљана и даље.

Услед непостојања кутикуле на површини стабла и листића, маховине лако упијају загађиваче средине што показују и ови резултати мерења. У маховинама су максималне вредности специфичних активности за <sup>7</sup>Be, <sup>238</sup>U, <sup>226</sup>Ra, <sup>137</sup>Cs и <sup>232</sup>Th у поређењу са мерењима у свим осталим узорцима биљака. Вредности за <sup>238</sup>U, <sup>226</sup>Ra и <sup>232</sup>Th су веће од оних добијених у маховинама са Златибора, а вредности за <sup>137</sup>Cs су мање [19]. У ранијим истраживањима измерене су концентрације радона и торона у кући у Липљану од 588 Bqm<sup>-3</sup> и 29 Bqm<sup>-3</sup>, респективно, што указује да је пукотина-место узорковања маховине перманентно изложена утицају извора радионуклида. У кући у Косову Пољу концентрација радона је 398 Bqm<sup>-3</sup>, а торон није детектован [20].

Расположиви резултати о <sup>7</sup>Be у Косову Пољу и Липљану сведоче о његовој акумулацији у лишћу, док је најмања вредност у фомесу. Вредности концентрације активности берилијума вероватно су у вези са надморском висином преко 500 m.

#### 4. Закључак

Рад је од значаја код процене преноса радионуклида кроз ланац исхране и пружа информације о њима. Има посебну важност за процесе које треба узети у обзир у проценама утицаја зрачења на екосистеме.

Пренос радионуклида кроз испитиване узорке значајно варира. Трансфер фактор за <sup>40</sup>K већи је од 1.0 изузев у случају када је стабло посредник у трансферу из тла преко корена. То указује на путеве уноса код накупљања у листовима и



плодовима. Осим калијума који је заступљен више у лишћу, сви остали радионуклиди су са већим садржајем у земљишту. Тај однос зависи и од врсте узорака. Маховина, која као филтер упија радионуклиде показала је нижи трансфер фактор за торијум.

**Захвалност:** Финансијска подршка од Министарства за просвету, науку и технолошки развој Републике Србије на основу пројеката III41028 и 43002.

## 5. Литература:

- [1] UNSCEAR, Ionizing radiation: Sources and biological effects. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, 1982. United Nations, New York.
- [2] Van der Stricht E and Kirchmann R., Radioecology, Radioactivity and Ecosystems. 2001. Oupeye, Belgium.
- [3] Emsley, J., The Elements 3<sup>rd</sup> edition, 1998. Clarendon Press, Oxford.
- [4] [http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/Nuclides/Be-7\\_tables.pdf](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Be-7_tables.pdf)
- [5] Milic G., Yarmoshenko I.V., Jakupi B., Kovacevic M., Žunic Z.S. Indoor radon measurements in Kosovo and Metohija over the period 1995–2007., *Radiat. Meas.* 46 (2011) 141–144.
- [6] Gulan L., Milic G., Bossew P., Omori Y., Ishikawa T., Mishra R., Mayya Y. S., Stojanovska Z., Nikezic D., Vuckovic B. and Zunic Z.S., Field experience on indoor radon, thoron and their progenies with solid-state detectors in a survey of Kosovo and Metohija (Balkan region). *Radiat. Prot. Dosim.* 152 (1-3) (2012) 189-197.
- [7] Gulan L., Bochicchio F., Carpentieri C., Milic G., Stajic J., Krstic D., Stojanovska Z., Nikezic D. and Zunic Z.S., High annual radon concentration in dwellings and natural radioactivity content in nearby soil in some rural areas of Kosovo and Metohija (Balkan region). *Nucl. Technol. Radiat. Prot.* 28(1) (2013) 60-67.
- [8] K. Debertin, R.G. Helmer. Gamma and X-ray spectrometry with semiconductor detectors, North-Holland, Amsterdam-Oxford-New York-Tokyo, 1988
- [9] G Pantelić. Gamma spectrometer calibration with natural radioactive materials, *Nucl. Instr. Methods Phys. Res. A* 369 (1996) 572-573.
- [10] Г.К. Пантелић, И.М.Трајић. Одређивање криве ефикасности германијумских детектора за различите густине и геометрије узорака, Зборник радова XVII југословенског симпозијума за заштиту од зрачења, Београд. (1993) 199-202.
- [11] ASTM C 1402– 04 Standard Guide for High Resolution Gamma Ray Spectrometry of soil Samples.
- [12] International Atomic Energy Agency, Quantification of Radionuclide Transfers in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments, IAEA-TECDOC-1616, 2009. IAEA, Vienna.
- [13] IAEA, International Atomic Energy Agency, Classification of Soil Systems on the Basis of Transfer Factors of Radionuclides from Soil to Reference Plants, IAEATECDOC-1497, 2006. IAEA, Vienna.
- [14] UNSCEAR, United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Sources and effects of ionizing radiation. Annex B: Exposure of the public and workers from various sources of radiation. UNSCEAR, 2008. 2010. United Nations, New York.
- [15] Гулан Љиљана, Мерења радионуклида у тлу и радона у затвореним просторијама на Косову и Метохији, Докторска дисертација, Крагујевац, 2014.

- [16] Karunakara N., Somahekarappa H M., Narayana Y., Avadhani D N., Mahesh H M., Siddappa K.,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{40}\text{K}$  and  $^7\text{Be}$  activity concentrations in plants in the environment of Kaiga, India. *J. Environ. Radioact.* 65 (2003) 255–266.
- [17] Uchida S., Tagami K., Hirai I., Soil-to-plant transfer factors of stable elements and naturally occurring radionuclides (1) upland field crops collected in Japan. *J. Nucl. Sci. Tech.* 44 (2007) 628–640.
- [18] F. Hasani, F. Shala, G. Xhixha, M.K. Xhixha, G. Hodolli, S. Kadiri, E. Bylyku, F. Cfarku, Naturally occurring radioactive materials (NORMs) generated from lignite-fired power plants in Kosovo, *J. Environ. Radioact.* 138 (2014) 156-161.
- [19] S.Dragović, N. Mihailović, B. Gajić, Quantification of transfer of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in mosses of a semi-natural ecosystem, *J. Environ. Radioact.* 101 (2010) 159–164.
- [20] Milic G, Jakupi B, Tokonami S, Trajkovic R, Ishikawa T, Celikovic, I, Ujic P, Cuknic O, Yarmoshenko I, Kosanovic K, Adrovic F, Sahoo S K, Veselinovic N and Zunic Z S 2010. The concentrations and exposure doses of radon and thoron in residences of the rural areas of Kosovo and Metohija. *Radiat. Meas.* 45 (2010) 118–121.

## **RADIONUCLIDES OF TERRESTRIAL AND COSMOGENIC ORIGIN IN DIFFERENT PLANT SAMPLES FROM KOSOVO AND METOHILJA**

**Gordana MILIĆ, Radmila TRAJKOVIĆ, Ljiljana GULAN, Biljana VUČKOVIĆ, Jelena ŽIVKOVIĆ RADOVANOVIĆ and Dušica RISTIĆ**

*University of Pristina, Faculty of Natural Science, 38220 Kosovska Mitrovica, Serbia*  
[gmgordanamilic@gmail.com](mailto:gmgordanamilic@gmail.com)

### **ABSTRACT**

The specific activities of radionuclides:  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^7\text{Be}$  were measured in different crops of plants collected in urban areas of central Kosovo and Metohija in August 2008. In order to assess radiation contamination of soil from which the plants were sampled, the specific activities of  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were determined. Measurements in all dry samples were performed on HPGe coaxial detector type by spectrometry of gamma radiation. Transfers of radionuclides from soil to different plant samples were calculated; it ranged as follow: 0.3-3.3, 0.04-0.14, 0.07-1.51 and 0.04-2.34 for the  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{137}\text{Cs}$ , respectively. Specific activity of  $^{238}\text{U}$  and  $^7\text{Be}$  were measured only in plant samples; the maximum measured values were in mosses: 137 Bq/kg and 699 Bq/kg, respectively. Also, the mosses had the highest accumulation of  $^{137}\text{Cs}$  (32.8 Bq/kg) and transfer factor of 0.71 for  $^{232}\text{Th}$ . The foliar deposition of radionuclide was appreciable in chard; there was the highest accumulation of  $^{40}\text{K}$ . The foliar accumulation is particularly inclined  $^7\text{Be}$ .

## RASPODELA UKUPNE BETA I SPECIFIČNE AKTIVNOSTI $^{40}\text{K}$ U VEGETATIVNIM I GENERATIVNIM ORGANIMA KUKURUZA

Nataša SARAP<sup>1</sup>, Milica RAJAČIĆ<sup>1</sup>, Marija JANKOVIĆ<sup>1</sup>, Jelena NIKOLIĆ<sup>1</sup>,  
Željko DOLIJANOVIĆ<sup>2</sup>, Dragana TODOROVIĆ<sup>1</sup> i Gordana PANTELIĆ<sup>1</sup>

- 1) Univerzitet u Beogradu, Institut Vinča, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija, [natasas@vinca.rs](mailto:natasas@vinca.rs)
- 2) Univerzitet u Beogradu, Poljoprivredni fakultet, Zemun-Beograd, Srbija

### SADRŽAJ

*U radu su predstavljeni rezultati analize raspodele ukupne beta aktivnosti, kao i specifične aktivnosti  $^{40}\text{K}$  u vegetativnim i generativnim organima biljne vrste kukuruza. Merenja su obavljena u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Instituta Vinča, na niskofonskom gasnom proporcionalnom brojaču (ukupna beta aktivnost) i HPGe detektoru (aktivnost  $^{40}\text{K}$ ).*

*Rezultati ovog istraživanja su ukazali na to da sposobnost akumulacije  $^{40}\text{K}$  od strane kukuruza ne zavisi statistički značajno od sistema đubrenja. Takođe je ustanovljeno da radionuklidi koje biljka apsorbuje iz zemljišta putem korenovog sistema, naknadno se translociraju u ostale delove biljke. Dobijeni rezultati su značajni jer generišu ponašanje radionuklida i predviđanje njihovog transfera u različitim biljnim organima kukuruza. Pored ovoga, bitno je da se dobije uvid u radijaciono opterećenje ove biljne vrste.*

### 1. Uvod

Radijaciona sigurnost bioloških populacija uslovljena je poznavanjem radioekoloških karakteristika biosfere, koje zavise od prisustva prirodnih i proizvedenih radionuklida. Osnovni parametri radijacione sigurnosti stanovništva su permanentna kontrola radioaktivnih supstancija u biosferi, određivanje porekla radioaktivne kontaminacije životne sredine i prostorna raspodela svih potencijalnih izvora radioaktivnog zagađivanja [1].

Radioaktivna kontaminacija biljne i stočarske proizvodnje, koje predstavljaju najznačajnije faktore u radijacionoj ugroženosti ljudi preko lanca ishrane, nameću potrebu sistematske radijaciono-higijenske kontrole različitih biljnih vrsta za animalnu ishranu, od kojih je kukuruz među najznačajnijim. Radionuklidi se metabolički ugrađuju u biljne vrste resorpcijom iz zemljišta putem korenovog sistema ( dugoživeći  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ), kao i depozicijom na lišću biljaka ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^7\text{Be}$ ) [2,3]. Obim u kome neki radionuklid može biti resorbovan iz zemljišta od strane biljke zavisi od hemijskog oblika radionuklida, metaboličkih zahteva biljke i fizičko-hemijskih karakteristika zemljišta [2]. Morfološko-fiziološke karakteristike biljke (vrsta, morfološka građa, rast, dužina vegetacionog perioda), takođe su značajni faktori od kojih zavisi veličina resorpcije radionuklida [3].

Ovo istraživanje je zasnovano na određivanju i analizi distribucije ukupne beta aktivnosti, kao i specifične aktivnosti  $^{40}\text{K}$  u vegetativnim (koren, stablo i list) i generativnim (plod) organima biljne vrste kukuruza, u okviru tehnologije gajenja zasnovane na konceptu održive poljoprivrede. Sistem održive poljoprivrede je noviji sistem poljoprivredne proizvodnje, uveden zbog očuvanja životne sredine kroz

favorizovanje alternativnih sistema zemljoradnje (združeni i pokrovni usevi) i očuvanja biodiverziteta [4]. Ekološki balansirana poljoprivreda se bazira na očuvanju prirodnih karakteristika zemljišta i maksimalnoj biološkoj aktivnosti [5].

Cilj rada jeste da se ispita nivo i preraspodela radioaktivnosti u održivoj proizvodnji kukuruza, useva sa najvećim udelom u setvenoj strukturi u Republici Srbiji.

## 2. Materijal i metode

Uzorkovanje kukuruza je izvršeno krajem avgusta 2014. godine na "Radmilovcu", eksperimentalnom dobru Poljoprivrednog fakulteta iz Zemuna. Uzorci kukuruza zajedno sa korenima su uzeti sa 3 lokacije u okviru sistema održive proizvodnje, u količini oko 2 kg i sa površine od 1 m<sup>2</sup>. Kukuruz je gajen u sistemu četvoropoljnom plodoredu. Plodoredna polja su zasnovana 1992. godine i traju do danas. Sistem smene useva u plodoredima su kompleksni sistemi sa širokim efektima na zemljište i useve. Tip zemljišta na kome je izveden ogled u okviru koga je uzorkovana ova biljna vrsta, je izluženi černozem, čija je hemijska reakcija slabo alkalna. Udeo fizičkog peska varira u relativno uskom intervalu od 50,8 do 61,7 %, pokazujući opadanje sa dubinom zemljišta. Udeo fizičke gline (prah+gline) takođe oscilira u uskim granicama od 38,3 do 49,2 %. Takav odnos praha i gline omogućava dobru propusnost za vodu i razvoj korenovog sistema biljaka.

U laboratoriji su razdvojeni delovi biljke kukuruza: koren, stablo, list i plod (klip), pri čemu su sa korenovog sistema odstranjeni ostaci zemlje pod mlazom tekuće vode, posle čega je vršeno ispiranje destilovanom vodom, a sa klipa kukuruza su odstranjeni listovi klipa (komušina). Uzorci su sušeni na vazduhu i sobnoj temperaturi, minimalno tri nedelje. Nakon sušenja, uzorci su usitnjeni i mineralizovani na temperaturi od 450 °C tokom 24 h, metodom suvog spaljivanja.

Za merenje ukupne beta aktivnosti, odmereno je oko 130 mg mineralnog ostatka biljne kulture u planšetnu od nerđajućeg čelika i merenja su obavljena odmah nakon pripreme uzorka, na niskofonskom gasnom proporcionalnom brojaču Thermo Eberline FHT 770T (ESM Eberline Instruments GmbH, Erlangen, Nemačka). Efikasnost merenja ukupne beta aktivnosti je određena upotrebom standardnog izvora <sup>90</sup>Sr, i iznosi 35 %. Za merenje aktivnosti <sup>40</sup>K, mineralni ostatak uzorka je odmeren u plastičnu kutiju od 100 mL i merenja su obavljena na HPGe detektoru (Canberra Industries, Meriden, Connecticut, Sjedinjene Američke Države). Spektri su analizirani upotrebom programa GENIE 2000 (Canberra Industries, Meriden, Connecticut, Sjedinjene Američke Države).

## 3. Rezultati i diskusija

U okviru sistema održive proizvodnje kukuruza, pored uobičajene primene mineralnih đubriva po celoj ogleđnoj površini, u jesen je primenjeno i organsko đubrivo (Tretman 1). Primenjeni biohumus je spravljen po posebnom postupku od organskih materija sa farmi svinja i živine koje prerađuju muve po posebnoj tehnologiji. Ovo organsko đubrivo pod trgovačkim nazivom "Biohumus Royal OFERT" primenjuje se neposredno pred osnovnu obradu zemljišta. Karakteristike ga pH vrednost 8. Radi smanjenja količina mineralnih đubriva, što je jedan od postulata održive poljoprivrede, u proleće u vreme intenzivnog rasta useva, folijarno je primenjeno i mikrobiološko đubrivo (Tretman 2), pod trgovačkim nazivom "Slavol". Ovaj preparat predstavlja prirodno mikrobiološko đubrivo koje sadrži dve grupe bakterija, azotofiksatore i fosfomineralizatore, kao i neke biostimulatore. Suština delovanja ovog preparata se sastoji u tome, da pored

snabdevanja biljaka u azotu i fosforu, omogućava i produkciju entomo toksina koji štite biljke od insekata. Sve ovo zajedno utiče na ubrzan rast biljaka na jedan ekološko prihvatljiv način. Da bi se ustanovila prednost održivih sistema zemljoradnje, postojala je i kontrolna varijanta (Tretman 3) u okviru koje je primenjeno samo mineralno (NPK) đubrivo (HIP-Azotara, Pančevo) u jesen, što predstavlja uobičajeni sistem konvencionalne tehnologije gajenja ovog useva.

Rezultati merenja ukupne beta i specifične aktivnosti  $^{40}\text{K}$  u vegetativnim i generativnim organima kukuruza, kao i udeo  $^{40}\text{K}$  u ukupnoj beta aktivnosti su prikazani u Tabeli 1.

**Tabela 1. Ukupna beta aktivnost (UBA) i specifična aktivnost  $^{40}\text{K}$  (SA  $^{40}\text{K}$ ) u vegetativnim i generativnim organima kukuruza, izražene kao  $\text{Bq kg}^{-1}$  suve materije, i udeo  $^{40}\text{K}$  u ukupnoj beta aktivnosti**

<i>Tretman</i>	<i>Biljni organ</i>	<i>UBA (<math>\text{Bq kg}^{-1}</math>)</i>	<i>SA <math>^{40}\text{K}</math> (<math>\text{Bq kg}^{-1}</math>)</i>	<i>Udeo <math>^{40}\text{K}</math> (%)</i>
1	Koren	580 ± 70	520 ± 40	89,6
	Stablo	310 ± 20	280 ± 20	90,3
	List	450 ± 30	420 ± 30	93,3
	Plod	290 ± 20	260 ± 20	89,6
2	Koren	490 ± 70	450 ± 30	91,8
	Stablo	250 ± 20	220 ± 20	88,0
	List	410 ± 30	380 ± 50	92,7
	Plod	240 ± 10	210 ± 20	87,5
3	Koren	540 ± 80	490 ± 40	90,7
	Stablo	300 ± 20	270 ± 20	90,0
	List	440 ± 40	400 ± 40	90,9
	Plod	260 ± 10	230 ± 20	88,5

Na osnovu rezultata prikazanih u Tabeli 1, može se zaključiti da postoji određena raspodela ukupne beta aktivnosti, kao i specifične aktivnosti  $^{40}\text{K}$  u pojedinim biljnim organima kukuruza, i to sledećim redosledom: koren>list>stablo>plod. Dakle, najviše vrednosti ukupne beta aktivnosti, kao i koncentracije aktivnosti  $^{40}\text{K}$ , su u korenu biljke i iznosile su od 490-580 i 450-520  $\text{Bq kg}^{-1}$ , redom. Najniže vrednosti dobijene su za plod kukuruza, i to u intervalu od 240 do 290  $\text{Bq kg}^{-1}$  za ukupnu beta aktivnost, dok su za koncentraciju aktivnosti  $^{40}\text{K}$  iznosile 210-260  $\text{Bq kg}^{-1}$ . Rezultati su pokazali da je udeo  $^{40}\text{K}$  u ukupnoj beta aktivnosti u proseku oko 90 %, čime su potvrđeni literaturni podaci [6]. Razlika od oko 10 % između pomenutih aktivnosti ukazuje na prisustvo i drugih beta emitera. Generalno, najniže vrednosti koncentracije aktivnosti su dobijene za tretman prihranjivanja kukuruza tečnim mikrobiološkim đubrivom, što je i bilo za očekivati, s obzirom da se ovo đubrivo primenjuje radi smanjenja količine i uticaja fosfatnih đubriva.

Pored pomenutih, urađena je i gamaspektrometrijska analiza određivanja koncentracije aktivnosti  $^{40}\text{K}$  u primenjenim đubrivima. Dobijene vrednosti su iznosile (3600±200)  $\text{Bq kg}^{-1}$  za mineralno đubrivo (NPK, 15:15:15), (1000±200)  $\text{Bq kg}^{-1}$  za organsko đubrivo i <50  $\text{Bq L}^{-1}$  za mikrobiološko đubrivo. Granica sadržaja prirodnog radionuklida  $^{40}\text{K}$ , u mineralnim fosfatnim đubrivima iznosi 27000  $\text{Bq kg}^{-1}$  [7]. Na osnovu rezultata analize sadržaja  $^{40}\text{K}$  u upotrebljenim đubrivima, možemo zaključiti da pored mineralnog NPK đubriva, kriterijum zadovoljavaju i organsko i mikrobiološko đubrivo, iako ne spadaju u fosfatna đubriva.

#### 4. Zaključak

Na osnovu ispitanih uzoraka utvrđeno je da postoji uniformna raspodela ukupne beta aktivnosti, kao i specifične aktivnosti  $^{40}\text{K}$  u vegetativnim i generativnim organima kukuruza. Dobijeni rezultati su značajni i prvenstveno ukazuju na radijaciono opterećenje ove biljne vrste, s obzirom da je kukuruz najvažnija komponenta u ishrani životinja. U svakom slučaju, potrebno je vršiti radijaciono-higijensku kontrolu hraniva za životinje, kako bi se pravovremeno otkrilo povećanje radioaktivnosti.

#### Zahvalnica

Ovaj rad je finansijski podržan od strane Ministarstva za prosvetu, nauku i tehnološki razvoj Republike Srbije, u okviru projekta broj III43009.

#### 5. Literatura

- [1] B. Petrović i R. Mitrović. Radijaciona higijena u biotehnologiji. 1991. Naučna knjiga, Beograd.
- [2] B. Gajić. Fizika zemljišta. Univerzitet u Beogradu, 2006. Poljoprivredni Fakultet, Beograd.
- [3] D. Todorović, D. Popović, J. Ajtić, J. Nikolić. Leaves of higher plants as biomonitors of radionuclides ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$ ) in urban air. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 20 (2013) 525-532.
- [4] Ž. Dolijanović, S. Oljača, D. Kovačević, M. Simić, N. Momirović, Ž. Jovanović. Dependence of the productivity of maize and soybean intercropping systems on hybrid type and plant arrangement pattern. *Genetika.* 45 (2013) 135-144.
- [5] L. Kolomejceva-Jovanović. Hemija i zaštita životne sredine-ekološka hemija. Monografija nacionalnog značaja. 2010. Savez inženjera i tehničara Srbije, Beograd.
- [6] M. Einsebud. Environmental Radioactivity. 1973. Academic Press, New York.
- [7] Službeni glasnik Republike Srbije, broj 86/2011 i 97/2013. Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet. Srbija, 2013.

## DISTRIBUTION OF THE GROSS BETA AND <sup>40</sup>K SPECIFIC ACTIVITY IN VEGETATIVE AND GENERATIVE ORGANS OF MAIZE PLANT

**Nataša SARAP<sup>1</sup>, Milica RAJAČIĆ<sup>1</sup>, Marija JANKOVIĆ<sup>1</sup>, Jelena NIKOLIĆ<sup>1</sup>, Željko DOLIJANOVIĆ<sup>2</sup>, Dragana TODOROVIĆ<sup>1</sup> and Gordana PANTELIĆ<sup>1</sup>**

*1) University of Belgrade, Vinča Institute, Radiation and Environmental Protection Department, Belgrade, Serbia, [natasas@vinca.rs](mailto:natasas@vinca.rs)*

*2) University of Belgrade, Faculty of Agriculture, Zemun-Belgrade, Serbia*

### ABSTRACT

The aim of this study was to investigate of level and distribution of radioactivity in sustainable farming system of maize production. This crop has the highest share in the crop structure in the Republic of Serbia. The sampling of maize was conducted at the experimental field "Radmilovac" (44<sup>o</sup> 45' N, 020<sup>o</sup> 34' E, 143 m altitude), a property of the Faculty of Agriculture in Belgrade in August 2014, within fertilization with different kind of fertilizers.

The measurements were performed in Radiation and Environmental Protection Department of Vinča Institute in Belgrade. For this purpose, the low-level proportional  $\alpha/\beta$  counter was used for determination of the gross beta activity, while the determination of <sup>40</sup>K specific activity in maize plant was performed using HPGe Canberra detector.

The obtained results showed that the contribution of <sup>40</sup>K in the gross beta activity was of 90 % an average. Based on the obtained results in this study, it can be concluded that the ability to accumulate <sup>40</sup>K by maize does not depend statistically significantly on the system of fertilization. Generally, the lowest values of activity concentrations were obtained for plants, using the microbiological fertilizer treatment. This fertilizer is applied to reduce the amount and impact of phosphate fertilizers. Also, it was shown that radionuclides which plant absorbs from the soil through the root system, subsequently are translocated to other parts of plant. The results are important because they generate behavior of radionuclides and predict their transfer in various maize plant organs. In addition, it is important to gain insight into the radiation load of this plant species.



## PROCENA VREMENA POLUŽIVOTA $^{137}\text{Cs}$ U PEČURKAMA I MAHOVINAMA SRBIJE

**Ana ČUČULOVIĆ<sup>1</sup>, Rodoljub ČUČULOVIĆ<sup>2</sup> i Dragan VESELINOVIĆ<sup>3</sup>**

1) Univerzitet u Beogradu, Institut za primenu nuklearne energije– INEP, Zemun, Srbija, e-mail: [anas@inep.co.rs](mailto:anas@inep.co.rs)

2) Visoka poslovna škola strukovnih studija, Vlade Jovanovića 8, Leskovac, Serbia

3) Univerzitet u Beogradu, Fakultet za fizičku hemiju, Beograd, Srbija

### SADRŽAJ

*Gljive (vrganj i lisičarka) i mahovine su nezaobilazni činioци radioekoloških ispitivanja šumskih ekosistema. U periodu od 1999. do 2013. godine analizirano je 417 uzoraka svežeg vrganja, 476 uzoraka sveže lisičarke i 102 uzorka mahovine sa teritorije Srbije. Analiziranjem podataka zaključuje se da su srednji trogodišnji nivoi aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  u svežem vrganju i lisičarki približno isti, dok su u mahovini znatno viši. U radu je prikazano da nivoi aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  u gljivama i mahovinama opadaju sa vremenom i da su mahovine bolji bioindikator od gljiva, kao i da postoji značajna razlika između stvarnih (izmerenih) i izračunatih vrednosti  $^{137}\text{Cs}$  u gljivama i mahovinama u ispitivanim vremenskim intervalima. Rezultati upućuju na zaključak da je smanjenje aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  u uzorcima posledica sa jedne strane radioaktivnog raspadanja  $^{137}\text{Cs}$ , a sa druge strane sorpciono-desorpcionih procesa.  $^{137}\text{Cs}$  je i posle dvadeset i sedam godina od akcidenta u Černobilju još uvek prisutan u ispitivanim bioindikatorima, a samim tim i u zemljištu Srbije.*

### 1. Uvod

Radioaktivnost je pojava koju su ljudi relativno kasno počeli da koriste. Bombama na Hirošimu i Nagasaki (1945. godina) započeta je era upotrebe nuklearnog oružja. Akcident u nuklearnoj elektrani Lenjin u Černobilju (26.4.21986., Ukrajina) je obeležio 20. vek, kada je visokoenergetski ključajući reaktor, snage 1 milion vati i proizvodnje  $7,4 \times 10^{19}$  Bq različitih radionuklida, bio uništen. Raznošenje izbačenog materijala, a samim tim i zagađenje teritorija je bilo u najvećoj meri posledica meteoroloških uslova. Većina aktivnosti deponovana je uglavnom u centralnim, severnim i jugoistočnim delovima Evrope i to na rastojanju 2000 km od Černobilja [1,2]. Prema podacima UNSCEAR-a radioaktivni oblak je zahvatio teritoriju SFRJ u dva talasa. Procenjeno je da je u toku 1986. godine na teritoriju SFRJ deponovano oko 2,4% od ukupno ispuštenih radionuklida (bez inertnih gasova), od toga oko 10%  $^{137}\text{Cs}$  [3].

Cezijum-137 je, za organizme, jedan od potencijalno najopasnijih ispuštenih radionuklida. Može da nastane kao fisioni produkt, da bude proizveden u procesu proizvodnje i testiranja nuklearnog oružja i u nuklearnim reaktorima. Radiocezijum najčešće do organizama dospeva suvim ili vlažnim padavinama, a procesi usvajanja cezijuma iz spoljašnje sredine mogu biti: fizička i hemijska sorpcija i jonska izmena. Ima dugo vreme poluraspada (30,2 godine), a fizičko-hemijske karakteristike su mu takve da se aktivno uključuje u lanac ishrane ljudi i životinja preko biljaka, jer metabolički zamenjuje kalijum. Potpuno je rastvorljiv u telesnim tečnostima i ravnomerno se raspoređuje u organizmu. Za  $^{137}\text{Cs}$  ne postoji kritičan organ i on je organotropni radionuklid [4].

Informacije o prostornoj i vremenskoj podeli i trendovima zagađenja vazduha i okoline radionuklidima, posebno u uslovima nuklearne nesreće i nekontrolisane emisije fisionih

produkata mogu se prikupiti pomoću gljiva i mahovina, koji su kosmopolitski organizmi koji rastu na različitim staništima, u različitim klimatskim uslovima. Ovi organizmi imaju sposobnost da akumuliraju radionuklide u svojim telima i ukazuju na prisustvo zagađujućih supstanci u sredini u kojoj se nalaze, kao i da daju kvalitativnu i kvantitativnu informaciju o nivoima zagađenja i ukazuju na promene sa vremenom. Sposobnost akumulacije radionuklida uglavnom je uzrokovana činjenicom da bioindikatori nemaju sposobnost razlikovanja specifičnosti između hemijski srodnih elemenata, što u uslovima radioaktivne kontaminacije dovodi do nakupljanja radionuklida u ovim organizmima. Na nivoe aktivnosti radionuklida u ovim bioindikatorima utiču mnogi faktori: vrsta, tekstura, provodljivost, nadmorska visina, pH vrednost, fizičko hemijske osobine zemljišta, fizičko hemijski sastav i distribucija radionuklida u zemljištu, atmosferske padavine i drugo. Radionuklidi procesima migracije i nakupljanja dospevaju u zemlju i vodu, i preko njih u proizvode biljnog i životinjskog porekla i predstavljaju direktnu ili indirektnu opasnost po ljude koji ih koriste.

Neposredno posle akcidenta u Černobilju počela su istraživanja nivoa aktivnosti radionuklida u gljivama i mahovinama mnogih zemalja [5-13]. Pokazalo se da je kod mahovina sorpcija radionuklida iz vazduha dominantna, a da gljive sorbuju  $^{137}\text{Cs}$  micelijumom.

Zbog osobine gljiva i mahovina da apsorbuju  $^{137}\text{Cs}$  i da ga koncentrišu u svom telu ovi bioindikatori su nezaobilazni činioци radioekoloških ispitivanja ekosistema. Monitoring životne sredine korišćenjem gljiva i mahovina je važan za procenu radijacionog opterećenja stanovništva određenog prostora.

## 2. Materijal i metoda

U periodu od 1999. do 2013. godine analizirani su uzorci gljiva: vrganja (*Boletus edulis*) i lisičarke (*Cantharellus cibarius*) i mahovina sakupljenih na teritorije Srbije. Gljive i mahovine su sakupljane metodom slučajnog uzorka.

Gamaspektrometrijska merenja su do 2002. godine vršena sa NaI detektoru ORTEC-CANBERRA efikasnosti 8,7% i rezolucije 6,7% za  $^{137}\text{Cs}$  na 661,6 keV-a, a od 2002. godine sa HPGe ORTEC/Ametek detektoru sa 8192 kanala, rezolucije 1,65 keV-a i relativne efikasnosti od 34% na 1,33 MeV-a za  $^{60}\text{Co}$ .

Uzorci su očišćeni od vidljivih nečistoća (zemlje, trave, borovih iglica) i mereni u Marinelli posudama zapremine 1L. Vreme merenja jednog uzorka je bilo od 3600s do 60000s. Relativna greška pripreme uzorka i merenja je do 10%. Aktivnost  $^{137}\text{Cs}$  je određivana preko  $\gamma$ -linije na energiji od 661,6 keV-a.

## 3. Rezultati i diskusija

U periodu od 1999. do 2013. godine analizirano je 417 uzoraka svežeg vrganja, 476 uzoraka sveže lisičarke i 102 uzorka mahovine sa teritorije Srbije.

U tabeli 1 prikazani su srednji trogodišnji nivoi aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  (A) sa standardnom devijacijom (sd), minimalne (min) i maksimalne (max) godišnje vrednosti aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  (Bq/kg) u vrganju, lisičarki i mahovinama sakupljenih na teritoriji Srbije. U svakom pojedinačnom uzorku gljiva i mahovina utvrđeno je prisustvo  $^{137}\text{Cs}$ , što govori o tome da se posle nesreće u Černobilju zagađenje proširilo na celokupnu teritoriju Srbije. Analiziranjem podataka zaključuje se da su srednji trogodišnji nivoi aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  u svežem vrganju i lisičarki približno isti, dok su u mahovini znatno viši, što ukazuje da su mahovine bolji bioindikatori zagađenja životne sredine radionuklidima u

odnosu na gljive. Iz tabele 1 sledi da vremenom dolazi do smanjenja aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  u uzorcima.

**Tabela 1. Srednji trogodišnji nivoi aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  (A) sa standardnom devijacijom (sd), minimalne (min) i maksimalne (max) godišnje vrednosti aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  (Bq/kg) u vrganju, lisičarki i mahovinama sakupljenih na teritoriji Srbije u periodu 1999 - 2013. godina**

God.	Vrganj		Lisičarka		Mahovina	
	A ± sd (Bq/kg)	Min-max (Bq/kg)	A ± sd (Bq/kg)	Min-max (Bq/kg)	A ± sd (Bq/kg) (br.uz.)	Min-max (Bq/kg)
1999	19,5 ± 17,6	3,0-69,0	14,7 ± 12,3	5,0-55,0	132 ± 56,3	---
2000		5,0-47,0		6,0-90,0		177
2001		5,0-16,0		5,0-69,0		25,0-177
2002	15,0 ± 16,4	3,0-53,0	13,2 ± 16,4	4,0-96,0	937 ± 900	25,0-176
2003		2,0-117		2,0-80,0		76,0-4923
2004		2,0-70,0		1,0-85,0		---
2005	11,8 ± 12,4	2,0-71,0	9,8 ± 10,4	2,0-42,0	292 ± 620	---
2006		2,0-43,0		2,0-67,0		2,7-3463
2007		0,8-51,0		1,4-43,0		---
2008	12,1 ± 11,1	1,3-50,0	10,0 ± 11,0	0,6-23,0	61,6 ± 81,6	2,9-527
2009		1,5-42,0		1,2-22,0		2,5-449
2010		1,5-26,0		1,4-26,0		0,9-148
2011	5,5 ± 2,9	1,3-14,0	5,9 ± 3,9	2,0-27,0	39,9 ± 39,1	3,9-188
2012		3,9-9,0		2,4-6,3		2,2-41,0
2013		0,5-7,5		2,0-8,0		1,2-240

Iz jednačine radioaktivnog raspada

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad (1)$$

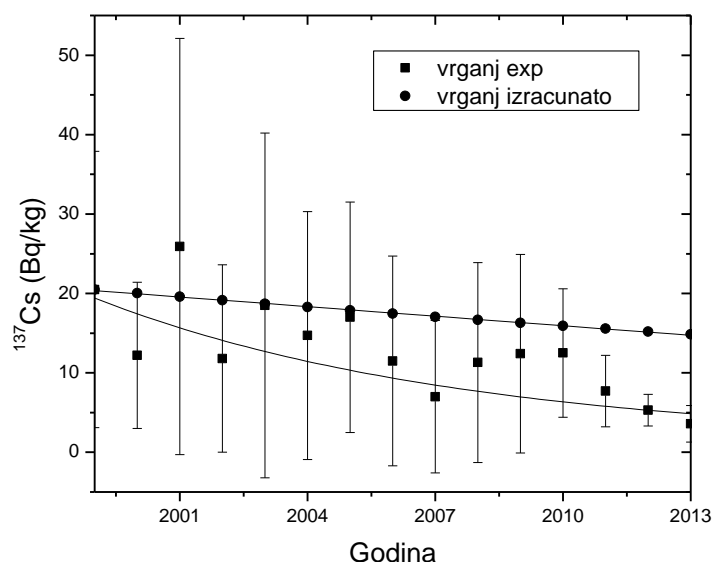
gde je:  $A$  aktivnost u vremenu  $t$ ,  $A_0$  aktivnost za  $t=0$ ,  $\lambda$  radioaktivna konstanta= $0,693/T$ , a  $T$  vreme poluraspada = 30,1 godina, može se izračunati, znajući početnu aktivnost uzoraka, kolika će aktivnost biti u narednom periodu. Ako primenimo jednačinu 1 i uzmemo da je početna aktivnost  $^{137}\text{Cs}$  1.1.2009. godine srednja godišnja aktivnost od 20,5 Bq/kg za vrganj i 13,6 Bq/kg za lisičarku, kao i da je 1.1.2010. godine srednja godišnja aktivnost 177 Bq/kg za mahovinu dobijaju se izračunate vrednosti aktivnosti prikazane u tabeli 2.

U tabeli 2 zapaža se izrazito odstupanje od prosečne vrednosti aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  u mahovinama za period 2002-2004. god. Odstupanje je posledica visoke aktivnosti malog broja uzoraka (do 4923 Bq/kg) sakupljenih mahovina metodom slučajnog uzorka, a ne sistematskog. Iz tabele 2 je evidentno da postoji značajna razlika između izračunatih i stvarnih (izmerenih) vrednosti  $^{137}\text{Cs}$  u uzorcima gljiva i mahovina u ispitivanim vremenskim intervalima.

**Tabela 2. Srednji trogodišnji nivoi aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  (Bq/kg) u uzorcima vrganja, lisičarke i mahovini dobijeni eksperimentalnim putem i izračunavanjem preko jednačine (1).**

PERIOD	VRGANJ		LISIČARKA		MAHOVINA	
	EXP	RAČUN	EXP	RAČUN	EXP	RAČUN
1999-2001	19,5	20,0	15,2	13,3	133	175
2002-2004	15,0	18,7	13,2	12,4	937*	165
2005-2007	11,8	17,5	9,8	11,6	292	154
2008-2010	12,1	16,3	10,0	10,8	61,6	144
2011-2013	5,5	15,2	5,9	10,1	39,9	134

\* Odstupanje je posledica visoke aktivnosti malog broja uzoraka sakupljenih mahovina metodom slučajnog uzorka, a ne sistematskog.



**Slika 1. Srednji godišnji nivoi aktivnosti (SGNA)  $^{137}\text{Cs}$  (Bq/kg) u vrganju sa standardnom devijacijom dobijeni merenjem i SGNA izračunati korišćenjem jednačine 1.**

Na slici 1. prikazani su srednji godišnji nivoi aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  (Bq/kg) u vrganju sa standardnom devijacijom dobijeni merenjem i izračunatih korišćenjem jednačine 1. Rezultati upućuju na zaključak da je smanjenje aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  u uzorcima posledica sa jedne strane radioaktivnog raspadanja  $^{137}\text{Cs}$ , a sa druge strane sorpciono-desorpcionih procesa koji, takođe, dovode do smanjenja sadržaja  $^{137}\text{Cs}$  u posmatranim bioindikatorima. Sorpciono- desorpcioni procesi se dešavaju između bioindikatora i zemljišta na kome rastu, odnosno vode iz padavina i vode iz zemljišta.

#### 4. Zaključak

Gljive (vrganj i lisičarka) i mahovine su nezaobilazni činioци radioekoloških ispitivanja šumskih ekosistema. Od 1999. do 2013. godine u INEP-u je analizirano: 417 uzoraka svežeg vrganja, 476 uzoraka sveže lisičarke i 102 uzorka mahovine sa teritorije Srbije. Srednji trogodišnji nivoi aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  u svežem vrganju i lisičarki su približno isti, dok su u mahovini znatno viši. Mahovine su bolji bioindikator zagađenja životne sredine  $^{137}\text{Cs}$  od gljiva. Nivoi aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  u gljivama i mahovinama opadaju sa vremenom.  $^{137}\text{Cs}$  je i posle dvadeset i sedam godina od akcidenta u Černobilju još uvek prisutan u ispitivanim bioindikatorima, a samim tim i u zemljištu Srbije. Razlika između izračunatih i stvarnih (izmerenih) vrednosti  $^{137}\text{Cs}$  u uzorcima govori da je smanjenje aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  posledica sa jedne strane radioaktivnog raspadanja  $^{137}\text{Cs}$ , a sa druge strane sorpciono-desorpcionih procesa.

**5. Zahvalnica:** Ovaj rad finansiralo je Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Projekat broj: III 43009)

#### 6. Literatura

- [1] A. Aakrog. The radiological impact of Chernobyl debris compared with from nuclear weapons fallout, *J. Environ. Radioact.* 6 (1988) 151-162.
- [2] M.J. Clarke and F.B. Smith. Wet and dry deposition of Chernobyl releases, *Nature*, 332 (1988) 245-249.
- [3] Nivoi radioaktivne kontaminacije čovekove sredine i ozračenost stanovništva Jugoslavije 1986. godine usled havarije nuklearne elektrane u Černobilju, Beograd, 1987, Savezni komitet za rad, zdravstvo i socijalnu zaštitu.
- [4] A.L. Nichols and E. Hunt. Nuclear data table, in: Longworth G, ed. *The radiochemical manual*, 1998. Howell, UK.
- [5] A. Čučulović, D. Popović, R. Čučulović i J. Ajtić. Natural radionuclides and  $^{137}\text{Cs}$  in moss and lichen in Eastern Serbia, *Nuclear technology & Radiation protection*, Belgrade, 27(1) (2012) 44-51.
- [6] A. Čučulović, R. Čučulović, M. Sabovljević i D. Veselinović. Activity concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{40}\text{K}$  in mosses from spas in Eastern Serbia, *Arch. Biol. Sci.*, Belgrade, 64(3) (2012) 917-925.
- [7] S. Stanković, A. Stanković i M. Krainčanić. Komparativno ispitivanje nivoa kontaminacije radiocezijumom-137 i 134 nekih bioindikatora, Zbornik radova XVII Jugoslovenskog simpozijuma za zaštitu od zračenja, 65-68, Beograd, 1993. Institut Vinča.
- [8] E.L. Cooper, E. Zeiller, A. Ghods-Esphahani, M. Makarewicz, R. Schelenz, O. Frindik, M. Heilgeist and W. Kalus. Radioactivity in food and total diet samples collected in selected settlements in the USSR, *J. Environ. Radioact.* 17 (1994) 147-158.
- [9] H. Sugiyama, H. Terada, H. Shibata, Y. Morita and F. Kato. Radiocesium concentrations in wild mushrooms and characteristic of cesium accumulation by the edible mushrooms (*Pleurotus ostreatus*), *J. Health Sci.* 46(5) (2000) 370-375.
- [10] L. Kammerer, L. Hiersche and E. Wirth. Uptake of radiocaesium by different species of mushrooms, *J. Environ. Radioact.* 23 (1994) 135-150.

- [11] A. Bazca, J. Guilen, J. Paniagua, S. Hernandez, J. Martin, J. Diez, J. Manjon and G. Moreno. Radiocesium and radiostrontium uptake by fruit bodies of *Pleurotus eryngii* via mycelium, soil and aerial absorption, *App. Radiat. Isot.* 53 (2000) 455-462.
- [12] P. Kalac. Trace element contents in European species of wild growing edible mushrooms: A review for the period 2000–2009, *FOOD Chemistry*. 122 (2010) 2-15.
- [13] A. Čučulović i D. Veselinović. Desorpcija  $^{137}\text{Cs}$  iz mahovine *Homalothecium sericeum* (Hedw.) Schim. slabo kiselim rastvorima, *Hem. Ind.* 67(6) (2013) 975-980.

### EVALUATION OF THE HALF-LIFE OF $^{137}\text{Cs}$ IN FUNGI AND MOSS IN SERBIA

**Ana ČUČULOVIĆ<sup>1</sup>, Rodoljub ČUČULOVIĆ<sup>2</sup> and Dragan VESELINOVIĆ<sup>3</sup>**

1) *University of Belgrade, Institute for the Application of Nuclear Energy – INEP, Serbia, e-mail: [anas@inep.co.rs](mailto:anas@inep.co.rs)*

2) *Higher Business School of Leskovac, Vlade Jovanovića 8, Leskovac, Serbia*

3) *University of Belgrade, Faculty for Physical Chemistry, Belgrade, Serbia*

#### ABSTRACT

Mushrooms (*Boletus edulis* and *Cantharellus cibarius*) and mosses are unavoidable objects in radioecological investigations of forest ecosystems. During the interval between 1999 and 2013, 417 samples of fresh *Boletus edulis*, 476 samples of fresh *Cantharellus cibarius* and 102 samples of mosses from Serbia were analysed. From the obtained results it may be seen that the average three-year levels of  $^{137}\text{Cs}$  activities in the fresh *Boletus edulis* and *Cantharellus cibarius* are nearly equal, while those found in the mosses are significantly higher. In this work we show that activity levels of  $^{137}\text{Cs}$  in fungi and moss have reduced with time. Mosses are better bioindicators than fungi. There is a significant difference between real (measured) and calculated values of  $^{137}\text{Cs}$  in the investigated time spans. These results lead to the conclusion that reduction of  $^{137}\text{Cs}$  activity levels in samples is on one hand the consequence of radioactive decay of  $^{137}\text{Cs}$ , and on the other hand sorption-desorption processes. Even twenty seven years after the Chernobyl accident  $^{137}\text{Cs}$  is still present in the investigated bioindicators thus also in Serbian soil.

## ARONIJA – TERMALNE I RADIOAKTIVNE KARAKTERISTIKE

**Bojan JANKOVIĆ<sup>1</sup>, Marija JANKOVIĆ<sup>2</sup> i Milica RAJAČIĆ<sup>2</sup>**

1) Univerzitet u Beogradu, Fakultet za fizičku hemiju, 11001 Beograd, Srbija,  
bojanjan@ffh.bg.ac.rs

2) Univerzitet u Beogradu, Institut Vinča, Laboratorija za zaštitu od  
zračenja i zaštitu životne sredine, 11001 Beograd, Srbija

### SADRŽAJ

*U radu su ispitivane termičke, termooksidativne i radioaktivne karakteristike svežih uzoraka Aronije melanocarpe. Utvrđeno je da kada sveži uzorci podležu termičkom stresu u različitim atmosferama (argon i vazduh), ispitivani sistem pokazuje veću otpornost na termooksidativnu degradaciju. Bilo je utvrđeno da voda ima važnu ulogu u procesu termooksidativne degradacije. Zaključeno je da termička stabilnost antioksidanata u aroniji na 350 °C predstavlja najoptimalniju vrednost temperature za ispitivanje antioksidanata koji mogu da spreče ili minimizuju negativne efekte oksidacije. Prilično male vrednosti gubitka mase na svakoj brzini zagrevanja potiču od procesa naknadnog sagorevanja. Radioaktivne karakteristike uzoraka aronije ispitane su gamaspektrometrijskom analizom. Pokazano je da je koncentracija <sup>137</sup>Cs u svim ispitivanim uzorcima ispod minimalne detekcione koncentracije, što je u skladu sa Pravilnikom Sl. gl. RS 86/11.*

### 1. Uvod

Biljka aronija (*Aronia melanocarpa*) bobičasto voće, najviše liči na borovnicu, a dobila je naziv Sibirska borovnica i to iz dva razloga. Prvi je taj što je iz Severne Amerike dospela u Sibir, a drugi zbog toga što je otporna na veoma niske temperature. Sibirska aronija dobro podnosi hladnu zimu i mraz do - 45 °C. Raste u obliku grma i ukoliko ima dovoljno prostora može dostići visinu od dva metra. Jestivi i lekoviti deo biljke je plod koji je malo oporijeg ukusa od borovnice.

Lekovita svojstva aronije je teško nabrojati, ali se ovde mogu navesti ona najpoznatija: podstiče cirkulaciju, pročišćava krv od toksina, ublažava glavobolju i migrenu, snižava povišen krvni pritisak, povoljno deluje na želudac i creva, popravljajući imunitet organizma, sprečava razvoj virusnih i bakterijskih infekcija. Važno je reći da aronija reguliše pravilan rad i izlučivanje hormona štitne žlezde, kao i da reguliše rad pankreasa, pa može biti korisna i u lečenju dijabetesa.

Antioksidativni kapacitet (ORAC - oxygen radical absorbance capacity) predstavlja jedinicu za merenje vrednosti antioksidanata u namirnicama. Nakon istraživanja koja su vršena u Sjedinjenim Američkim Državama saopšteno je da 100 grama zrelih plodova aronije sadrži 16.100 ORAC jedinica, pri čemu je poznato da je optimalna dnevna doza od 3.000 do 5.000 ORAC jedinica potrebna za adekvatnu antioksidativnu zaštitu ljudskog tkiva i plazme. Zahvaljujući tome, aronija ne samo da sprečava pojavu raka, već pomaže i u lečenju malignih oboljenja time što uništava ćelije raka.

Visoka koncentracija slobodnih radikala u organizmu oslobođenih usled "pogrešnog" dejstva prirodnih zaštitnih mehanizama može dovesti do oksidativnog stresa, prouzrokujući molekularnu disfunkciju na ćelijskom nivou, koja u svojoj osnovi ima za posledicu nastanak ozbiljnih oboljenja. Veoma važan lokalitet napada slobodnih radikala je biološka membrana. Oksidacija membranskih lipida slobodnim radikalima izaziva poremećaje u strukturi i pogoršava funkciju biološke membrane čime dovodi do

patoloških promena unutar organizma [1]. Toksičan efekat slobodnih radikala može se smanjiti ili eliminisati konzumiranjem adekvatne količine fenolnih jedinjenja koja postoje u voću i povrću. Utvrđeno je da aronija predstavlja jedan od najbogatijih biljnih izvora fenolnih jedinjenja, pri čemu je sadržaj pro-antocijanidina, antocijana i fenolne kiseline u ovoj biljci izrazito visok. *Aronija melanocarpa* bobice su jedan od najbogatijih biljnih izvora antocijana (predstavlja klasu flavonoida): cijanidin-3-*O*-galaktozid, cijanidin-3-*O*-arabinozid, cijanidin-3-*O*-ksilozid i cijanidin-3-*O*-glukozid a koji su odgovorni za tamno crvene, plave i ljubičaste boje bobica [2]. Treba napomenuti da 25 procenata od ukupnih polifenola u aronija voću predstavljaju antocijani. Od aromatičnih kiselina, najdominantnije su hlorogenična i neohlorogenična kiselina [3]. U ovom radu su predstavljeni rezultati termičkih osobina (putem termogravimetrijske (TG) i diferencijalne termijske analize (DTA)) i radioaktivnih osobina (ispitivane spektrometrijom gama emitera) svežih bobica aronije. Termičke karakteristike aronije razmatrane su u inertnim (argon) i oksidativnim (vazduh) reakcionim uslovima. Bitne razlike u fizičko-hemijskom ponašanju ovog voćnog sistema kada je on izložen termičkom i termo-oksidativnom stresu su istaknute u ovom radu, sa posebnim osvrtom na uticaj vode tokom ispitivanih transformacija.

## 2. Eksperimentalni deo

Termička stabilnost svežih uzoraka aronije je ispitivana simultanom neizotermalnom termogravimetrijskom analizom (TG) i diferencijalnom termalnom analizom (DTA) korišćenjem "SETARAM SETSYS Evolution 1750" instrumenta. Čisti argon gas (99.999%) je korišćen kao reakciona atmosfera, sa brzinom protoka gasa od  $\varphi = 20 \text{ mL min}^{-1}$ . Količina od 5 – 10 mg svežeg uzorka je zagrevana na tri različite brzine zagrevanja  $\beta = 10, 20 \text{ i } 30 \text{ }^\circ\text{C min}^{-1}$ , u atmosferi argona i vazduha (sa brzinom protoka od  $\varphi = 16 \text{ mL min}^{-1}$ ), u temperaturskom opsegu od  $30 \text{ }^\circ\text{C}$  do  $700 \text{ }^\circ\text{C}$ . Duplo neizotermalno snimanje je izvedeno pod istim uslovima i ustanovljeno je da se podaci preklapaju, uključujući kontrolno merenje za svaku brzinu zagrevanja sa približno istom masom uzorka, ukazujući na zadovoljavajuću reproduktivnost.

Za potrebe gamaspektrometrijske analize svežih uzoraka aronije, ispitano je četiri uzorka.

U šumskim ekosistemima radionuklidi se deponuju na površinu organskih slojeva drveća i drugih biljaka kao što su trava, bobice, mahovina. U ovoj vrsti uzoraka prvenstveno se određuje proizvedeni radionuklid  $^{137}\text{Cs}$ . Cezijum-137 (vreme poluraspada 30.1 god.) je fisioni proizvod, rastvorljiv u vodi, pa kao takav može brzo da uđe u biološke cikluse i da se akumulira u kopnenim ekosistemima [4]. Zbog procene rizika po ljudsko zdravlje od jonizujućeg zračenja, pri konzumaciji ove vrste voća potrebno je ispitati koncentraciju prirodnih ali i proizvedenih radionuklida koji se mogu naći u bobicama. U Republici Srbiji, granica sadržaja  $^{137}\text{Cs}$  u šumskom voću je  $150 \text{ Bq/kg}$  [5].

Priprema uzoraka za gamaspektrometrijsku analizu obuhvata odmeravanje svežih uzoraka aronije u Marineli posudi od  $500 \text{ cm}^3$ . Uzorci se mere odmah nakon pripreme na HPGe detektorima relativne efikasnosti od 18 i 20 %. Kalibracija detektora za merenje uzoraka hrane izvršena je korišćenjem silikonske smole u geometriji Marinele od  $500 \text{ cm}^3$  (Czech Metrology Institute, Praha, 9031-OL-208/08, type ERX), sa ukupnom aktivnošću od  $40.624 \text{ kBq}$  na dan 15. април 2008. Vreme merenja je  $3600 \text{ s}$ .



### 3. Rezultati i diskusija

#### 3.1. Termalna analiza u inernim i oksidativnim uslovima

TG-DTA krive procesa degradacije svežih uzoraka *Aronije melanocarpe* u atmosferi argona i vazduha na različitim brzinama zagrevanja ( $\beta = 10, 20$  and  $30 \text{ }^\circ\text{C min}^{-1}$ ) su prikazane na slici 1 (a-d).

U atmosferi argona identifikovane su tri faze procesa, dok u atmosferi vazduha postoje četiri faze procesa (slika 1 a-d). Termoanalitičke krive (slika 1 a i c) u obe atmosfere pokazuju sličan trend sa povećanjem temperature, ali njihovi karakteristični oblici na datim brzinama zagrevanja nisu isti. Pored toga, DTA krive snimljene u atmosferi argona i vazduha takođe pokazuju drugačije ponašanje kao i značajne razlike u oblicima (slika 1 b i d).

Predstavljene faze procesa su određene na osnovu osetljivosti promene nagiba termoanalitičkih krivih u obe reakcione atmosfere, gde se pregib određuje na bazi postupka povlačenja dve tangente na eksperimentalnu termoanalitičku krivu.

U oba slučaja, prva faza procesa može se pripisati mehanizmu dehidracije, gde postoji iznenadni gubitak površinske vode u primarnoj fazi procesa, a zatim do gubitka zapreminske vode koji se javlja u sekundarnoj fazi istog procesa, a što se odlikuje višom temperaturom koja prevazilazi  $100 \text{ }^\circ\text{C}$  (slika 1 a-d). Ako se uporedi ispitivani sistem pod težinskim sadržajem vode, kada je podvrgnut zagrevanju u različitim reakcionim sredinama, onda se može zaključiti da svež uzorak aronije pokazuje veću otpornost na termooksidativnu degradaciju.

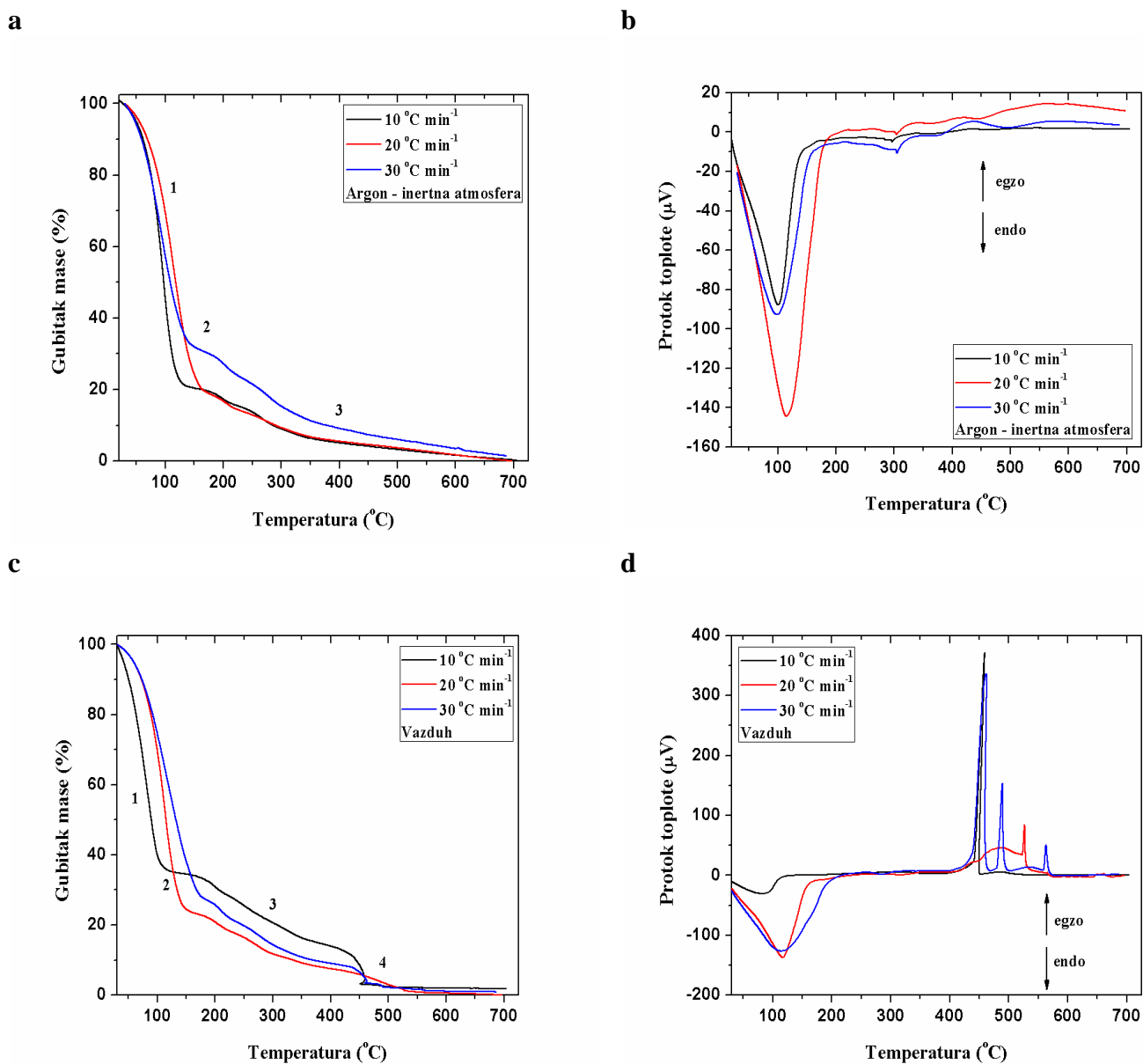
Naime, poređenjem ponašanja u prvoj fazi procesa u inernoj atmosferi, u atmosferi vazduha dati sistem ispoljava tendenciju da zadrži što je moguće veću količinu vode, nasuprot efektu toplotnog gradijenta unutar uzorka. Ovo pokazuje da voda ima važnu ulogu u procesu termooksidativne degradacije. Identifikovani fenomen se može potvrditi pojavom variranja intenziteta endotermnog efekta za prvu fazu procesa u ispitivanim atmosferama. U atmosferi argona postoji intenzivan, prilično uzak endotermni pik na svim brzinama zagrevanja, u poređenju sa istim efektom u atmosferi vazduha (slika 1 b i d).

U vazduhu, povećanje brzine zagrevanja dovodi do širenja endotermnog pika, ali je njegov intenzitet dosta slabiji. U inernoj atmosferi isparavanje je intenzivnije nego u atmosferi vazduha.

Voda postoji u hrani u različitim oblicima, slobodna voda, kapljice, voda adsorbovana na površini, hemijski vezana voda, kristalna voda. U većini slučajeva, deo ove vode teško je ukloniti, tako da dehidrirani sistemi mogu da sadrže 2 - 3% vode. Pritisak vodene pare naglo raste sa temperaturom, naročito iznad  $150 \text{ }^\circ\text{C}$ . Do  $100 \text{ }^\circ\text{C}$ , prvi deo dehidratacione faze se može pripisati slobodnoj vodi, koja sa manjom energijom učestvuje u vezivanju sa matricom, dok iznad pomenute temperature situacija odgovara snažnijoj vezanosti vode za matricu, što prouzrokuje širenje endotermnog pika u širokom temperaturskom opsegu (slika 1).

Razlika između slobodne i vezane vode nije strogo podeljena. Slobodna voda se može naći daleko od nevodene komponente. Pri zagrevanju uzorka, ravnoteža između različitih vrsta promena vode i granice između slobodne i vezane vode postaju "difuzne". Za najsporiju brzinu zagrevanja ( $10 \text{ }^\circ\text{C min}^{-1}$ ) može se primetiti da postoji mala prevojna tačka u gubitku mase na obe TG krive (slika 1 a i c), ali je to manje primetno u atmosferi vazduha, gde se odmah javlja prelaz na sledeći stadijum procesa,

koji ima direktne implikacije na narušavanje oblika DTA pika (slika 1 d). Kada je brzina zagrevanja visoka ( $30\text{ }^{\circ}\text{C min}^{-1}$ ), vezana voda ne može se tačno izmeriti, jer u prevojnoj tački nije sva slobodna voda odmah oslobođena. To se može videti na slici 1 d, kada se na  $30\text{ }^{\circ}\text{C min}^{-1}$  može primetiti pojava “ramena” na približno  $160\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Srednja brzina zagrevanja od  $20\text{ }^{\circ}\text{C min}^{-1}$  je izabrana u tom smislu da se oba tipa vode pojavljuju na  $112.52\text{ }^{\circ}\text{C}$  i  $112.80\text{ }^{\circ}\text{C}$  u atmosferi argona i vazduha, redom.



**Slika 1.** TG (a i c) i DTA (b i d) krive degradacionih procesa svežih uzoraka *Aronije melanocarpa* u inertnoj (argon) i oksidativnoj (vazduh) atmosferi; Brojevi “1, 2, 3 i 4” na datim TG krivama označavaju odgovarajuće reakcione stupnjeve

U atmosferi argona razlikuju se dve faze procesa nakon dehidracije koje se pojavljuju u temperaturskom opsegu 178.91 - 243.97 °C i 243.97 - 696.31 °C na 20 °C min<sup>-1</sup>. U inertnoj atmosferi, dehidracija predstavlja tri odvojena procesa koji se mogu posmatrati pri termičkoj degradaciji sistema. U pomenutom temperaturskom opsegu koji odgovara drugoj i trećoj fazi (u odnosu na odgovarajuće TG krive), na snimljenim DTA krivama za sve brzine zagrevanja (slika 1 b), vidi se endotermni (u okviru druge faze), a zatim egzotermni pik (u okviru treće faze).

U atmosferi vazduha mogu se primetiti tri stupnja degradacije nakon faze dehidracije. Faza dva (slika 1 c) koja se javlja u atmosferi vazduha spada u fazu dehidracije, imajući u vidu prethodnu diskusiju u vezi sa ponašanjem vode tokom termalne aktivacije u različitim reakcionim sredinama. Faze tri i četiri odlikuju egzotermni efekti (slika 1 d). Kiseonik ima dva efekta tokom termičkog razlaganja na visokim temperaturama: povećanje stvaranja pepela i kao rezultat smanjenje isparenja kao i masovnu pojavu "klasternih" i oštih DTA pikova (slika 1 d).

Na osnovu ovih rezultata može se zaključiti da je u oksidativom okruženju termičko razlaganje aronije mnogo složenije nego u inertnoj atmosferi, naročito na visokim temperaturama. Kao što se može videti sa slike 1 a-d, ispod 200 °C, svež uzorak pokazuje slično ponašanje tokom procesa isparavanja u obe reakcione atmosfere. Blizu 250 °C, prisustvo kiseonika izaziva oštar pad u gubitku mase, što je mnogo brže nego u atmosferi argona.

Ovakve transformacije će dovesti do pojave nekih razlika u termičkom razlaganju na niskim i visokim temperaturama (slika 1 c i d). Međutim, ne postoji primetna razlika u atmosferi argona (slika 1 a i b). U vazduhu, iznad 350 °C (slika 1 d), DTA krive pokazuju slične pikove pri čemu se neki od njih preklapaju.

Najvažniji sastojci aronije (odgovorni za njena zdravstvena svojstva) su fenolna jedinjenja. To su pro-antocijanidini, antocijani i fenolna kiselina [6]. Aronija se odlikuje time što sadrži B tip pro-cijanidina sa (-)-epikatehinom kao glavnom monomernom podjedinicom. Takođe, aronija sadrži hlorogeničnu i neohlorogeničnu kiselinu, koje predstavljaju dve dominantne fenolne kiseline. Faktori kao što su lokacija, datum berbe, sorta, oplodnja, sazrevanja bobica, mogu uticati na njihov sadržaj. Antocijanidini su vrlo nestabilni ispod 150 °C gde su podložni termičkom razlaganju u inertnoj atmosferi. Jedan od najverovatnijih mehanizama jeste hidroliza 3-glikozida, gde je za cepanje glikozidne veze potrebna toplota, pri čemu je proces endoterman i verovatno se javlja u drugoj fazi procesa (slika 1 a i b). U inertnoj atmosferi antocijanidini su osetljiviji na temperaturu zagrevanja u odnosu na ostale fenole. U kasnijoj, trećoj fazi procesa, egzotermno ponašanje je dominantno (slika 1 a i b), pri čemu se može očekivati reakcija krekovanja preostalih organskih jedinjenja koji su dobijeni iz prethodne faze a uz oslobađanje lakih ugljovodonika i ugljenih hidrata (glukoze, fruktoze, kao i sorbitola). Na veoma visokim temperaturama (iznad 600 °C), identifikovana je mala količina pepela koji je nastao iz procesa karbonizacije.

Oksidativni stres je važan da se analizira stanje oksidativnih oštećenja nastalih kada je ravnoteža između slobodnih radikala i antioksidativnih odbrana poremećena.

U atmosferi vazduha ne postoje endotermni efekti nakon prve dve faze procesa (slika 1 d). Na osnovu rezultata termoanalitičkih merenja u atmosferi vazduha može se zaključiti da su antioksidanti koji su prisutni u aroniji veoma stabilni i do visokih temperatura. Ozbiljne promene u antioksidantima mogu se posmatrati u temperaturskom opsegu od 375 – 575 °C. Termička stabilnost antioksidanata u aroniji do temperature od 350 °C je najadekvatniji temperaturski opseg za ispitivanje antioksidanata koji mogu da spreče ili

minimizuju negativne efekte oksidacije. Na visokim temperaturama, pojava velikog broja egzotermnih pikova na DTA krivama (slika 1 d) je posledica oksidacije preostale organske materije. Nakon toga male vrednosti gubitka mase na svakoj brzini zagrevanja proističu iz procesa naknadnog sagorevanja.

#### a. Radioaktivne osobine

U četiri uzorka aronije detektovani su prirodni radionuklidi  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{40}\text{K}$  u koncentracijama 7 - 49 Bq/kg i 50 - 330 Bq/kg, redom. Koncentracija proizvedenog radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  je u svim ispitivanim uzorcima manja od minimalne detekcione koncentracije.

### 4. Zaključak

U ovom radu su ispitivane termičke, termooksidativne i radioaktivne karakteristike svežih uzoraka aronije. Utvrđeno je da sveži uzorak aronije pokazuje veću otpornost na termooksidativnu degradaciju. Naime, u poređenju sa ponašanjem sistema u dehidratacionoj fazi procesa u atmosferi argona, u oksidativnoj (vazduh) atmosferi, sistem je pokazao tendenciju ka zadržavanju što veće količine vode, nasuprot efektu toplotnih gradijenata unutar datog uzorka. Ovaj fenomen je pokazao da voda ima važnu ulogu u procesu termooksidativne degradacije. Pokazano je da kiseonik ispoljava dva bitna efekta tokom termalne degradacije na visokim temperaturama, a to su : 1) povećanje prinosa pepela što kao rezultat ima smanjenje isparljivih organskih komponenata i 2) prouzrokuje takav gubitak u masi uzorka, što za posledicu ima grupisanje i pojavu oštrih DTA pikova na konkretnim vrednostima temperatura. Što se tiče prirodnih i proizvedenih radionuklida u uzorcima aronije, detektovani su prirodni radionuklidi  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{40}\text{K}$ , dok proizvedeni radionuklid  $^{137}\text{Cs}$  nije detektovan.

### Zahvalnica

Ovaj rad je finansijski podržan od strane Ministarstva za prosvetu, nauku i tehnološki razvoj Republike Srbije, u okviru projekata 172015 i III43009.

### 5. Literatura

- [1] V. Lobo, A. Patil, A. Phatak and N. Chandra. Free radicals, antioxidants and functional foods: Impact on human health. *Pharmacogn. Rev.* 4 (2010) 118-126.
- [2] J. Oszmiański and J. C. Sapis. Anthocyanins in fruits of *Aronia melanocarpa* (chokeberry). *J. Food Sci.* 53 (1988) 1241-1242.
- [3] R. Slimestad, K. Torskangerpoll, H. S. Nateland, T. Johannessen and N. H. Giske. Flavonoids from black chokeberries *Aronia melanocarpa*. *J. Food Compos. Anal.* 18 (2005) 61-68.
- [4] L. Bourcier, K. Sellegri, O. Masson, R. Zangrando, C. Barbante, A. Gambaro, J. M. Pichon, J. Boulon and P. Laj. Experimental evidence of biomass burning as a source of atmospheric  $^{137}\text{Cs}$ , puy de Dome (1465 m a.s.l.), France. *Atmosph. Environ.*, 44 (2010) 2280-2286.
- [5] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet (Sl. gl. RS 86/11), 2011.
- [6] H. Wangensteen, M. Bräunlich, V. Nikolic, K. E. Malterud, R. Slimestad and H. Barsett. Anthocyanins, proanthocyanidins and total phenolics in four cultivars of aronia: Antioxidant and enzyme inhibitory effects. *J. Funct. Foods.* 7 (2014) 746-752.

## THERMAL AND RADIOACTIVE PROPERTIES OF *ARONIA MELANOCARPA*

**Bojan JANKOVIĆ<sup>1</sup>, Marija JANKOVIĆ<sup>2</sup> and Milica RAJAČIĆ<sup>2</sup>**

1) *University of Belgrade, Faculty of Physical Chemistry, Department for Dynamics and Matter Structure, Studentski trg 12-16, P. O. Box 137, 11001 Belgrade, Serbia,*

*bojanjan@ffh.bg.ac.rs*

2) *University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences, Radiation and Environmental Protection Department, 11001 Belgrade, Serbia*

### ABSTRACT

Thermal, thermo-oxidative and radioactive characteristics of *Aronia melanocarpa* fresh samples were investigated. It was found that when the fresh samples of *Aronia melanocarpa* undergo to thermal stress under various atmospheres (argon and air), the studied system shows higher resistance to thermo-oxidative degradation. It has been shown that water plays a more important role in the process of thermo-oxidative degradation than in an inert atmosphere. It was concluded that the thermal stability of antioxidants in *Aronia melanocarpa* up to 350 °C was the best value for studying the actual antioxidants, which can prevent or minimize most effectively the thermal-oxidative damage. It was found that rather small residual mass loss values at every considered heating rates arise from post-combustion processes.

Radioactive characteristics in *Aronia melanocarpa* were determined by gamma spectrometry using an HPGe detector. The obtained results showed that the activity concentration of <sup>137</sup>Cs in all investigated samples were below the MDC (minimum detectable concentration). Recommended level of activity concentration for <sup>137</sup>Cs in *Aronia* in Serbia is 150 Bq/kg. All the samples met the defined criteria of radiological safety.

## RADIOAKTIVNOST VITAMINSKO –MINERALNIH DODATAKA ZA STOČNU HRANU U 2014. GODINI

**Dubravka VUKOVIĆ<sup>1</sup>, Mihajlo VIĆENTIJEVIĆ<sup>1</sup>, Gordana PANTELIĆ<sup>2</sup>,  
Branislava MITROVIĆ<sup>3</sup>**

1) Naučni institut za veterinarstvo Srbije, Beograd, Srbija, [dubakaiva@gmail.com](mailto:dubakaiva@gmail.com)

2) Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke Vinča, Beograd, Srbija,  
[pantelic@vinca.rs](mailto:pantelic@vinca.rs)

3) Univerzitet u Beogradu, Fakultet veterinarske medicine, Beograd, Srbija,  
[radijacija@vet.bg.ac.rs](mailto:radijacija@vet.bg.ac.rs)

### SADRŽAJ

*U radu su prikazani rezultati ispitivanja radioaktivnosti mineralno-vitaminskih dodataka za stočnu hranu iz uvoza u toku 2014. godine. Većina uzoraka je imala niske aktivnosti <sup>137</sup>Cs, <sup>40</sup>K i <sup>238</sup>U. U četiri uzorka mineralnih dodataka, kao što su mono i dikalcijum fosfat, nađen je visok sadržaj <sup>238</sup>U koji se kretao do 3250 Bq/kg.*

### 1. Uvod

Radionuklidi dospevaju u organizam životinje obično preko hrane koja mora da bude dobro izbalansirana da bi zadovoljila sve njihove potrebe. Zato se u njihovu hranu dodaju vitamini i minerali. Jedna vrsta mineralne sirovine su i monokalcijum (MCP) i dikalcijum fosfati (DCP) koji služe da zadovolje potrebe životinja za Ca i P. Oni se upotrebljavaju u potpunim i dopunskim smešama radi obezbeđivanja potrebe tih životinja za koje je pripremljena ta smeša. Ca i P je potrebno obezbediti životinjama radi pravilnog rasta i razvoja tela, kosti i optimalne proizvodnje (mleka, mesa, jaja...itd.). Monokalcijum fosfat je hemijsko jedinjenje sa formulom Ca(H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>. Dikalcijum fosfat (kalcijum monohidrogen fosfat) je dibazični kalcijum fosfat, sa hemijskom formulom CaHPO<sub>4</sub> • 2H<sub>2</sub>O. Nije rastvorljiv u vodi i sadrži oko 29.5 procenata kalcijuma u anhidratnoj formi [1].

U procesu proizvodnje fosforne kiseline zajedno sa fosforom prelazi i uran čiji sadržaj zavisi od porekla sirovine i može da i ide od <100 do 4500 Bq/kg [2]. Ispitivanje radioaktivnosti u hrani za životinje je jedan od uslova za dobijanje zdravih životinja. Nizak faktor prelaza kod nekih životinja (goveda 10<sup>-4</sup>) ne znači da životinje mogu da unose velike količine urana, pošto putem fecesa dolazi do kontaminacije životne sredine [3].

### 2. Materijal i metode

Laboratorija za radijacionu higijenu u Naučnom institutu za veterinarstvo Srbije, koja je akreditovana za ispitivanje radioaktivnosti u hrani, vrši gamaspektometrijska ispitivanja sadržaja radionuklida u namirnicama i hrani za životinje koje se uvoze u Srbiju.

U 2014. godini ispitano je 1138 uzoraka stočne hrane, životnih namirnica i predmeta opšte upotrebe, od kojih je 70 analiza izvršeno u vitaminskim, mineralnim i vitaminsko-mineralnim dodacima za stočnu hranu. Uzorci su mereni na visokorezolucionom čistom germanijumskom poluprovodničkom detektoru (HPGe) firme ORTEC, relativne efikasnosti 30% i rezolucije 1.80 keV na energiji od 1332.5 keV, u Marineli posudama od 0.5 l.

Energetska kalibracija i efikasnost je određena pomoću standarda u istoj geometriji, matriks smola sa mešavinom radionuklida (<sup>241</sup>Am, <sup>109</sup>Cd, <sup>57</sup>Co, <sup>139</sup>Ce, <sup>203</sup>Hg, <sup>113</sup>Sn, <sup>85</sup>Sr,

$^{137}\text{Cs}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ), LR 320, tip MBSS2, Cert.No: 9031-OL-028/07, Češkog metrološkog instituta. Vreme merenja uzoraka iznosilo je 3600 s, a po potrebi su vršena i duža merenja. Osnovno zračenje je mereno 60000 s.

U laboratoriji se sprovode međuprovere detektora jedanput nedeljno po utvrđenim procedurama [4]. Proverava se efikasnost germanijumskog detektora, širina gama linije  $^{60}\text{Co}$  1332.5 keV na polovini i na desetini visine, kao i odstupanje izmerene energije  $^{60}\text{Co}$  od prave vrednosti 1332.5 keV. Laboratorija učestvuje svake godine u interkomparacijama koje organizuje Međunarodna agencija za atomsku energiju i postiže odlične rezultate [5].

### 3. Rezultati i diskusija

U tabeli broj 1 su prikazani rezultati određivanja aktivnosti radionuklida  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  i  $^{238}\text{U}$  u vitaminskim, mineralnim i vitaminsko-mineralnim dodacima za stočnu hranu. Prikazane su minimalne, maksimalne i srednje vrednosti sa standardnom devijacijom. Zbog velikih raspona aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{238}\text{U}$  standardna devijacija je veća od srednje vrednosti kod vitamina ( $^{137}\text{Cs}$ ) i mineralnih dodataka ( $^{238}\text{U}$ ). Kod proračuna srednje vrednosti uzeti su svi rezultati merenja, pri čemu su za uzorke čija je aktivnost ispod granice detekcije uzete vrednosti MDA (minimalna detektovana aktivnost).

**Tabela 1. Rezultati određivanja aktivnosti radionuklida  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  i  $^{238}\text{U}$  u vitaminskim, mineralnim i vitaminsko-mineralnim dodacima za stočnu hranu**

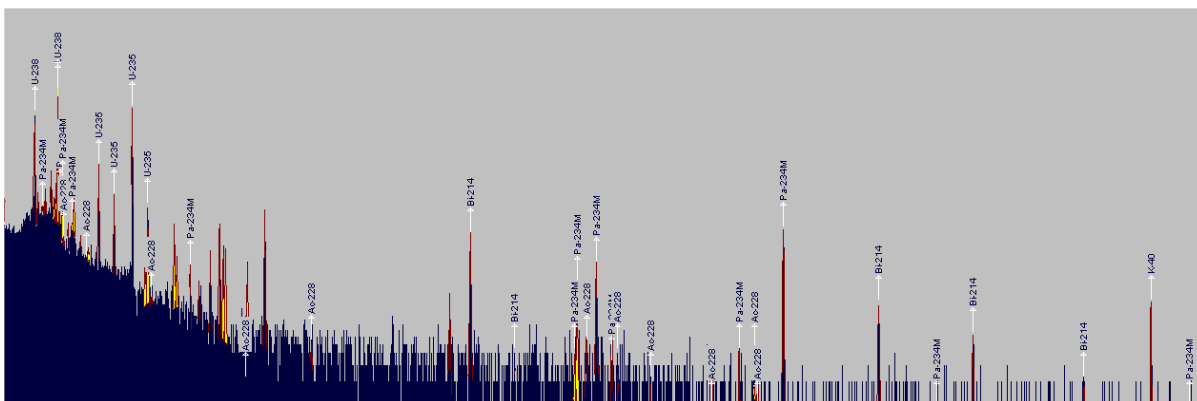
Vrsta uzorka	Broj uzoraka	Vrednost	$^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg)	$^{40}\text{K}$ (Bq/kg)	$^{238}\text{U}$ (Bq/kg)
Vitamini	22	min-max	0.04 – 1.17	9 – 316	< 10
		sr.vred. ± sd	0.24 ± 0.27	62 ± 58	< 10
Mineralni dodaci	20	min-max	0.03 – 0.62	4 – 81	< 10 – <b>3250</b>
		sr.vred. ± sd	0.35 ± 0.29	43 ± 32	530 ± 1100
Vitaminsko – mineralni dodaci	28	min-max	0.03 – 0.87	6 – 478	< 10
		sr.vred. ± sd	0.34 ± 0.21	108 ± 72	< 10

Može se videti da su jedino vrednosti za aktivnost urana u mineralnim dodacima povećane. Premda je u većini uzoraka aktivnost  $^{238}\text{U}$  bila ispod granice detekcije (manje

od 10 Bq/kg), u četiri uzorka mono i dikalcijum fosfata vrednosti za uran su iznosile od (2200 ± 200) Bq/kg do (3250 ± 300) Bq/kg.

Na slici 1 je prikazan spektar uzorka dikalcijum fosfata u kome je izmerena najveća vrednost aktivnosti  $^{238}\text{U}$  u 2014. godini. Zbog toga što je ova vrednost visoka, pored gama linija 63.2 i 92.8 keV ( $^{234}\text{Th}$ ) koje se mogu lako uočiti i u drugim uzorcima, ovde se odlično vidi i gama inija 1001 keV od  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ , koja je male verovatnoće (0.847 %) i koja se u drugim uzorcima ne primećuje.

U hrani za ljude sadržaj urana je veoma nizak – reda mBq/kg za većinu namirnica, a izuzetak su morske školjke kod kojih je 2-3 Bq/kg [6]. Hrana i voda za životinje bi trebale da imaju iste vrednosti kao i hrana i voda za ljude, međutim u našem pravilniku još uvek nisu definisane granice za hranu, što predstavlja veliki problem kod uvoza [7].



**Slika 1. Spektar uzorka dikalcijum fosfata u kome je izmerena najveća vrednost aktivnosti  $^{238}\text{U}$  u 2014. godini**

#### 4. Zaključak

U analiziranim uzorcima vitaminsko –mineralnih dodataka za stočnu hranu u 2014. godini utvrđen je gamaspektrometrijskim merenjima visok sadržaj urana u četiri uzorka mono i dikalcijum fosfata, od 2200-3520 Bq/kg. Neophodno je zakonsko definisanje maksimalnih vrednosti urana u hrani.

#### 5. Literatura

- [1] [https://sr.wikipedia.org/wiki/Dikalcijum\\_fosfat](https://sr.wikipedia.org/wiki/Dikalcijum_fosfat) (2015)
- [2] Arruda-Neto JDT, Tavares MV, Filadelfo M. Concentration of uranium in animal feed supplements, measurements and dose estimates. *J. Radioan. Nucl. Chem.* 221 (1-2) (1997) 97-104.
- [3] Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical reports series No.472, 2010. IAEA, Viena, Austria.
- [4] Quality system implementation for nuclear analytical techniques. Training course series 24. 2004. IAEA, Vienna, Austria.
- [5] Dubravka Vuković, Gordana Pantelić, Mihajlo Vićentijević. Rezultati interkomparacije određivanja sadržaja radionuklida u vodi i zemljištu IAEA-2011-03,



Zbornik radova, Vrnjačka Banja 2-4. oktobar 2013. Urednici: O. Ciraj-Bjelac, G. Pantelić, ISBN 978-86-7306-115-3 (2013) 398-401.

[6] Andrew J. Pearson, Sally Gaw, Nikolaus Hermanspahn, Chris N. Glove. Natural and anthropogenic radionuclide activity concentrations in the New Zealand diet. *J. Environ. Radioact.*, [doi:10.1016/j.jenvrad.2015.05.022](https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.05.022), in press (2015)

[7] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet. Službeni glasnik RS 86/2011 i 97/2013.

## **RADIOACTIVITY OF MINERAL –VITAMIN SUPPLEMENTS OF FEED IN 2014**

**Dubravka VUKOVIĆ<sup>1</sup>, Mihajlo VIĆENTIJEVIĆ<sup>1</sup>, Gordana PANTELIĆ<sup>2</sup>,  
Branislava MITROVIĆ<sup>3</sup>**

1) *Institute of Veterinary Medicine of Serbia, Belgrade, Serbia, [dubakaiva@gmail.com](mailto:dubakaiva@gmail.com)*

2) *University in Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, Serbia,  
[pantelic@vinca.rs](mailto:pantelic@vinca.rs)*

3) *University in Belgrade, Faculty of veterinary medicine, Belgrade, Serbia,  
[radijacija@vet.bg.ac.rs](mailto:radijacija@vet.bg.ac.rs)*

### **ABSTRACT**

In this work we presented the gamma-spectrometric measurement results of mineral and vitamin feed supplements in the 2014. <sup>137</sup>Cs, <sup>40</sup>K and <sup>238</sup>U activity concentrations in the most samples were very low. In four samples of mono- and dicalcium phosphates we found high levels of <sup>238</sup>U from 2200 to 3250 Bq/kg.

# RADIOLOŠKA ANALIZA UZORAKA PODZEMNIH VODA DONJE ŽUPE, ALEKSANDROVAC, SRBIJA: SADRŽAJ RADIONUKLIDA I PROCENA RIZIKA

**Mirjana ĐURAŠEVIĆ<sup>1</sup>, Miroljub MILINČIĆ<sup>2</sup>, Ivana VUKANAC<sup>1</sup>, Aleksandar KANDIĆ<sup>1</sup>, Bojan ŠEŠLAK<sup>1</sup>, Zoran MILOŠEVIĆ<sup>1</sup> i Boris LONČAR<sup>3</sup>**

1) Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Laboratorija za nuklearnu i plazma fiziku,  
Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija, [mirad@vinca.rs](mailto:mirad@vinca.rs)

2) Geografski fakultet, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija, [mikan@gef.bg.ac.rs](mailto:mikan@gef.bg.ac.rs)

3) Tehnološko Metalurški fakultet, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija,  
[bloncar@tmf.bg.ac.rs](mailto:bloncar@tmf.bg.ac.rs)

## SADRŽAJ

*Obaveza radiološke analize vode za piće regulisana je nacionalnom legislativom kao i dugoročnim planom monitoringa životne sredine. U vodi za piće može se detektovati prisustvo prirodnih radionuklida (uranove, torijumove serije i <sup>40</sup>K), kao i veštačkih radionuklida (<sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>3</sup>H...). U radu su prikazani rezultati gamaspektrometrijskih merenja četiri uzorka bunarske vode sa teritorije Aleksandrovačke Župe (Donja Župa), Srbija. Dobijene specifične aktivnosti za <sup>40</sup>K, <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>226</sup>Ra, <sup>210</sup>Pb, <sup>232</sup>Th, i <sup>137</sup>Cs manje su od vrednosti dozvoljenih odgovarajućim Pravilnikom Agencije za zaštitu od jonizujućeg zračenja i nuklearnu sigurnost Srbije. Godišnja efektivna doza, izračunata je na osnovu dobijenih specifičnih aktivnosti, kojoj je izložena odrasla osoba usled konzumiranja ovih pijaćih voda. Dobijene godišnje efektivne doze manje su od vrednosti preporučenih od strane Svetske Zdravstvene Organizacije (0.1 mSv/godini), osim za IV uzorak vode, koji je potrebno ponovo izmeriti sa većom početnom količinom.*

## 1. Uvod

Voda kao sastavni deo životne sredine ima veliki značaj i uticaj na ljude, ekosisteme i planetu kao celinu. Najveće količine vode odlaze za ljudske potrebe, pri čemu, usled stalnog porasta broja ljudi na Zemlji, potrebe za zdravom pijaćom vodom konstantno rastu.

Pored uobičajene kontrole kvaliteta vode, potrebno je pratiti i prisustvo radionuklida, o čemu postoje brojni naučni radovi [1, 2, 3]. Prirodni radionuklidi, kao što su <sup>40</sup>K i radionuklidi uranovog i torijumovog niza prisutni su u vodi usled prirodnih procesa (erozija zemljišta, apsorpcija kroz zemljište) ili tehnoloških procesa (proizvodnja veštačkih đubriva). Pored prirodnih u vodi se mogu naći i veštački radionuklidi (<sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y, <sup>131</sup>I) koji potiču uglavnom iz nuklearnih postrojenja [4]. Jednom kada se nađu u vodi, radionuklidi, u zavisnosti od njihove rastvorljivosti ili sposobnosti da se hemijski vezuju, mogu ostati u vodi, ili se mogu zadržati na okolnom zemljištu i stenama [5].

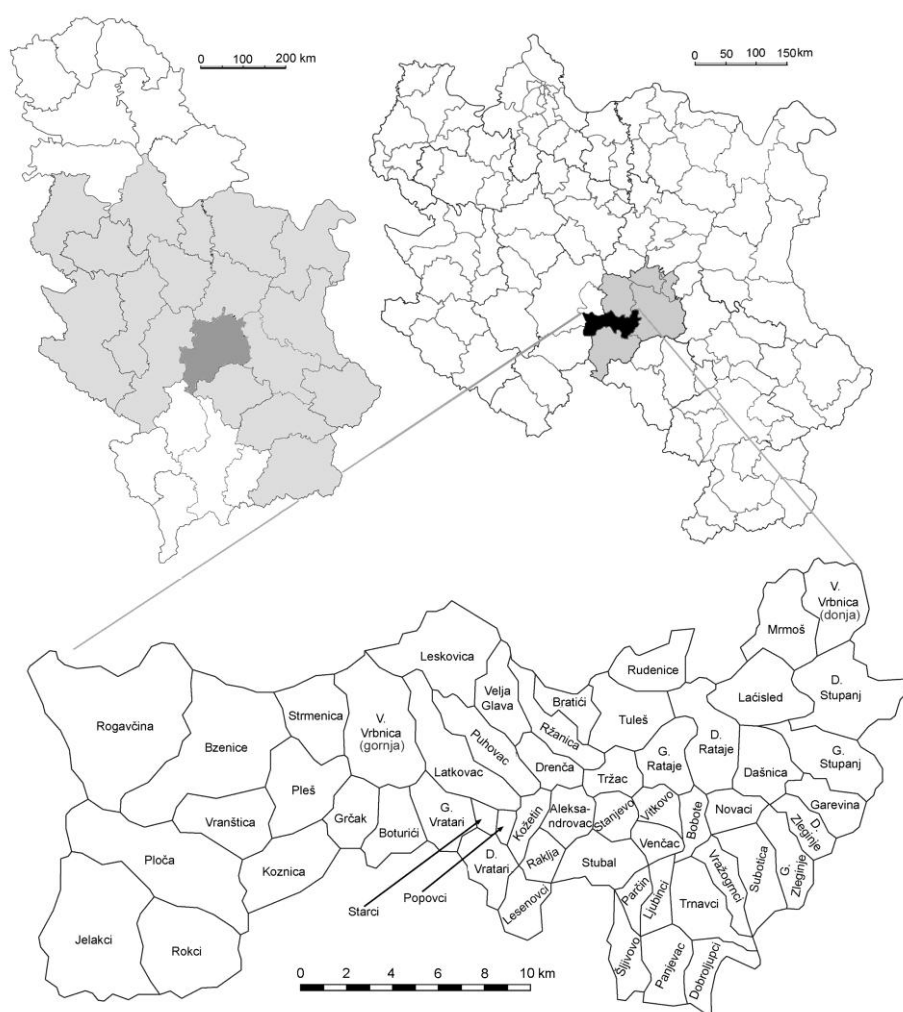
Prisustvo radionuklida u vodi utiče na zdravlje ljudi, a u cilju procene rizika određuje se efektivna godišnja radijaciona doza koju čovek primi usled korišćenja pijaće vode. Prema preporuci Svetske Zdravstvene Organizacije (WHO) referentni nivo efektivne doze (RDL) iznosi 0.1 mSv/god, pri čemu se uzima u obzir da odrasla osoba popije 2 l vode dnevno [4].

U radu su prikazani rezultati gamaspektrometrijskih merenja bunarskih/pijaćih voda na teritoriji Donje Župe (opština Aleksandrovac) i data je procena radiološkog rizika od korišćenja istih za piće.

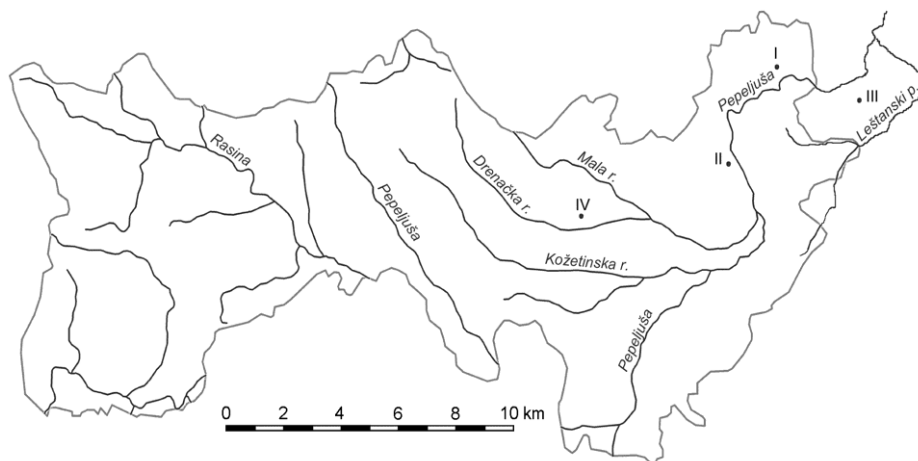
## 2. Materijal i metode

Aleksandrovačka Župa se nalazi u južnoj polovini centralne Srbije (55 968 km<sup>2</sup>). Obuhvata prostor između Kopaoničke grupe planina na zapadu, doline donjeg toka Zapadne Morave i Kruševačkog basena na severu, donjeg toka Rasine i zapadnih ogranaka Velikog Jastrepca na istoku i srednjeg toka Rasine na jugu. Na Slici 1. prikazan je položaj teritorije u sklopu Srbije sa administrativnom podelom na nivou atara statistički evidentiranih naselja opštine Aleksandrovac.

Župu, kao i njenu neposrednu okolinu, izgrađuju magmatske, sedimentne i metamorfne stene različite starosti. Rečna mreža Župe je razgranata, ali neravnomerno razvijena što ukazuje na izdiferencirane uslove veličine i brzine oticanja padavina prema periodičnim i stalnim vodotokovima [6]. Sve to, naravno, utiče na prisustvo i karakteristike radionuklida u bunarskoj vodi.



**Slika 1. Administrativno-teritorijalni položaj sa atarima naselja opštine Aleksandrovac**



Slika 2. Lokacije uzorkovanih podzemnih voda

Uzorkovanje vode izvršeno je tokom 2014. godine. Uzorak na lokaciji I uzet je iz kopanog i ozidanog bunara u zapadnom delu atara Velike Vrbnice donje, starog više od 70 godina. U periodu uzorkovanja nivo vode je bio na dubini od 7 m, a ukupna dubina bunara je 10 m. Uzorak II je iz subarteškog bunara ( $\varphi = 160$  mm) u naselju Laćisled, neposredno sa desne strane državnog puta IIA reda, broj 207, Aleksandrovac - Kruševac. Bušotina (izdašnost 1,7 l/s) je urađena tokom 2002. godine do dubine od 54 m, a nivo vode je na dubini od 13 m. Ova bušotina je kaptirala vode tri vodonosna horizonta: 20 m, 38 m i 52 m - 54 m. Treći uzorak je sa kaptiranog izvora u naselju Žabare (administrativna teritorija grada Kruševca). Izvorišta podzemnih voda iz kojih je uzorkovana voda koriste se u lokalnim domaćinstvima kao vrlo cenjeni izvori pijaće vode, naročito tokom letnjeg dela godine. Takođe, koriste se za zalivanje poljoprivrednih kultura, napajanje stoke i sl.

Svaki od uzoraka sadržao je oko 50 l vode. Vode su zakiseljene sa 11M HCl (10 ml po litri vode) prema preporuci datoj od strane IAEA [7], uparene su do suvog ostatka (uzorak I, II i III imaju: 2.6 g/l, 1.4 g/l i 3.7 g/l suvog ostatka, respektivno). Dobijeni suvi ostaci upakovani su u geometriju cilindrične kutijice od 125 ml zatopljeni i skladišteni tokom šest nedelja, da bi se uspostavila radioaktivna ravnoteža između  $^{226}\text{Ra}$  i njegovih potomaka.

Pored ova tri uzorka merena je i voda (uzorak IV) uzeta iz kopanog bunara u naselju sela Tržac, opština Aleksandrovac. Uzorak od oko 1.5 l ove vode uparen je do 120 ml, upakovan u geometriju cilindrične flašice i zatopljen i skladišten tokom šest nedelja.

Uzorci su mereni na poluprovodničkom HPGe spektrometru (ORTEC GEM-30,  $\varepsilon_r = 37\%$ ,  $FWHM = 1.8$  keV). Spektrometar je kalibrisan pomoću odgovarajućih standarda pripremljenih u Laboratoriji za nuklearnu i plazma fiziku, INN Vinča, pomoću osnovnog rastvora miksa radionuklida ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{88}\text{Y}$ ) [8]. Za uzorke vode uparene do suvog (I, II i III) korišćeni su standardi uglja i zemlje, dok je za uzorak vode (IV) korišćen standard vode koji pored već navedenog miksa radionuklida sadrži i  $^{210}\text{Pb}$ . Da bi se postigla prihvatljiva statistička merna nesigurnost, merenja su trajala između 104 000 s i 237 000 s.

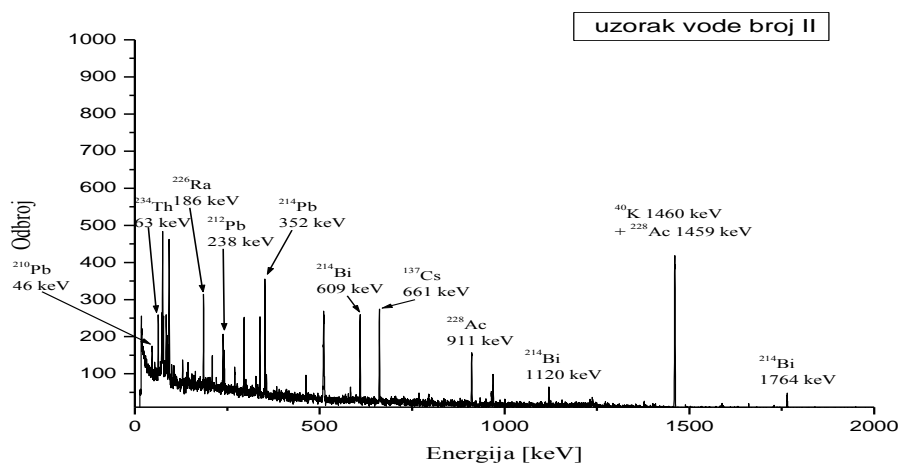
### 3. Rezultati merenja

U Tabeli 1. prikazane su izmerene specifične aktivnosti za sva četiri uzorka vode, a na Slici 1. prikazan je spektar vode uzorka broj dva.

Specifične aktivnosti  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{208}\text{Tl}$  i  $^{137}\text{Cs}$  određene su analizom pikova na energijama 1460.83 keV, 46.54 keV, 143.77 keV, 583.187 keV i 661.66 keV, respektivno, pri čemu je kod  $^{40}\text{K}$  uzeta u obzir i korekcija za doprinos  $^{228}\text{Ac}$  (1459.14 keV). Specifična aktivnost  $^{238}\text{U}$  određena je preko potomka  $^{234}\text{Th}$  (63.3 keV), a takođe i proverena preko  $^{234\text{m}}\text{Pm}$  (1001 keV), ukoliko se ta linija mogla uočiti na spektru, dok je specifična aktivnost  $^{232}\text{Th}$  određena preko potomka  $^{228}\text{Ac}$  (911.16 keV i 968.97 keV). Specifična aktivnost  $^{226}\text{Ra}$  određena je preko potomaka  $^{214}\text{Pb}$  (295.224 keV i 351.932 keV) i  $^{214}\text{Bi}$  (609.312 keV, 1120.287 keV i 1764.494 keV) na osnovu uspostavljene radioaktivne ravnoteže, a takođe i proverena preko 186.21 keV uzimajući u obzir doprinos  $^{235}\text{U}$  (185.72 keV).

**Tabela 1. Specifične aktivnosti gama emitera u merenim uzorcima vode**

Specifična aktivnost [mBq/l]	Broj uzorka			
	I	II	III	IV
$^{40}\text{K}$	$550 \pm 30$	$370 \pm 20$	$207 \pm 12$	$200 \pm 10$
$^{137}\text{Cs}$	$1.4 \pm 0.2$	$14 \pm 1$	$5.8 \pm 0.6$	$44.5 \pm 7.8$
$^{210}\text{Pb}$	$< 100$	$< 80$	$< 160$	$< 6000$
$^{214}\text{Pb}$	$27 \pm 2$	$< 3$	$7.9 \pm 0.6$	$< 130$
$^{214}\text{Bi}$	$32 \pm 2$	$< 3$	$9.2 \pm 0.6$	$< 130$
$^{226}\text{Ra}$	$30 \pm 2$	$< 3$	$8.6 \pm 0.6$	$< 130$
$^{238}\text{U}$	$100 \pm 10$	$19 \pm 2$	$< 30$	$380 \pm 60$
$^{235}\text{U}$	$4.1 \pm 0.5$	$3.0 \pm 0.5$	$< 1$	$22 \pm 4$
$^{232}\text{Th}$ ( $^{228}\text{Ac}$ )	$6 \pm 1$	$33.9 \pm 2.5$	$64.3 \pm 4.5$	$160 \pm 60$
$^{208}\text{Tl}$	$1.4 \pm 0.1$	$1.3 \pm 0.2$	$2.2 \pm 0.4$	$< 20$



**Slika 3. Spektar uzorka II sa obeleženim linijama**

Nesigurnosti specifičnih aktivnosti prikazane u Tabeli 1 date su na nivou poverenja  $1\sigma$ , a računane su pomoću opšteg zakona propagacije merne nesigurnosti. Pri obračunu mernih nesigurnosti najveći doprinos je od statističke nesigurnost pikova u spektru uzorka (do 20 %) i nesigurnosti određivanja krive efikasnosti (5 %), dok se merne nesigurnosti merenja mase i zapremine mogu zanemariti.

Kako su u pitanju uzorci niske aktivnosti neki od radionuklida bili su ispod nivoa detekcije, pa je za njih određena minimalna detektabilna koncentracija (MDC):

$$MDC = \frac{4.66 S_b}{\varepsilon(E)P_\gamma V} \quad (1)$$

gde su:

$\varepsilon(E)$  efikasnost detekcije na energiji  $E$ ,  $P_\gamma$  prinos fotona na energiji  $E$ ,  $V$  zapremina uzorka (početna) i  $S_b = \sqrt{B/t_m}$  ( $B$  je brzina brojanja fona, a  $t_m$  je vreme merenja uzorka).

Da bi se procenila doza koju stanovništvo primi konzumiranjem analizirane vode za piće neophodno je pored određenih specifičnih aktivnosti radionuklida u vodi (Tabela 1), znati i godišnju potrošnju vode odrasle osobe i konverzije faktore doza za date radionuklide. U našim proračunima koristili smo podatak Svetske Zdravstvene Organizacije da odrasla osoba dnevno u proseku popije 2 l vode, što na godišnjem novou iznosi 730 l. U Tabeli 2. dati su konverzioni faktori doza za radionuklide korišćene u proračunima efektivne doze.

**Tabela 2. Konverzioni faktori doza za neke radionuklide [4]**

Radionuklid	Konverzioni faktori doza [mSv/Bq]
$^{238}\text{U}$	$4.5 * 10^{-5}$
$^{226}\text{Ra}$	$2.8 * 10^{-4}$
$^{210}\text{Pb}$	$6.9 * 10^{-4}$
$^{232}\text{Th}$	$2.3 * 10^{-4}$
$^{40}\text{K}$	$6.2 * 10^{-6}$
$^{137}\text{Cs}$	$1.3 * 10^{-5}$

Godišnja doza koju čovek prima korišćenjem vode za piće za jedan radionuklid računa se na sledeći način:

$$D = A_{sp} k V_{god} \quad (2)$$

gde je  $D$  godišnja doza (mSv/god),  $A_{sp}$  koncentracija radionuklida (Bq/l),  $k$  konverzioni faktor doze za dati radionuklid (mSv/Bq) i  $V_{god}$  godišnja potrošnja vode (l/god).

Ukupna godišnja doza za određenu vodu dobija se kada se saberu godišnje doze detektovanih radionuklida. Na taj način dobijene su vrednosti od 0.03 mSv/godini, 0.02 mSv/godini, 0.05 mSv/godini i 0.03 mSv/godini (bez  $^{210}\text{Pb}$ ) za uzorke od I do IV, respektivno.

## 8. Diskusija i zaključak

U radu su prikazani rezultati gamaspektrometrijske analize četiri uzorka vode sa teritorije Donje Župe, od čega su tri bunarske vode (I, II i IV), a jedan uzorak (III) je kaptirana izvorska voda. U okviru neogenog basena Donje Župe dominiraju dva tipa izdani: zbijeni i pukotinski. Generalno pregled rezultata analiza podzemnih voda u Donjoj Župi ukazuju da mineralizacija varira od 700 mg/l do 1459 mg/l. U anjonskom sastavu javljaju se hidrokarbonati sa sadržajima od 574 mg/l do 691 mg/l. Hloridi su prisutni u sadržajima od 63 mg/l do 333 mg/l, a sulfati od 62 mg/l do 70.5 mg/l. U katjonskom sastavu joni natrijuma su zastupljeni od 51 mg/l do 73 mg/l, na drugom mestu su joni kalcijuma od 17 mg/l do 62 mg/l, a joni magnezijuma od 117 mg/l do 160 mg/l [6, 9].

Kao pokazatelj mogućeg radijacionog rizika od korišćenja uzorkovane vode za piće računata je ukupna godišnja doza za sve uzorke vode. Dobijeni rezultati ukazuju da su sva tri uzorka vode uzeta iz bunara bezbedna za konzumiranje sa stanovišta radijacione sigurnosti jer spadaju u uzorke niske aktivnosti, a i izračunata godišnja doza je daleko ispod granične vrednosti koju je odredila Svetska Zdravstvena Organizacija (0.1 mSv/god). Takođe, oni zadovoljavaju i vrednosti koncentracija radionuklida zadatih Pravilnikom Agencije za zaštitu od zračenja i nuklearnu sigurnost Srbije [10].

Što se tiče IV uzorka, treba naglasiti da je uzeto samo 1.5 l vode, pa je znatno podignut nivo MDC. Tako je MDC za  $^{210}\text{Pb}$  6 Bq/l što daleko prevazilazi vrednost koncentracije dozvoljene Pravilnikom Agencije za zaštitu od zračenja i nuklearnu sigurnost Srbije (0.1 Bq/l). Postoji mogućnost da data voda ima povećanu koncentraciju  $^{210}\text{Pb}$ , pa je potrebno ponoviti merenje sa većom početnom količinom uzorkovane vode.

U svim uzorcima vode detektovano je prisustvo veštačkog radionuklida  $^{137}\text{Cs}$ , koji najverovatnije potiče iz zemljišta kao posledica Černobilskog akcidenta.

Jedan od predstojećih zadataka je i da se sprovede radiološka analiza i drugih uzoraka bunarske vode sa teritorije opštine Aleksandrovac.

## Zahvalnica

Autori zahvaljuju na finansijskoj podršci Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije u okviru projekata: Nuklearna fizika, metode i primena (171018), Ontogenetska karakterizacija filogenije bioraznovrsnosti (173038) i Fizički i funkcionalni efekti interakcije zračenja sa elektrotehničkim i biološkim sistemima (171007).

## 9. Literatura

- [1] D. M. Bonotto and T. O. Bueno. The natural radioactivity in Guarani aquifer groundwater, Brazil. *Appl. Radiat. Isot.* 66 (2008) 1507–1522.
- [2] V. Gruber, F. J. Maringer and C. Landstetter. Radon and other natural radionuclides in drinking water in Austria: Measurement and assessment. *Appl. Radiat. Isot.* 67 (2009) 913–917.
- [3] G. Jia and G. Torri. Estimation of radiation doses to members of the public in Italy from intakes of some important naturally occurring radionuclides ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  and  $^{210}\text{Po}$ ) in drinking water. *Appl. Radiat. Isot.* 65 (2007) 849–857.
- [4] World Health Organization. 2011. Guidelines for drinking-water quality - 4th ed.

- [5] A. W. Fentiman, M. Smith and R. J. Veley. How Do Radioactive Materials Move Through the Environment to People. Ohio State University Extension. RER-25. [http://ohioline.osu.edu/rer-fact/rer\\_25.html](http://ohioline.osu.edu/rer-fact/rer_25.html).
- [6] M. A. Milinčić. Župa Aleksandrovačka – odlike prirodne sredine. *Srpsko Geografsko društvo*. Beograd. 2012.
- [7] Technical Reports Series No 295. Measurement of Radionuclides in Food and the Environment, a Guidebook. *International Atomic Energy Agency*. 1989. IAEA, Vienna.
- [8] CMI (Czech Metrological Institute). 2005. Radioactive Standard, ER X, Cert. No. 9031-OL-426/12. Prague.
- [9] Dejan Milenić. Ocena resursa i mogućnosti višenamenskog korišćenja podzemnih voda na teritoriji opštine Aleksandrovac. Univerzitet u Beogradu - Rudarsko-geološki fakultet. Beograd. 2007.
- [10] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet, ("Sl. glasnik RS", br. 86/2011 i 97/2013).

## **RADIOLOGICAL ANALYSIS OF GROUNDWATER FROM DONJA ŽUPA, ALEKSANDROVAC, SERBIA: RADIONUCLIDE CONTENT AND RISK ASSESSMENT**

**Mirjana ĐURAŠEVIĆ<sup>1)</sup>, Miroljub MILINČIĆ<sup>2)</sup>, Ivana VUKANAC<sup>1)</sup>, Aleksandar KANDIĆ<sup>1)</sup>, Bojan ŠEŠLAK<sup>1)</sup>, Zoran MILOŠEVIĆ<sup>1)</sup> and Boris LONČAR<sup>3)</sup>**

1) *Institut of Nuclear Sciences „Vinča“, Laboratory for Nuclear and Plasma Physics, University of Belgrade, Belgrade, Serbia, [mirad@vinca.rs](mailto:mirad@vinca.rs)*

2) *Faculty of Geography, University of Belgrade, Belgrade, Serbia, [mikan@gef.bg.ac.rs](mailto:mikan@gef.bg.ac.rs)*

3) *Faculty of Technology and Metallurgy, University of Belgrade, Belgrade, Serbia, [bloncar@tmf.bg.ac.rs](mailto:bloncar@tmf.bg.ac.rs)*

### ABSTRACT

Radiological analysis of drinking water is obligatory and regulated by national legislation and also required by the long-term environmental monitoring plan. The presence of natural (uranium and thorium series, and  $^{40}\text{K}$ ) as well as artificial radionuclides ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^3\text{H}$  ...) could be detected in drinking water. The results of gamma spectrometric measurements of the four samples of groundwater from the territory of Donja Župa, Aleksandrovac, Serbia, are presented in this paper. Obtained specific activities of  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , and  $^{137}\text{Cs}$  are less than values permitted by appropriate national legislation. Annual effective dose, for an adult due to consumption of these drinking waters, were calculated using obtained specific activities. Calculated values are less than the value recommended by the World Health Organization (0.1 mSv/year), except for sample IV, indicating needs for re-measurement with higher initial amount of sample.



## РАДИОАКТИВНОСТ РЕЧНИХ ВОДА И СЕДИМЕНАТА РЕПУБЛИКЕ СРБИЈЕ У 2012. ГОДИНИ, ДУЖ ТРАСЕ ГАСОВОДА „ЈУЖНИ ТОК“

**Сузана БОГОЈЕВИЋ<sup>1</sup>, Ирена ТАНАСКОВИЋ<sup>1</sup>, Весна АРСИЋ<sup>1</sup>, Јована ИЛИЋ<sup>1</sup> и Маја ЕРЕМИЋ САВКОВИЋ<sup>2</sup>**

1) Институт за медицину рада Србије "Др Драгомир Карајовић", Београд, Србија, [suzana.bogojevic@institutkarajovic.rs](mailto:suzana.bogojevic@institutkarajovic.rs)

2) Агенција за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије, Београд, Србија, [eremic.savkovic@srbatom.gov.rs](mailto:eremic.savkovic@srbatom.gov.rs)

### САДРЖАЈ

Сава и Дунав, као међународне реке дуж чијих токова су узводно од српске границе изграђене нуклеарне електране, представљају потенцијални ризик од радиоактивног загађења наше земље. Ово је један од разлога за испитивање алфа, бета и гама активности речних вода и седимената. У овом раду су приказани резултати мерења укупне алфа и укупне бета активности речних вода и специфичне активности  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ , у узорцима седимената сакуљеним дуж потенцијалне трасе гасовода „Јужни ток“, са територије коју покривају воде Дунавског слива. Институт за водопривреду „Јарослав Черни“ д.о.о. извршио је узорковање, а Лабораторија за испитивање радиоактивности Института за медицину рада Србије "Др Драгомир Карајовић", је узорке обрађивала стандардним методама ISO9696, ISO9697[1,2]. Укупне алфа и бета активности одређене су помоћу нискофонског  $\alpha\beta$ -пропорционалног гасног бројача PIC-WPC-9550. Измерено је 127 узорака вода. Резултати показују да је највећи број узорака (око 90%) имао је вредности укупне алфа и укупне бета активности на нивоу природног фона. Максимална вредност бета активности од 7.8 Bq/l измерена је у једном узорку воде, док је максимална вредност алфа активности од 0,18 Bq/l измерена у два узорка воде. Концентрације природних радионуклида  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и концентрација вештачког  $^{137}\text{Cs}$  одређене су гама-спектрометријски у узорцима седимената помоћу HPGe "ORTEC", детекторског система[3]. Резултати показују да највећи део активности у узорцима седимента потиче од природних радионуклида (углавном  $^{40}\text{K}$ ). Концентрације природних радионуклида одговарају просечним вредностима добијеним на основу вишегодишњег мониторинга седимената у Србији [4,5]. Активности радионуклида вештачког порекла ( $^{137}\text{Cs}$ ) у узорцима седимента кретали су се у опсегу 0,6 Bq/kg до 42,6 Bq/kg, што такође одговара просечним вредностима за седименте дунавског слива Србије [4,5].

### 1. Увод

У 2012. години било је планирано да траса магистралног гасовода „Јужни ток“ прође кроз нашу земљу. Планом је било предвиђено да дужина српске трасе гасовода „Јужни ток“ буде око 442 km, дужина одвојка за Републику Српску око 109 km, а дужина одвојка према Хрватској око 51 km. Мерна станица на српско-бугарској граници близу Зајечара би представљала почетну тачку, а мерна станица на српско-мађарској граници близу Бачког Брега, завршну тачку. Почетак одвојка гасовода за Републику Српску је планиран близу Ченте, а крај на граници близу Новог Села. У плану је било и да одвојак гасовода за Хрватску почне близу Доброг Поља и заврши се на обали реке Дунав близу Бачког Новог Села.

Компресорска станица 1 (КС-1) је била предвиђена у општини Велика Плана а, (КС-2) у општини Врбас.



**Слика 1. Део потенцијалне трасе гасовода "Јужни ток" на територији Србије.**

Институт за водопривреду „Јарослав Черни“ д.о.о. извео је радове узорковања целом трасом магистралног гасовода „Јужни ток“ која је била подељена је на осам деоница: Деоница 1 (од 0 km до 73 km), Деоница 2 (од 73 km до 126 km), Деоница 3 (од 126 km до 191.5 km), Деоница 4 (од 191.5 km до 270.9 km), Деоница 5 (од 270.9 km до 336.4 km), Деоница 6 ( од 336.4 km до 415.4 km са КС2), Деоница 7 (огранак за Хрватску) и Деоница 8 (огранак за Републику Српску).

Узорци су достављени Лабораторији за испитивање радиоактивности Института за медицину рада Србије „Др Драгомир Карајовић“. Радови узорковања обављени су у периоду од јула до краја октобра 2012. године. Лабораторија за испитивање радиоактивности је узорке земљишта, речног седимента и вода обрађивала стандардним методама ISO9696, ISO9697 [1, 2, 3]. У овом раду су приказани резултати мерења радиоактивности узорка вода и седимената из речног слива Дунава обухваћених потенцијалном трасом гасовода "Јужни ток".

## 2. Материјал и методе

### 2.1. Воде

Припрема узорака воде (количина од 1 литра) за мерење укупне алфа и укупне бета активности обухвата: Мерење проводљивости кондуктометром одмах по приспећу. На основу вредности проводљивости може се проценити количина сувог остатка – при проводљивости од око 1 mS/cm добија се приближно 1g/l минералног остатка приликом упаравања воде. Затим се додаје по 20 ml концентроване азотне киселине. За мерење укупне алфа и бета активности узорци су упарени на око 50 ml и охлађени. Овако концентровани раствор је квантитативно пренет у измерен и предходно ижарен (на 350 °C) порцелански суд, у који је затим је додато 1 ml H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. Добијени раствор је упарен до сува, а затим је жарен на 350 °C у току једног сата. Измерена се маса ижареног чврстог остатка је равномерно распоређена по површини планшете (максимално 0,200 g чврстог остатка) и фиксирана. Пречник планшете са узорком био је 5 cm. Овако припремљени узорци су осушени на ваздуху и затим пренети на апаратуру за мерење активности.

#### 2.1.1. Апаратура за мерење укупне α и укупне β активности

Мерења укупне α и укупне β активности вода вршена су помоћу нискофонског αβ- пропорционалног гасног бројача PIC-WPC-9550 произвођача Protean Instrument Corporation. Бројач користи у процесу рада смешу гасова 10 % метана и 90 % аргона. Ниво фона алфа зрачења износио је 0.1 imp/min, а бета зрачења 0.4 imp/min. Ефикасност бројача за бета зрачење износила је 44 %, и одређена је помоћу стандарда <sup>90</sup>Sr. Ефикасност бројача за алфа зрачење одређена је помоћу стандарда <sup>241</sup>Am и износила је 31 %. Минимална детектабилна активност – МДА бројача, за укупно алфа и укупно бета зрачење зависи од количине чврстог остатка узорка воде и рачуна се према формули (1) односно (2):

$$MDA_{\alpha\beta} = \frac{LLD_{\alpha\beta}}{V \cdot F_{\alpha\beta} \cdot 60} \quad (1)$$

где је:

$MDA_{\alpha\beta}$  – Минимална детектабилна активност за алфа односно бета зрачење у (Bq/l)

V – Запремина односно маса лабораторијског узорка која одговара маси чврстог остатка на планшети.

$F_{\alpha\beta}$  – Фактор алфа и бета зрачења ( $F_{\alpha}=1$ ,  $F_{\beta}=0.5$ ).

$LLD_{\alpha\beta}$  – Граница детекције за алфа или бета зрачење (dpm = број распада у минути) која се рачуна према формули (2).

$$LLD_{\alpha\beta} = \frac{4.65 \cdot \sqrt{Rb}}{E} \quad (2)$$

где је:

Rb – Фон празне планшете (imp/min).

T – Време мерења узорка и фона  $T=T_u=T_f$  (min).

E – Ефикасност бројача за алфа и бета зрачење.

У процесу мерења коришћен је рачунарски програм Vista 2000 набављен од произвођача уређаја.

## 2.2. Седимент

Узорци седимента масе до 1 kg, сушени су на 105<sup>0</sup>С до константне масе, уситњени у авану, и просејани кроз сито како би се добиле честице мање од 250 μm. Седимент је пребачен у посуде за гамаспектрометријако мерење у цилиндричној геометрији које су затим затопљене. Након истека времена потребног за успостављање радиоактивне равнотеже од 21 дана, узораци су испитивани гамаспектрометријски помоћу HPGe детекторског система.

### 2.2.1. Гамаспектрометријска мерења

Гамаспектрометријска мерења узорака седимената вршена су на три чиста германијумска детектора фирме ORTEC HP Ge р-типа, релативне ефикасности 25 % и 40 %; резолуције 1,85 keV и 1,95 keV на енергији 1332 keV (<sup>60</sup>Co). Релативна грешка припреме узорка ± 8% урачуната је у мерну несигурност. За обраду резултата мерења коришћен је програм *GammaVision*.

## 3. Резултати и дискусија

### 3.1. Укупна алфа и укупна бета активност вода

Узорци вода сакупљани су у периоду од јула до октобра 2012. године. Изглед (замућеност) узорака природних вода је варирао у зависности од количине суспендованих честица. Пре упаравања, закишељени узорци су остављени да одстоје један сат, затим је талог одбачен а раствор упарен. Уколико је проводљивост раствора дозвољавала ( $\sigma < 1 \text{ mS/cm}$ ) упарен је цео литар, док је за веће вредности проводљивости упаравано по 0,5 l. У табели 1. приказане су вредности минималне и максималне алфа односно бета активности (без мерне несигурности појединачних мерења) као и средња вредност по деоницама трасе гасовода са стандардном девијацијом као мером расипања вредности активности. Мерна несигурност за алфа зрачење кретала се у опсегу 10%-30% и 5%-30% за бета зрачење.

Измерене укупне алфа и бета активности речних вода трасом магистралног гасовода „Јужни ток“ кретале су се у границама природног фона зрачења [5, 6]. MDA (минимална детектабилна активност) кретала се у опсегу 0,01-0,04 Bq/l за алфа зрачење а за бета зрачење износила је < 0,01 Bq/l. Велики број узорака, око 90% имао је вредности укупне алфа активности близу MDA, док је за укупно бета зрачење овај проценат износио свега 2% од укупног броја узорака.

Повећана бета ктивност измерена у једном узорку на деоници Д5 и износила је 7,8 Bq/l а, алфа активност истог узорка је била 0.15 Bq/l. Собзиром да је овај узорак имао велику количину минералног остатка, припремљене су две пробе за мерење и обе су дале врло сличне вредности активности. Ова бета активност упоредљива је са вредношћу концентрације <sup>3</sup>H у површинским водама Саве код Сремске Митровице од 17,9 Bq/l [8] затим, може указати и на присуство природног <sup>40</sup>K, или на тренутну контаминацију неким другим бета емитером. За одређивање концентрације појединачних радионуклида била би неопходна гамаспектрометријска анализа, за коју је потребна знатно већа количина узорка воде (10-20 литара) од оне коју смо ми имали (1 литар). Вредности алфа и бета активности овог узорка нису узете у обзир при приказивању резултата у табели 1. због великог повећања стандардне девијације за бета зрачење (чак 63 пута). Иначе, и вредности алфа активности на овој деоници показују највеће расипање

што се види по великој стандардној девијацији средње вредности која чак премашује саму средњу вредност.

**Табела 1: Минималне, максималне и средње вредности са стандардном девијацијом укупне алфа и бета активности у водама, по деоницама трасе гасовода „Јужни ток“.**

Деоница дужина (km) (број узорка)		Укупна $\alpha$ активност (Bq/l)	Укупна $\beta$ активност (Bq/l)
Д1 73 km (11)	Минимум	0,02	0,04
	<b>Средња <math>\pm</math> ст. дев</b>	<b>0,03 <math>\pm</math> 0,01</b>	<b>0,06 <math>\pm</math> 0,03</b>
	Максимум	0,04	0,13
Д2 53 km (7)	Минимум	0,02	0,04
	<b>Средња <math>\pm</math> ст. дев</b>	<b>0,04 <math>\pm</math> 0,01</b>	<b>0,12 <math>\pm</math> 0,06</b>
	Максимум	0,05	0,20
Д3 66 km (19)	Минимум	0,01	0,02
	<b>Средња <math>\pm</math> ст. дев</b>	<b>0,03 <math>\pm</math> 0,01</b>	<b>0,08 <math>\pm</math> 0,03</b>
	Максимум	0,04	0,16
Д4 79 km (24)	Минимум	0,01	0,04
	<b>Средња <math>\pm</math> ст. дев</b>	<b>0,04 <math>\pm</math> 0,03</b>	<b>0,17 <math>\pm</math> 0,24</b>
	Максимум	0,18	1,28
Д5 65 km (17*)	Минимум	0,01	0,07
	<b>Средња <math>\pm</math> ст. дев</b>	<b>0,04 <math>\pm</math> 0,05</b>	<b>0,10 <math>\pm</math> 0,03</b>
	Максимум	0,18	0,18
Д6 79 km (16)	Минимум	0,01	0,05
	<b>Средња <math>\pm</math> ст. дев</b>	<b>0,02 <math>\pm</math> 0,01</b>	<b>0,11 <math>\pm</math> 0,10</b>
	Максимум	0,06	0,40
Д7 51 km (20)	Минимум	0,01	0,03
	<b>Средња <math>\pm</math> ст. дев</b>	<b>0,03 <math>\pm</math> 0,02</b>	<b>0,09 <math>\pm</math> 0,07</b>
	Максимум	0,08	0,30
Д8 109 km (12)	Минимум	0,02	0,04
	<b>Средња <math>\pm</math> ст. дев</b>	<b>0,04 <math>\pm</math> 0,02</b>	<b>0,13 <math>\pm</math> 0,09</b>
	Максимум	0,08	0,29

\*Изостављене су вредности активности једног узорка.

Ако изуземо наведени узорак, максималне вредности активности измерене су у узорцима на Деоници 4: 0,18 Bq/l за алфа и 1,28 Bq/l за бета зрачење.

Резултати мерења укупне алфа и укупне бета активности узорака вода трасом магистралног гасовода у складу су са измереним активностима речних вода у нашој земљи, чија се мерења врше по Програму мониторинга радиоактивности у животној средини [4 - 8].

### 3.2. Гамаспектрометријско мерење узорака седимената

Узорци седимената сакупљани су такође у периоду јули - октобар 2012. године. У табели 2. приказани су резултати мерења специфичних активности гама зрачења радионуклида  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{226}\text{Ra}$  у Bq/kg ; дате су вредности минималне и максималне измерене активности (без мерне несигурности која се кретала у опсегу 5%-30%) као и средња вредност са стандардном девијацијом као мером расипања вредности.

Једини радионуклид вештачког порекла који је регистрован гамаспектрометријским мерењем узорака седимента је  $^{137}\text{Cs}$ , ( $T_{1/2}=30$  година) пореклом од Чернобилског акцидента. MDA за  $^{137}\text{Cs}$  у седименту била је  $< 0,1$  Bq/kg. Максимална вредност концентрације  $^{137}\text{Cs}$  у седиментима износила је 42,6 Bq/kg а, минимална 0,6 Bq/kg. Највећи део активности у узорцима седимента потиче од природних радионуклида (углавном  $^{40}\text{K}$ ). MDA за  $^{40}\text{K}$  у седименту била је  $< 5$  Bq/kg. Максимална односно минимална концентрација  $^{40}\text{K}$  у седименту износиле су 812 Bq/kg, односно 37 Bq/kg. Активности природних радионуклида  $^{232}\text{Th}$  и  $^{226}\text{Ra}$  налазиле су се у границама просечних вредности за регионе у Србији чије се испитивање вршило по Програму мониторинга радиоактивности у животној средини. [4,5,7,8]. MDA за  $^{232}\text{Th}$  у седименту била је  $< 1,8$  Bq/kg. Максимална и минимална активност  $^{232}\text{Th}$  износиле су 47,8 Bq/kg и 6,4 Bq/kg. MDA за  $^{226}\text{Ra}$  у седименту била је  $< 1,1$  Bq/kg, максимална вредност активности износила је 41,0 Bq/kg а, минимална 8,2 Bq/kg.

### 4. Закључак

Према укупним резултатима мерења радиоактивности у узорцима са деоница магистралног гасовода „Јужни ток“ може се закључити да се активност како природних радионуклида тако и дугоживећих радионуклида вештачког порекла, у седиментима и речним водама, кретала у опсегу основног нивоа активности. Измерене активности радионуклида у свим узорцима осим у једном узорку, у складу су са дугогодишним праћењем стања радиоактивности у нашој земљи као и важећим законским прописима [4-10]. Спорни узорак воде који има повећану бета активност (7,8 Bq/l у односу на максимум за све остале узорке 1,28 Bq/l) потиче са Деонице 5, међутим резултати гамаспектрометријских мерења узорака седимената са исте деонице не показују одступања од просечних вредности. Нови узорак воде, са исте локације, би требало поново узети и измерити концентрације појединачних радионуклида гамаспектрометријском методом.

Како је присуство  $^{137}\text{Cs}$  последица контаминације животне средине узрокована Чернобилским акцидентом, дистрибуција овог радионуклида у површинским водама и седиментима је неравномерна и зависи од атмосферских прилика које утичу на ресуспензију контаминираних честица. Разлика у резултатима мерења активности (велика стандардна девијација) за радионуклид  $^{137}\text{Cs}$  у седименту у

оквиру узорака са једне деонице управо говори о неправилној дистрибуцији овог вештачког радионуклида.

**Табела 2. Активност радионуклида у седименту дуж трасе по деоницама (минимална, максимална и средња вредност са стандардном девијацијом).**

Деоница (број узорака)		<sup>40</sup> K (Bq/kg)	<sup>137</sup> Cs (Bq/kg)	<sup>232</sup> Th (Bq/kg)	<sup>226</sup> Ra (Bq/kg)
Д1 (8)	минимум	37	1.3	6.4	11.7
	<b>Средња ± ст. дев</b>	<b>346 ± 267</b>	<b>4.5 ± 4.1</b>	<b>21.9 ± 9.7</b>	<b>17.7 ± 5.0</b>
	максимум	812	13.8	37.8	23.8
Д2 (6)	минимум	205	1.6	13.2	12.6
	<b>Средња ± ст. дев</b>	<b>324 ± 67</b>	<b>2.7 ± 1.6</b>	<b>30.3 ± 11.3</b>	<b>20.1 ± 5.2</b>
	максимум	396	5.4	42.8	27.2
Д3 (8)	минимум	104	1.3	7.2	8.2
	Средња ± ст. дев	326 ± 115	3.5 ± 3.0	26.6 ± 10.5	17.3 ± 5.2
	максимум	459	10.5	42.4	25
Д4 (22)	минимум	244	1.1	14	12.9
	<b>Средња ± ст. дев</b>	<b>380 ± 68</b>	<b>12.0 ± 13.5</b>	<b>32.2 ± 7.7</b>	<b>23.6 ± 5.2</b>
	максимум	500	42.6	47.6	31.2
Д5 (12)	минимум	210	1	9.9	9.2
	<b>Средња ± ст. дев</b>	<b>389 ± 139</b>	<b>6.6 ± 8.3</b>	<b>28.8 ± 11.3</b>	<b>21.2 ± 6.3</b>
	максимум	650	25.2	47.8	34.6
Д6 (28)	минимум	228	0.6	13	12.5
	<b>Средња ± ст. дев</b>	<b>335 ± 52</b>	<b>3.4 ± 2.3</b>	<b>28.4 ± 5.9</b>	<b>24.7 ± 3.9</b>
	максимум	464	9.8	40	30.8
Д7 (11)	минимум	244	1.4	20.4	17.9
	<b>Средња ± ст. дев</b>	<b>338 ± 56</b>	<b>3.5 ± 1.6</b>	<b>29.1 ± 3.9</b>	<b>22.0 ± 3.7</b>
	максимум	456	6.4	33.6	30.9
Д8 (12)	минимум	225	1.3	19.1	10.2
	<b>Средња ± ст. дев</b>	<b>330 ± 73</b>	<b>4.6 ± 4.3</b>	<b>29.5 ± 7.9</b>	<b>23.6 ± 10.8</b>
	максимум	473	16.6	40.6	41

## 5. Литература

- [1] ISO 9696, Water quality-Measurement of gross alpha activity in non-saline water Thich source method, 1992.
- [2] ISO 9697 Water quality-Measurement of gross beta activity in non-saline water,
- [3] Measurement of radionuclides in food and the environment, A Guidebook, Technical Report Series No. 295,1989. IAEA, Vienna.
- [4] Одређивање радиоактивности реке Дунав за 2012. годину Институт за медицину рада Србије „Др Драгомир Карајовић“
- [5] Одређивање радиоактивности реке Дунав за 2011. годину Институт за медицину рада Србије „Др Драгомир Карајовић“
- [6] И Танасковић, Г Пантелић, М Еремић-Савковић, В Вулетић и Љ Јаворина Љ. Укупна бета активност узорака из Дунава у 2006.години. Зборник радова XXIV симпозијума друштва за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе; 3.-5. октобар 2007, Златибор, Србија, 49-52 .
- [7] Извештај о нивоу излагања становноштва јонизујућим зрачењима из животне средине у Републици Србији у 2011.години.  
<http://www.srbatom.gov.rs/srbatom/monitoring-radioaktivnosti.htm>
- [8] Република Србија, Агенција за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије, Извештај о нивоу излагања становноштва јонизујућем зрачењу у 2012 .години (јануар-април).  
<http://www.srbatom.gov.rs/srbatom/monitoring-radioaktivnosti.htm>
- [9] Правилник о утврђивању програма систематског испитивања радиоактивности у животној средини, Сл. Гласник бр. 100/2010.
- [10] Правилник о границама радиоактивне контаминације лица радне и животне средине и начину спровођења деконтаминације, “Службени гласник РС”, број 38/2011.



## RADIOACTIVITY OF RIVER WATER AND SEDIMENTS OF SERBIA IN THE YEAR 2012, ALONG THE “SOUTH STREAM” PIPELINE

**Suzana BOGOJEVIĆ<sup>1</sup>, Irena TANASKOVIĆ<sup>1</sup>, Vesna ARSIĆ<sup>1</sup>, Jovana ILIĆ<sup>1</sup> and Maja EREMIĆ-SAVKOVIĆ<sup>2</sup>**

*1)Serbian Institute of Occupational Health "Dr Dragomir Karajović",  
Belgrade, Serbia, [suzana.bogojevic@institutkarajovic.rs](mailto:suzana.bogojevic@institutkarajovic.rs)*

*2)Serbian Radiation Protection and Nuclear Safety Agency,  
Belgrade, Serbia, [eremic.savkovic@srbatom.gov.rs](mailto:eremic.savkovic@srbatom.gov.rs)*

### ABSTRACT

Sava and Danube are international rivers with nuclear power plants built along the river basin, upstream from the Serbian border so, the waters these rivers bring into Serbia present a potential risk of radioactive contamination. This is one of the reasons for analysing alpha, beta and gamma activities of river water and sediment. This paper presents the measurement results of gross alpha and beta activity of the water, and specific activity of <sup>40</sup>K, <sup>137</sup>Cs, <sup>232</sup>Th, <sup>226</sup>Ra, in sediment samples along the South Stream Pipeline, from the territory covered by the Danube river basin in the Republic of Serbia. Measured samples were processed by standard methods prescribed by the IAEA. Gross alpha and beta measurements were conducted by the low-background α-β proportional gas counter PIC-WPC-9550 manufactured by Protean Instruments Co., USA. The results show that the vast majority of water samples had values of α and β overall activity level of natural background, while the maximum value for alpha radiation was 0.151 Bq/l and 7.8 Bq/l for beta radiation. Concentrations of natural radionuclides <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K, <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U and <sup>137</sup>Cs - radionuclide produced, were determined in sediment samples by gamma-spectrometry with HPGe "ORTEC", USA detectors. Results indicated that the concentrations of these radionuclides correspond to the values to be expected for the river sediments in Serbia obtained on the basis of several years of monitoring. Results of gamma-spectrometric measurements of radionuclides of artificial origin (<sup>137</sup>Cs) varied in the range of 0.6 Bq / kg to 42.6 Bq / kg, which also corresponds to the average values for the sediments of the Danube basin Serbia.

## ODREĐIVANJE STAROSTI I POREKLA PODZEMNIH VODA SA TERITORIJE VOJVODINE

**Jovana NIKOLOV<sup>1</sup>, Tanja PETROVIĆ PANTIĆ<sup>2</sup>, Ines KRAJCAR BRONIĆ<sup>3</sup>,  
Nataša TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Jadranka BAREŠIĆ<sup>3</sup>, Tamara MARKOVIĆ<sup>4</sup>,  
Kristina BIKIT<sup>1</sup>, Milan TOMIĆ<sup>2</sup>**

- 1) *Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet, Departman za fiziku, Novi Sad, Srbija, jovana.nikolov@df.uns.ac.rs*
- 2) *Geološki zavod, Beograd, Srbija*
- 3) *Institut Ruđer Bošković, Zagreb, Hrvatska*
- 4) *Zavod za hidrogeologiju i inženjersku geologiju, Hrvatski geološki institut, Zagreb, Hrvatska*

### SADRŽAJ

*U radu su prikazani rezultati prvog dela istraživanja podzemnih voda sa teritorije AP Vojvodine. Merenjem koncentracije aktivnosti radioaktivnog izotopa tricijuma (period poluraspada 12.33 godina) može se odrediti starost mlađih voda. Postojanje <sup>3</sup>H u podzemnim vodama ukazuje da se sistem prihranjivao sa vodama starim najviše 62 godine. Moguće je razlikovati podzemne vode koje su u toku poslednjih šezdesetak godina imale veze sa padavinama, od izdanskih voda koje nemaju tako brzu vodozamenu. Pored izmerene koncentracije aktivnosti tricijuma određivani su i stabilni izotopi  $\delta^2\text{H}$  i  $\delta^{18}\text{O}$ .*

### 1. Uvod

Na teritoriji Autonomne Pokrajine Vojvodine, Republike Srbije podzemne vode se koriste za vodosnabdevanje domaćinstava, poljoprivrede i industrije, dok se podzemne vode povišene temperature koriste u balneologiji, za plastenike i za grejanje. Procenjuje se da podzemne vode obezbeđuju oko 70% potreba za vodom za domaćinstva i industriju u Srbiji, a na području Vojvodine je ovo isključivi vid vodosnabdevanja. Prema raspoloživim statističkim podacima i proceni količina koje se eksploatišu za potrebe javnog i individualnog vodosnabdevanja seoskog stanovništva, danas se u Srbiji eksploatiše ukupno oko  $5 \cdot 10^8$  m<sup>3</sup> podzemne vode [1]. Ukupni kapaciteti postojećih izvorišta podzemnih voda u Srbiji iznose oko  $6.78 \cdot 10^8$  m<sup>3</sup> godišnje ili 21,5 m<sup>3</sup>/s, od toga 6,25 m<sup>3</sup>/s za Vojvodinu i 15 m<sup>3</sup>/s za Centralnu Srbiju [1]. Na području Vojvodine izdvaja se izdan pod pritiskom (arterška izdan) i izdan sa slobodnim nivoom. Ovaj teren karakteriše nadeksploatacija i nedovoljno obnavljanje što uslovljava pojavu deficita u vodosnabdevanju. Zbog toga je od izuzetnog značaja poznavati starost ovih voda i iskoristivost u procesu vodosnabdevanja.

U radu su prikazani rezultati prvog dela istraživanja podzemnih voda sa teritorije AP Vojvodine. Merenjem koncentracije aktivnosti radioaktivnog izotopa tricijuma (period poluraspada 12.33 godina) može se odrediti starost vode. Tricijum <sup>3</sup>H se, kao i stabilni izotopi vodonika <sup>1</sup>H i <sup>2</sup>H, veže u molekul vode, tako da ga ima u celoj hidrosferi, učestvuje u hidrološkom ciklusu i može se detektovati u podzemnim vodama. Koncentracija aktivnosti tricijuma se često izražava u tricijumskim jedinicama (TU), to je posebna jedinica koja označava 1 atom <sup>3</sup>H na  $10^{18}$  atoma <sup>1</sup>H, odnosno 1 TU = 0.118 Bq/l. Postojanje <sup>3</sup>H u podzemnim vodama ukazuje da se sistem prihranjivao sa vodama starim najviše 63 godine. Kad govorimo o starosti voda, to znači da je moguće razlikovati podzemne vode koje su u toku poslednjih šezdesetak godina imale kontakt sa

padavinama, od voda koje nemaju tako brzu vodozamenu. Tricijum ( $^3\text{H}$ ) se koristi kao metoda za određivanje starosti vode i pogodan je za vode mlađe od 1952-e, dok se za starije vode koristi izotop ugljenika  $^{14}\text{C}$ . Odsustvo tricijuma ukazuje na starije vode.

Prema sadržaju tricijuma u vodi, možemo razlikovati [2]:

- <0,8 TU ukazuje na subsavremene vode (starije od 63 godine; pre 1952-e),
- 0,8 do 4 TU ukazuje na mešanje subsavremenih i savremenih voda,
- 5 do 15 TU ukazuje na savremene vode (<5 do 10 godina),
- 15 do 30 TU ukazuje na uticaje iz razdoblja povišenih atmosferskih koncentracija aktivnosti tricijuma,
- >30 TU prihranjivanje podzemnih voda se vršilo 1960-tih i 1970-tih godina,
- >50 TU prihranjivanje podzemnih voda se vršilo 1960.-tih godina.

U dosadašnjim istraživanjima starosti podzemnih voda, analize tricijuma rađene su za područje centralnih delova Srbije [3-4], dok su za područje Vojvodine analize tricijuma rađene samo za Deliblatsku peščaru [5].

## 2. Opis lokacije i uzorkovanje

U okviru Panonskog basena Vojvodine najveće rasprostranjenje imaju kvartarni sedimenti predstavljeni peskovima, lesom, peskovito-glinovitim sedimentima, šljunkovima, dok se neogeni sedimenti, kao i magmatske stene javljaju mestimično. Rasprostranjenje neogenih sedimenata raste sa porastom dubine.

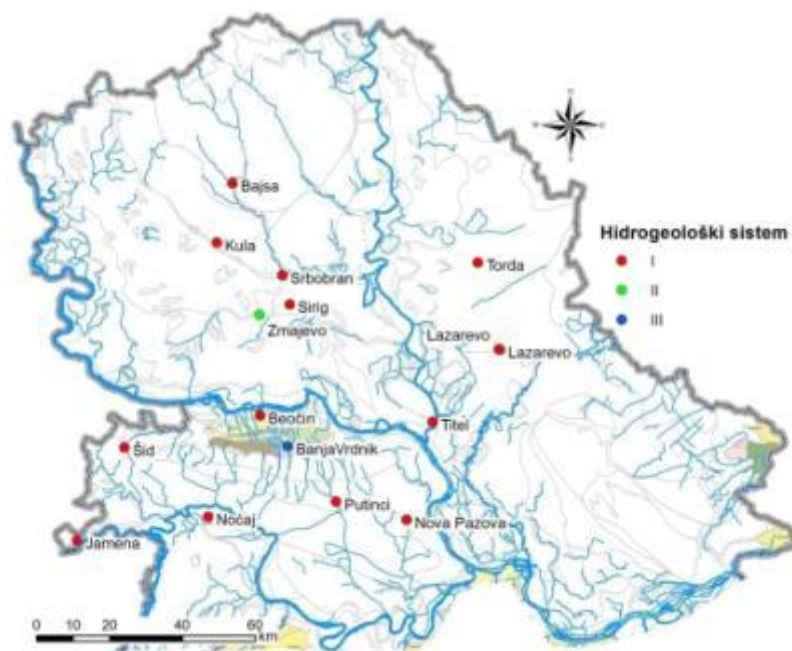
U geološkoj građi Vojvodine izdvajaju se [6]:

- kompleks, predstavljen granitima i gnajsevima prekambrijumske starosti, kristalastim škriljcima paleozojske starosti koji su pokriveni flišem i magmatitima mezozoika;
- kompleks neogenih tvorevina, izgrađen od peščara, glinaca, laporaca, litotamnjskih krečnjaka, glina, peskova i šljunkova, a podređeno se javljaju i magmatske i vulkanske stene i njihovi piroklastični ekvivalenti;
- kvartarni sedimenti, predstavljeni eolskima (peskovi, les) i fluvijalnim (peskovito-glinoviti alevriti, gline, peskovi, šljunak) sedimentima.

Sa hidrogeološkog aspekta, na području Vojvodine izdvajaju se četiri hidrogeološka sistema [7]:

- *I hidrogeološki sistem* obuhvata sedimente od površine do podine gornjeg pontaa. Razvijen je na čitavoj površini Vojvodine, izuzev Fruške Gore i Vršackog brega. Podzemne vode se formiraju u okviru peskova i šljunkova razne granulacije, dok gline predstavljaju izolator. Ovaj sistem ima najveći značaj za vodosnabdevanje stanovništva.
- *II hidrogeološki sistem* se nalazi neposredno ispod prvog sistema, a čine ga stene donjeg pontaa i panona. Litologiju čine lapori i laporci, sa proslojcihapeščara. Drugi sistem nema veći hidrogeološki značaj. On predstavlja hidrauličku izolaciju između prvog i trećeg hidrogeološkog sistema.
- *III hidrogeološki sistem* obuhvata stene miocena, paleogena, jure i krede. Rezervoar sistema čine peščari, konglomerati, krečnjaci i breče, a izolator lapori, laporci i gline.
- *IV hidrogeološki sistem* obuhvata magmatske, metamorfne i sedimentne stene trijaskie i paleozojske starosti. Najznačajnije količine voda formiraju se u okviru ispucalih trijaskih krečnjaka i dolomita.

Lokacije sa kojih su u prvoj etapi projekta uzeti uzorci prikazane su na Slici 1.



**Slika 1. Karta Vojvodine na geološkoj podlozi sa prikazom lokacija sa kojih su uzorkovane podzemne vode.**

Koncepcija istraživanja bila je da se uzorci vode zahvate iz sva četiri hidrogeološka sistema, te da se u uzorcima izmeri koncentracija aktivnosti tricijuma i sadržaj stabilnih izotopa  $^2\text{H}$  i  $^{18}\text{O}$ . Pretpostavka je bila da će se tricijum detektovati u vodama iz prvog hidrogeološkog sistema gde vode zaležu na manjim dubinama i gde je brža vodozamena kao i mešanje sa površinskim vodama. U ovom sistemu se očekuju vrednosti izotopa  $\delta^2\text{H}$  i  $\delta^{18}\text{O}$  uz globalnu svetsku meteorsku liniju GMWL [8], odnosno da vrednosti ukažu na prihranjivanje I hidrogeološkog sistema od atmosferskih voda. U dubljim sistemima ne očekuje se prisustvo tricijuma, ali su neizvesni podaci izotopa  $\delta^2\text{H}$  i  $\delta^{18}\text{O}$ .

### 3. Metodi pripreme uzoraka i merenja

Uzorci za merenje koncentracije aktivnosti tricijuma su pripremani i mereni u Institutu Ruđer Bošković u Zagrebu. Obzirom da se u podzemnim vodama očekuju niske koncentracije aktivnosti tricijuma neophodno je uzorke za analizu pripremiti metodom elektrolitičkog obogaćenja [9]. Koncentracija aktivnosti (nadalje: aktivnost A)  $^3\text{H}$  u vodama određuje se tehnikom elektrolitičkog obogaćenja vode tricijumom i merenjem tečnim scintilacionim brojačem (LSC) Quantulus 1220. Pripremljeni uzorak sastoji se od 8 mL obogaćene vode i 12 mL scintilacionog koktela UltimaGold LLT. Uređaj za elektrolitičko obogaćenje sastoji se od 20 ćelija zapremine 500 mL, a prosečni faktor obogaćenja je  $E = 23,6 \pm 2,3$  [10-11]. Granica detekcije koja se može postići uz pripremu elektrolitičkim obogaćenjem uz upotrebu pomenutog scintilacionog koktela je 0.5 TU. Merenje je vršeno u 6 ciklusa po 50 minuta.

Stabilni izotopi su u ispitivanim uzorcima mereni u Zavodu za hidrogeologiju i inženjersku geologiju, Hrvatski geološki institut. Odnos stabilnih izotopa ( $\delta^2\text{H}$  i  $\delta^{18}\text{O}$ ) meren je spektrometrom Picarro L2130i, koji koristi *Cavity Ring Down Spectrometry* (CRDS) mernu tehniku. Rezultati merenja su prikazani kao  $\delta$  vrednosti u promilima [‰] relativno u odnosu na standard V-SWOM.  $\delta$  vrednosti su računane prema formuli:

$$\delta^Y Z = \left( \frac{R_X}{R_S} - 1 \right) \cdot 1000 \quad (1)$$

gde je  $^Y Z$  oznaka za  $^{18}\text{O}$  ili  $^2\text{H}$ ,  $R$  označava odnos teškog (slabije vezanog) i lakšeg (jače vezanog) izotopa (na primer,  $^2\text{H}/^1\text{H}$ ,  $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ ), a  $R_X$  i  $R_S$  su ovi odnosi u uzorku ( $X$ ) i standardu ( $S$ ), respektivno.

#### 4. Rezultati i diskusija

Prvi deo ovog istraživanja obuhvatio je 15 različitih lokacija (16 uzoraka, dva iz Lazareva sa različitih dubina), a daljim tokom projekta biće obuhvaćeno još preostalih 15 lokacija od planiranih 30 iz sva četiri hidrogeološka sistema. Lokacije iz kojih su uzimani uzorci voda za analizu su određivani na osnovu geoloških i geografskih specifičnosti. Mesta uzimanja uzoraka se nalaze na prostoru koji obuhvata celu AP Vojvodinu (Srem, Banat i Bačka). Rezultati merenja prikazani su u Tabeli 1.

Sadržaj tricijuma u 14 analiziranih voda, je od 2,12 do 9,72 TU, dok u dva uzorka tricijum nije detektovan. Dobijene vrednosti ukazuju da su analizirane vode mlade, starosti do 10 godina. Vrednosti ukazuju i da je reč o mešanju atmosferskih voda sa podzemnim vodama. U selu Lazarevo uzet je uzorak vode iz bunara dubokog 40 m u okviru izdani sa slobodnim nivoom, dok je voda iz bunara dubokog 80 m zahvaćena iz izdani pod pritiskom.

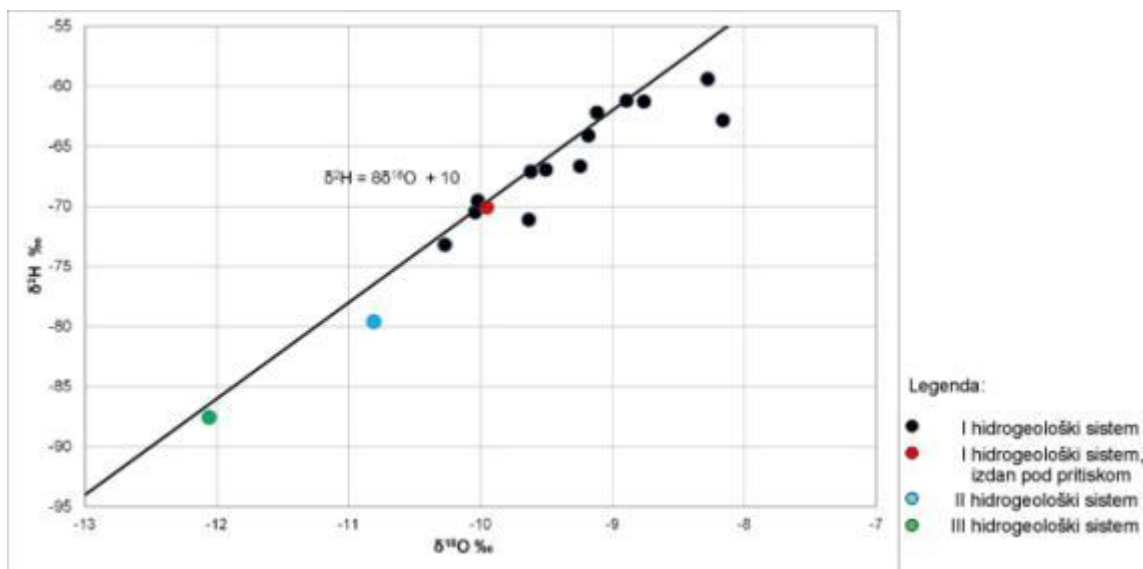
**Tabela 1. Koncentracija aktivnosti tricijuma u analiziranim uzorcima**

R.br.	Lokacija	A[TU]
1.	Srbobran	2,1(5)
2.	Beočin	4,0(8)
3.	Šid	4,8(10)
4.	Titel	2,6(6)
5.	Lazarevo, 40 m	5,5(10)
6.	Lazarevo, 80 m	< 0,5
7.	Bajša	< 0,5
8.	Sirig	3,4(14)
9.	Kula	9,7(18)
10.	Jamena	8,2(16)
11.	NoćajSalaš Noćajski	7,3(14)
12.	Putinci	4,6(9)
13.	Nova Pazova	5,8(10)
14.	Torda	5,8(10)
15.	Zmajev	5,4(9)
16.	Banja Vrdnik	6,7(12)

U istim uzorcima određen je i sadržaj stabilnih izotopa  $\delta^2\text{H}$  i  $\delta^{18}\text{O}$ . Vrednosti izotopa u podzemnim vodama Vojvodine su od -8,16 do -12,06 ‰ za  $\delta^{18}\text{O}$  i od -59,41 do -87,55‰ za  $\delta^2\text{H}$  (Slika 2).

Negativnije vrednosti  $\delta^2\text{H}$  i  $\delta^{18}\text{O}$  ukazuju na prihranjivanje na višim nadmorskim visinama ili u toku perioda zime. Negativnije vrednosti izotopa nađene su u uzorcima

voda koji su zahvaćeni iz dubljih vodonosnih slojeva. To su uzorci vode iz Lazareva (duboka bušotina 80 m, voda je iz I hidrogeološkog sistema) i Zmajeva (bušotina od 370 m, iz II hidrogeološkog sistema). Na Slici 2 je prikazan odnos sadržaja stabilnih izotopa  $\delta^2\text{H}$  i  $\delta^{18}\text{O}$  na izmerenim lokacijama, sa obeleženim oznakama hidrogeoloških sistema kojima izmereni uzorci pripadaju.



Slika 2. Odnos  $\delta^{18}\text{O}$  -  $\delta^2\text{H}$  u podzemnim vodama Vojvodine. Linija označava globalnu liniju padavina GWML [8]

## 5. Zaključak

Sadržaj tricijuma u 14 analiziranih voda, je od 2,12 do 9,72 TU, dok u dva uzorka tricijum nije detektovan. Dobijene vrednosti ukazuju da su analizirane vode mlade, starosti do 10 godina. Vrednosti ukazuju i da je reč o mešanju atmosferskih voda sa podzemnim vodama. U istim uzorcima određen je i sadržaj stabilnih izotopa  $\delta^2\text{H}$  i  $\delta^{18}\text{O}$ . Vrednosti izotopa u podzemnim vodama Vojvodine su od -8,16 do -12,06 ‰ za  $\delta^{18}\text{O}$  i od -59,41 do -87,55 ‰ za  $\delta^2\text{H}$ . Odnos  $\delta^2\text{H}$  i  $\delta^{18}\text{O}$  pokazuje da su sve vode poreklom iz padavina.

Nastavak istraživanja će uključiti uzorke sa dodatnih lokacija kako bi se ravnomerno pokrila sva četiri hidrogeološka sistema. Takođe se slična studija može ponoviti i uzorkovanjem sa istih lokacija posle letnjeg perioda čime bi se proverio uticaj padavina na prihranjivanje analiziranih podzemnih voda.

## 6. Zahvalnost

Ovo istraživanje je rađeno u okviru kratkoročnog projekta od posebnog interesa za održivi razvoj u AP Vojvodini pod nazivom „Istraživanje karakteristika podzemnih voda metodom elektrolitičkog obogaćenja tricijuma“, sufinansiranog od strane Sekretarijata za nauku i tehnološki razvoj, AP Vojvodina prema rešenju br. 114-451-2538/2014-02, kao i u okviru naučnih projekata Ministarstva obrazovanja, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije br. OI171002 i III43002.

## 7. Literatura

- [1] Odluka o utvrđivanju nacionalnog programa zaštite životne sredine, "Sl. glasnik RS", br. 12/2010.
- [2] E. Motzer William, Tritium Age Dating of Groundwater, In Hydro Visions Vol. 16, No. 2. Groundwater Resources Association of California (2007).
- [3] M. Milivojević, M. Perić, Studija: Geotermalna potencijalnost teritorije SR Srbije van teritorija SAP, 1990. Rudarsko-geološki fakultet, Beograd.
- [4] M. Hadžišehović, Separat: Interpretacija rezultata izotopskih analiza geotermalnih voda na teritoriji Srbije južno od Save i Dunava, u Milovanović, B. Studija: Ocena geotermalnih resursa na teritoriji Srbije južno od Save i Dunava sa posebnim akcentom na najperspektivnije lokalnosti, 1993. Geozavod, Beograd.
- [5] N. Horvatinčić, S. Grgić, Izotopna istraživanja voda s područja južnog Banata, *Geološki vjesnik Zagreb*, Vol.42, (1989) 187-199.
- [6] M. Martinović, M. Zlokolica-Mandić, Z. Vukićević, Geotermalni atlas Vojvodine, Pokrajinski sekretarijat za energetiku i mineralne sirovine, AP Vojvodina 2010.
- [7] V. Aksin, S. Milosavljević, Geotermalni potencijali SAP Vojvodine - istraživanje i korišćenje, Novi Sad 1982.
- [8] H. Craig, Isotopic variations in meteoric waters, *Science*. 133 (1961) 1702-1703.
- [9] J. Nikolov, N. Todorović, M. Janković, M. Voštinar, I. Bikit, M. Vesković, Different methods for tritium determination in surface water by LSC, *Appl. Radiat. Isot.* 71 (2013) 51–56.
- [10] J. Barešić, I. Krajcar Bronić, N. Horvatinčić, B. Obelić, A. Sironić, J. Kožar-Logar, Mjerenje tricija u uzorcima voda tekućinskim scintilacijskim brojačem uz elektrolitičko obogaćenje. U: Krajcar Bronić I, Kopjar N, Milić M, Branica G, ur. Zbornik radova Osmog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja: 13.-15. travnja 2011; Krk. Zagreb: HDZZ, (2011) 461-467.
- [11] I. Krajcar Bronić, J. Barešić, A. Sironić, N. Horvatinčić, Analiza stabilnosti sustava za pripremu i mjerenje  $^3\text{H}$  i  $^{14}\text{C}$ , U: Knežević Majer M, Krajcar Bronić I, Kopjar N, Milić M, Branica G, ur. Zbornik radova Devetog simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja: 10.-12. travnja 2013; Krk. Zagreb: HDZZ, (2013) 495-501.

## DETERMINATION OF THE GROUNDWATER AGE AND ORIGIN IN VOJVODINA

**Jovana NIKOLOV<sup>1</sup>, Tanja PETROVIĆ PANTIĆ<sup>2</sup>, Ines KRAJCAR BRONIĆ<sup>3</sup>,  
Nataša TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Jadranka BAREŠIĆ<sup>3</sup>, Tamara MARKOVIĆ<sup>4</sup>,  
Kristina BIKIT<sup>1</sup>, Milan TOMIĆ<sup>2</sup>**

1) *University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Novi Sad, Serbia, jovana.nikolov@df.uns.ac.rs*

2) *Geological Institute of Serbia, Belgrade, Serbia*

3) *Ruđer Bošković Institute, Zagreb, Croatia*

4) *Institute of Hydrogeology and Engineering Geology, Geological Institute of Croatia, Zagreb, Croatia*

### ABSTRACT

Tritium is a radioactive isotope of both natural and anthropogenic origin. The anthropogenic tritium originated from a series of nuclear explosions since 1952 onwards. Maximum concentration of tritium in the atmosphere was registered in 1963 up to 6000 TU. After military nuclear tests have been stopped, concentration of tritium gradually decreased because of short half-life (12.4 years) and exchange among various reservoirs.

Tritium is directly incorporated into the water molecule ( $\text{H}^3\text{HO}$ ), so it participates in the hydrological cycle and can be detected in groundwater. The presence of tritium in groundwater indicates recharge of aquifer by modern precipitation (i.e., recharge after 1952), while age of older groundwater can be determined by using carbon isotope  $^{14}\text{C}$ . Modern groundwater is therefore renewable, as opposed to the older and fossil water, and in this sense it can be better utilized. On the other hand, modern groundwater is more vulnerable to contamination from the surface. It is important to know the age of groundwater for better water resources planning and management.

This paper presents the results of the first part of the survey of groundwater from Vojvodina region. From the hydrogeological point of view, in the Pannonian basin (Serbia) four hydrogeological systems are identified. First hydrogeological system is widely spread in Serbian part of the Pannonian basin, except at Mt. Fruška gora and Vršачki breg. Aquifer is composed of sands and gravels. This system is the most important for water supply of the population and irrigation. Aquifer of the II hydrogeological system is composed of sandstone and marl. Aquifer of the III hydrogeological system is composed of sandstone, conglomerate, limestone and breccia, while aquifer of the IV hydrogeological system is composed of fractured and cavernous limestone and dolomite.

All examined water samples were electrolytically enriched and measured by Ultra-low-level liquid scintillation counter Quantulus 1220. The scintillation cocktails contained 8 mL of enriched water sample and 12 mL of scintillator Ultima Gold LLT. Beside measured concentrations of tritium activity the ratio of stable isotopes  $\delta^2\text{H}$  and  $\delta^{18}\text{O}$  have been also determined.

Results of samples from all hydrogeological system in the Pannonian basin can provide information about the depths of modern groundwater circulation and their spreading.



# OPTIMIZACIJA METODE ZA ISPITIVANJE $^{90}\text{Sr}$ U VODI I MLEKU DETEKCIJOM ČERENKOVljeVOG ZRAČENJA

**Nataša TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Ivana STOJKOVIĆ<sup>2</sup>, Jovana NIKOLOV<sup>1</sup>, Marija PAJIĆ<sup>3</sup> i Miodrag KRMAR<sup>1</sup>**

1) Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet, Departman za fiziku, Novi Sad, Srbija

2) Univerzitet u Novom Sadu, Fakultet Tehničkih nauka, Novi Sad, Srbija

3) Univerzitet u Novom Sadu, Poljoprivredni fakultet, Novi Sad, Srbija

e-mail: [natasa.todorovic@dr.uns.ac.rs](mailto:natasa.todorovic@dr.uns.ac.rs)

## 1. Uvod

Pored monitoringa površinskih voda oko nuklearnih reaktora, vrlo su popularne i kontrole sadržaja  $^{90}\text{Sr}$  u mleku i mlečnim proizvodima [1]. U radu je prikazana optimizacija metode za određivanje  $^{90}\text{Sr}$  u vodi i mleku detekcijom ČerenkovljeVOG zračenja na tečnom scintilacionom spektrometru Quantulus 1220<sup>TM</sup>.

## 2. Rezultati I diskusija

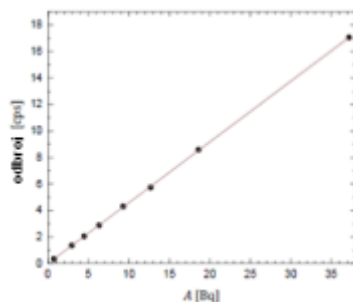
Manje konvencionalna metoda merenja aktivnosti  $^{90}\text{Sr}$  je detekcijom ČerenkovljeVOG zračenja na tečnim scintilacionim brojačima, koristeći sistem fotomultiplikatorskih cevi unutar brojača, bez mešanja uzorka sa tečnim scintilatorima. Tečni scintilacioni spektrometar Quantulus 1220<sup>TM</sup> je izuzetno pogodan za detekciju ČerenkovljeVOG zračenja (ČZ), uzimajući u obzir njegov sistem pasivne i aktivne zaštite koja omogućuje niskofonska merenja.

Energetski prag brzih beta čestica za emisiju ČerenkovljeVOG zračenja u vodi iznosi 256 keV. Emitovano ČZ leži u optičkom i UV delu elektromagnetnog spektra, tako da ga mogu detektovati fotomultiplikatori na tečnom scintilacionom detektoru. Većinu ČerenkovljeVOG zračenja (98.6%) generišu elektroni emitovani iz  $^{90}\text{Y}$  [2]. Usled daleko kraćeg perioda poluraspada,  $^{90}\text{Y}$  je nakon 18 dana, tj. nakon  $\sim 7T_{1/2}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) u radioaktivnoj ravnoteži sa svojim pretkom  $^{90}\text{Sr}$ . Merenjem aktivnosti  $^{90}\text{Y}$  određuje se i aktivnost  $^{90}\text{Sr}$ , što je prednost zbog velikih brzina elektrona emitovanih iz  $^{90}\text{Y}$  koje generišu ČerenkovljeVOG zračenje u medijumima kao što su voda, mleko itd.

Uzorci zapremine 20 ml odmeravaju se u plastične bočice, nakon čega su spremni odmah za merenje. Za kalibraciju detektorskog sistema je korišćen standardni kalibracioni izvor  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  (Czech Metrology Institute Inspectorate for Ionizing Radiation), pripremljen u rastvoru  $20 \text{ mg l}^{-1} \text{ Sr}(\text{NO}_3)_2 + 20 \text{ mg l}^{-1} \text{ Y}(\text{NO}_3)_3 + 3 \text{ g l}^{-1} \text{ HNO}_3$ , specifične aktivnosti  $(38.18 \pm 0.19) \text{ Bq ml}^{-1}$  na dan 1.10.2013, sa kombinovanom nesigurnosti 0.5%.

Prednost metode je što ne zahteva nikakvu hemijsku pripremu, pa je veoma jednostavna i brza. Ovo je naročita prednost s obzirom da su metode separacije stroncijuma kompleksne, veoma skupe i mogu da traju po par nedelja. Opisana metoda je najefikasnija *screening* metoda, pogodna u slučaju nuklearnih akcidenata kada je potrebno brzo utvrditi da li je prisutna povećana koncentracija  $^{90}\text{Sr}$  u životnoj sredini. S obzirom da se uzorak ne meša sa scintilacionom koktelom, u uzorcima nema hemiluminescencije kao ni hemijskog prigušenja. Nedostatak metode je da se pri analizi netransparentnih uzoraka javlja obojeno prigušenje, pri kojem se efikasnost detekcije redukuje, a samim tim se dobijaju aktivnosti  $^{90}\text{Sr}$  u uzorcima koje su manje od stvarnih.

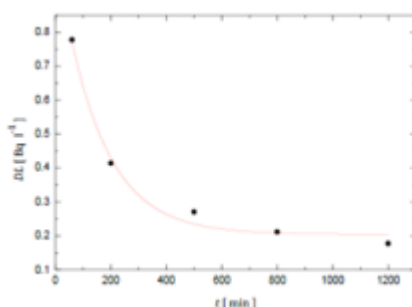
U svrhu kalibracije sistema, pripremljeno je nekoliko kalibracionih standarda različitih koncentracija aktivnosti  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  spajkovanih u destilovanoj vodi, tako da je ukupna zapremina svakog uzorka iznosila 20 ml. Standardi su ostavljeni 18 dana radi postizanja radioaktivne ravnoteže i zatim mereni u više ciklusa od po 100 min na tačnom scintilacionom detektoru Quantulus 1220<sup>TM</sup>. Optimalni prozor za numeričku akviziciju podataka određen je na osnovu snimljenih spektara prema najvišoj *FOM* (Figure of Merit) vrednosti. Odbroj pozadinskog zračenja slabo zavisi od širine izabranog prozora, dok efikasnost opada sa sužavanjem prozora, tako da je odabran opseg koji pokriva čitav spektar.



**Slika 1. Kalibracija detektorskog sistema za određivanje  $^{90}\text{Sr}$  u 20 ml vode u plastičnim bočicama**

Efikasnost detekcije  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  u plastičnim bočicama zapremine 20 ml iznosi  $(45.86 \pm 0.09)\%$ , slika 1, što je u skladu sa rezultatima dobijenim na tačnom scintilacionom brojaču TriCarb-u 3170 TR/SL prema istoj metodi [1].

Zavisnost donje granice detekcije od vremena merenja predstavljena je na slici 2. Za 300 minuta merenja minimalna detektabilna aktivnost  $^{90}\text{Sr}$  u u vodi iznosi  $0.32 \text{ Bq l}^{-1}$ . Maksimalna dozvoljena granica kontaminacije vode  $^{90}\text{Sr}$  prema [3] iznosi  $125 \text{ Bq l}^{-1}$ , a u našoj zemlji je propisana granica  $4.9 \text{ Bq l}^{-1}$  [4].



**Slika 2. Granica detekcije  $^{90}\text{Sr}$  koncentracije aktivnosti**

Zbog daleko kraćeg perioda poluraspada,  $^{90}\text{Y}$  je nakon 18 dana u radioaktivnoj ravnoteži sa svojim pretkom  $^{90}\text{Sr}$ . U slučaju nuklearnog akcidenta uzorak se može meriti i ranije, jer je preko 80% izotopa u ravnoteži nakon 7 dana [1].

Uzorci u kojima se meri sadržaj  $^{90}\text{Sr}$  su često obojeni (mleko, žute vode), čak i nakon radiohemijskih procedura pripreme. S obzirom da prisustvo boje u uzorcima redukuje broj fotona transmitovanih kroz sredinu i izaziva pomeranje spektra

Čerenkovljevog zračenja u odnosu na spektar neprigušenog standarda, pri određivanju aktivnosti uzoraka, neophodno je korigovati efikasnost detekcije i fon u obojenim uzorcima. Uticaj obojenog prigušenja na efikasnost detekcije u uzorcima predviđenim za detekciju Čerenkovljevog zračenja je u opštem slučaju izraženiji u odnosu na standardne LSC tehnike koje podrazumevaju mešanje sa scintilacionim koktelom, budući da Čerenkovljevi fotoni pokrivaju širi spektar talasnih dužina i slabijeg su intenziteta od fotona generisanih u scintilacionom koktelu.

Pomoću SCR metode (*Spectrum Channel Ratio*) [5] zvršena je optimizacija metode korekcije na obojeno prigušenje, tj. odabir najadekvatnije korekcionne prave dobijene merenjem prigušenih uzoraka poznatih aktivnosti. SCR metod je pogodan posebno kod visokoaktivnih uzoraka kod kojih je potrebno imati zadovoljavajuću statistiku brojanja, a osetljivost metoda opada sa smanjenjem energije  $\beta$ -emitera. Ovaj metod se ne može primeniti kod niskih aktivnosti  $^{90}\text{Sr}$  u uzorcima zbog velikih statističkih nesigurnosti pri brojanju. Pomeranje spektra prigušenih uzoraka vidljivo je preko izračunatog odnosa njihovih odbroja u dva regiona - *CR (channel ratio)*, definisanog kao:

$$CR = n_A / n_B$$

gde je:

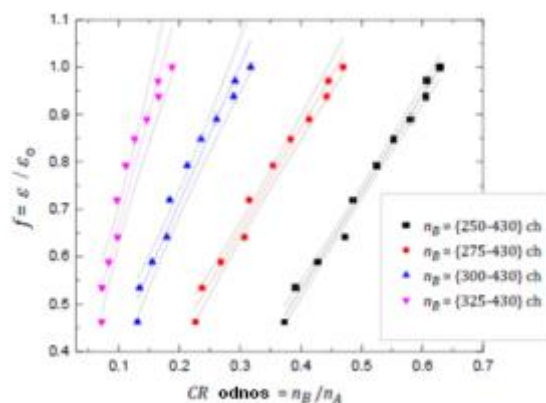
$n_A$  – integralni odbroj u A prozoru koji se odnosi na celokupni spektar  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ ,  
 $n_B$  – net odbroj u B prozoru koji se odnosi se na visokoenergetski deo spektra.

Faktor obojenja  $f$  se definiše kao:

$$f = \varepsilon / \varepsilon_0$$

gde je  $\varepsilon$  – efikasnost detekcije koja odgovara utvrđenoj vrednosti  $CR$  i koja će odstupati od referentne efikasnosti detekcije Čerenkovljevog zračenja u neprigušenim uzorcima  $\varepsilon_0$ .

Radi eksperimentalnog utvrđivanja odnosa  $f$  i  $CR$ , set od 10 standarda istih aktivnosti  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  kojima je dodata rastuća koncentracija obojenog prigušenja izmeren je u 5 ciklusa. Kako je u literaturi preporučeno opseg prozora  $B$  treba da počinje od kanala sa najvišim odbrojem. Odabrana su 4 različita prozora  $B$  za koje su određeni odnosi  $CR$ , slika 4, pa je ispitano i da li širina prozora  $B$  utiče na validnost korekcije, tj. dobijene korekcionne krive prigušenja. Rezultati merenja ukazuju da se vrednost  $f$  povećava kako se  $CR$  približava referentnoj vrednosti za koju je  $f=1$ .



**Slika 4. SCR metod – selekcija  $n_A$  i  $n_B$  prozora (opsega kanala)**

Za pozadinsko zračenje utvrđeno je da slabo zavisi od nivoa prigušenja za  $CR \geq 0.27$  ukoliko se uzmu u obzir i merne nesigurnosti, mada je evidentno da za viši nivo prigušenja fon ima nešto manju vrednost odbroja u odnosu na neprigušene uzorke.

### 3. Zaključak

Brza metoda određivanja aktivnosti  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  predstavljena u ovom radu podrazumeva detekciju Čerenkovljevog zračenja sistemom fotomultiplikatorskih cevi u tečnom scintilacionom brojaču, bez hemijske pripreme uzorka. Osnovna prednost je brzina dobijanja rezultata, koja naročito pogoduje akcidentalnim situacijama u kojima je poželjno što pre odrediti nivo potencijalne kontaminacije u životnoj sredini. Metoda je jeftina, jednostavna i nedestruktivna, sa granicom detekcije od  $0.32 \text{ Bq l}^{-1}$  za 300 minuta merenja. Njena pouzdanost je potvrđena u eksperimentima na spajkovanim uzorcima standarda  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ , kao i u učešću na IAEA interkomparaciji. S obzirom da nema hemijske separacije, izmerena koncentracija aktivnosti uzorka predstavlja ukupnu aktivnost  $^{89,90}\text{Sr}$ , koji se može naći u površinskim vodama ili mleku u slučaju nuklearnog akcidenta. Nedostatak metode je da ne može razlikovati izotope  $^{89,90}\text{Sr}$ . Eventualna interferencija sa drugim radionuklidima ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ), se može uračunati tako što se njihovo prisustvo odredi  $\gamma$ -spektroskopskim analizama, nakon se njihov doprinos oduzima od ukupnog odbroja Čerenkovljevog zračenja.

### 4. Literatura

- [1] Stamoulis K.C. et al, Rapid screening of  $^{90}\text{Sr}$  activity in water and milk samples using Cherenkov radiation, *J. Environ. Radioact.* 93 (2007) 144-156.
- [2] Tsroya S. et al, A comparative study of color quenching correction methods for Cherenkov counting, *Appl. Radiat. Isot.* 70 (2012) 397-403.
- [3] Euratom, 1989. Council Regulation No 2218/89 of 18 July 1989 amending Regulation (Euratom) No 3954/87. Official Journal L 211, 1-3.
- [4] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet (Sl. gl. RS 86/11 i 97/13, od 18.11.2011. i 6.11.2013.)

[5] Mosqueda F et al, Optimization of the channel ratio method for color quenching correction for measurement of  $^{90}\text{Sr}$  via Cerenkov counting, LSC 2005, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, Edited by Stanislaw Chalupnik, Franz Schönhofer, John Noakes. Pages 19–29, © 2006 by the Arizona Board of Regents on behalf of the University of Arizona

## OPTIMIZATION OF THE METHOD FOR $^{90}\text{Sr}$ DETERMINATION IN WATER AND MILK VIA CERENKOV COUNTING

**Nataša TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Ivana STOJKOVIĆ<sup>2</sup>, Jovana NIKOLOV<sup>1</sup>, Marija PAJIĆ<sup>3</sup>  
and Miodrag KRMAR<sup>1</sup>**

<sup>1</sup> *University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics,  
Novi Sad, Serbia*

<sup>2</sup> *University of Novi Sad, Faculty of Technical Sciences, Novi Sad, Serbia*

<sup>3</sup> *University of Novi Sad, Faculty of Agriculture, Novi Sad, Serbia*

*e-mail: [natasa.todorovic@dr.uns.ac.rs](mailto:natasa.todorovic@dr.uns.ac.rs)*

A method for screening  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  in water and milk samples is proposed. This method is based on a liquid scintillation technique taking advantage of Cerenkov radiation, which is produced in a liquid medium and then detected by the photomultipliers of a Liquid Scintillation Counter Quantulus 1220TM.

Twenty millilitres of water and milk samples were added in plastic vials without any chemical pretreatment. The detection limit was  $0.32 \text{ Bq l}^{-1} \text{ }^{90}\text{Sr}$  for water samples.

The channel ratio (CR) method has been employed to correct color quenching in water and milk samples. Several studies to optimize the evaluation of color quenching via the channel ratio method have been done in order to fit the windows of measurement that give the best results. The procedure has been validated with an IAEA intercomparison and the measurement of samples with known activity.

# ОДРЕЂИВАЊЕ СПЕЦИФИЧНЕ АКТИВНОСТИ ВЕШТАЧКИХ РАДИОНУКЛИДА У УЗОРЦИМА МЛЕКА СА ТЕРИТОРИЈЕ РЕПУБЛИКЕ СРБИЈЕ У 2014. ГОДИНИ

**Јована ИЛИЋ, Сузана БОГОЈЕВИЋ, Весна АРСИЋ, Ирена ТАНАСКОВИЋ**  
*Институт за медицину рада Србије „Др Драгомир Карајовић“, Београд, Србија,  
jovana.ilic@institutkarajovic.rs*

## САДРЖАЈ

Главни путеви уношења вештачких радионуклида у људски организам јесу инхалација и ингестија. Узимајући у обзир штетно дејство радиоактивних супстанци на здравље људи посебну пажњу треба обратити на ниво радиоактивности у храни, нарочито млека које је важна намирница у исхрани човека, а посебно деце.  $^{137}\text{Cs}$  ( $t_{1/2}=30,2$  год.) и  $^{90}\text{Sr}$  ( $t_{1/2}=28,8$  год.) су физиони производи који представљају највећу потенцијалну опасност с обзиром на дуго време полураспада као и на велику метаболичку и хемијску сличност са калијумом и калцијумом, респективно. У раду су анализирани узорци млека са 7 локација на територији Републике Србије. Одређена је средња вредност специфичне активности вештачких радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  за сваку локацију и процењена ефективна доза која потиче од уноса ових радионуклида млеком за одрасло становништво у 2014. години. Резултати мерења показују да су вредности специфичне активности ових радионуклида веома ниске у односу на границу садржаја  $^{137}\text{Cs}$  односно изведену концентрацију  $^{90}\text{Sr}$  у млеку, као и да процењене ефективне дозе зрачења које потичу од уноса ових радионуклида млеком не представљају значајно оптерећење за одрасло становништво Републике Србије.

## 1. Увод

Контаминација животне средине вештачким радионуклидима последица је вршења нуклеарних проба, нуклеарних акцидената као и коришћења нуклеарних технологија. Од великог броја радионуклида који су на ове начине испуштени у животну средину, највећу опасност по здравље становништва представљају  $^{137}\text{Cs}$  ( $t_{1/2}=30,2$  год.) и  $^{90}\text{Sr}$  ( $t_{1/2}=28,8$  год.) с обзиром на њихова дуга времена полураспада 30,2 и 28,8 година као и хемијска и метаболичка својства која су врло слична са калијумом и калцијумом респективно. Показало се да је конзумирање млека и млечних производа најзначајнији пут уношења радионуклида у људски организам и због тога је од великог значаја праћење концентрације  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  у различитим узорцима из животне средине, а посебно у млеку и млечним производима. Млеко представља једну од најзначајнијих животних намирница, нарочито у исхрани деце, а такође је осетљив индикатор за присуство физионих продуката у животној средини јер садржи и калијум и калцијум. Одређивање специфичне активности  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  у узорцима млека са територије Републике Србије вршено је у лабораторији за испитивање радиоактивности Института за медицину рада Србије „Др Драгомир Карајовић“, а у оквиру мониторинга радиоактивности у животној средини за 2014. годину [1]. Програмом мониторинга [2] су утврђени места, временски интервали, врсте и начини систематског испитивања радиоактивности у животној средини.

## 2. Материјал и методе

Сагласно законској регулативи узорци млека су током 2014. године прикупљани са седам локација у Србији: Београд, Нови Сад, Соболица, Зајечар, Ниш, Ужице и Врање из индивидуалних газдинстава и млекара (Слика1). Дневно је узорковано по 200 ml млека, а анализирани су збирни месечни узорци запремине 6 l са сваке локације, укупно 83 узорка.

Специфична активност  $^{137}\text{Cs}$  одређена је гамаспектрометријском методом [3], мерењем на 2 HPGe детектора произвођача EG&G „ORTEC“, релативне ефикасности 25 % и резолуције 1,85 keV и 1,95 keV на енергији 1332 keV ( $^{60}\text{Co}$ ). Енергетска калибрација као и калибрација ефикасности детектора обавља се помоћу радиоактивног стандарда AMERSHAM. Време мерења једног узорка било је 10000 s, док је основно зрачење мерено 250000 s.

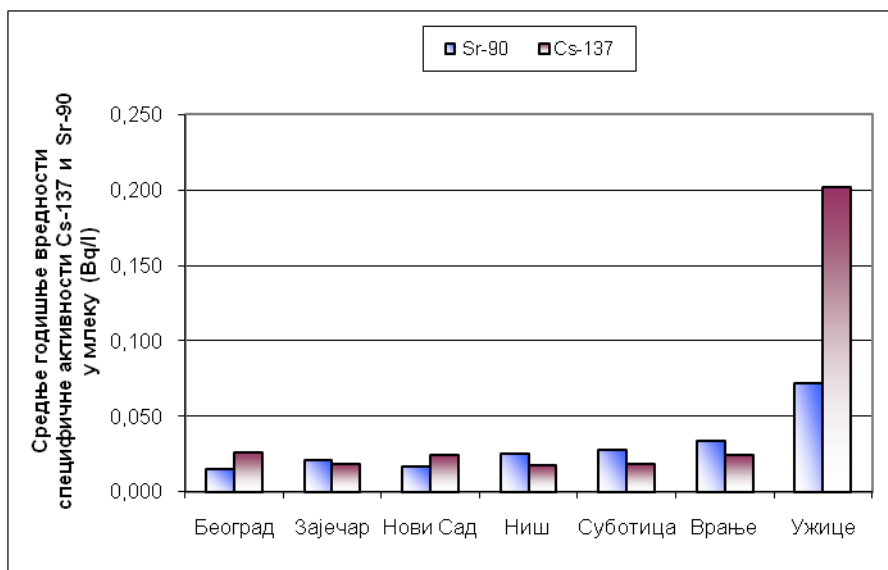
Специфична активност  $^{90}\text{Sr}$  одређивана је методом која подразумева радиохемијску сепарацију стронцијума оксалном киселином[4]. Специфична активност  $^{90}\text{Sr}$  се одређује преко активности његовог потомка  $^{90}\text{Y}$ , након успостављања радиоактивне равнотеже  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$ . Мерење активности формираног  $^{90}\text{Y}$  врши се пропорционалним  $\alpha\beta$  гасним бројачем PIC-WPC-9550, Protean, основног бета зрачења 0.4 имп/мин. Ефикасност бројача износи 44 %, и одређена је помоћу стандарда  $^{90}\text{Sr}$ .



Слика 1. Мапа мерних места на територији Републике Србије

## 3. Резултати и дискусија

На Слици 2 приказане су средње годишње вредности специфичне активности  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  у узорцима млека са седам локација у Србији током 2014. год. Специфичне активности  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  су највише у региону Ужица, вредности су у опсегу  $<0,03$ - $0,57$  Bq/l за  $^{137}\text{Cs}$  и  $0,019$ - $0,211$  Bq/l за  $^{90}\text{Sr}$ , што се и очекује с обзиром на то да су у овом региону након акцидента у Чернобилу 1986. год. измерене највеће активности ових радионуклида у падавинама [5].



Слика 2. Специфичне активности <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr у узорцима млека са седам локација у Србији

На основу израчунатих средњих годишњих вредности специфичне активности <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr као и податка о годишњој потрошњи млека по члану домаћинства у Србији од 49,4 [6] извршена је процена ефективне дозе зрачења од уноса ових радионуклида у људски организам млеком, за одрасло становништво. За процену су коришћени фактори очекиване ефективне дозе по јединичном уношењу радионуклида ингестијом за становништво према Правилнику о границама радиоактивне контаминације лица, радне и животне средине и начину спровођења деконтаминације [7].

Табела 1. Процењена годишња ефективна доза ( $\mu\text{Sv}/\text{год}$ ) од уноса <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs млеком

Локација	Ефективна доза <sup>90</sup> Sr ( $\mu\text{Sv}/\text{год}$ )	Ефективна доза <sup>137</sup> Cs ( $\mu\text{Sv}/\text{год}$ )
Београд	0,02	0,02
Зајечар	0,03	0,01
Нови Сад	0,02	0,02
Ниш	0,03	0,01
Суботица	0,04	0,01
Врање	0,05	0,02
Ужице	0,10	0,13

Резултати мерења извршених током 2014. године (Слика 2), показују да су вредности специфичне активности ових радионуклида далеко испод границе садржаја <sup>137</sup>Cs од 15 Bq/l [8], и изведене концентрације <sup>90</sup>Sr од 64 Bq/l у млеку [1] као и да је ефективна доза за појединца из становништва која потиче од уноса млека врло ниска (Табела 1)



#### 4. Закључак

Измерене вредности специфичне активности  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  у узорцима млека са седам локација у Србији током 2014. године, као и процењене ефективне дозе зрачења које потичу од уноса ових радионуклида млеком не представљају значајно оптерећење за одрасло становништво Републике Србије. Ипак, неопходно је стално праћење квалитета млека и других узорака из животне средине са радиолошког аспекта с обзиром на то да јонизујуће зрачење представља један од фактора у процени ризика по здравље становништва.

#### 5. Литература

- [1] Агенција за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије, Извештај о излагању становништва јонизујућем зрачењу у 2014 год., Београд, јул 2015. год., [www.srbatom.gov.rs](http://www.srbatom.gov.rs)
- [2] Правилник о утврђивању програма систематског испитивања радиоактивности у животној средини, Сл. гл. РС 100/2010
- [3] Measurement of radionuclides in food and the environment, A Guidebook, Technical Report Series No. 295, 1989. IAEA, Vienna.
- [4] Р. Брновић. Стронцијум 90 у животној средини човека, Магистарски рад, 1972. Београд.
- [5] G. Pantelić, Lj. Javorina, G. Vitorović, V. Vuletić, I. Tanasković, M. Eremić-Savković. Two decades of  $^{137}\text{Cs}$  activity measurements in cattle feed and milk in Serbia, eds. CD-ROM Proceedings of IRPA Regional Congress for Central and Eastern Europe "Regional and Global Aspects of Radiation Protection"; September 24-28, 2007; Brasov, Romania. (2007) T9 O-7
- [6] Републички завод за статистику, Анкета о потрошњи домаћинства, 2013. год., Београд 2014. год., стр. 71
- [7] Правилник о границама радиоактивне контаминације лица, радне и животне средине и начину спровођења деконтаминације, Сл. гл. РС 38/11
- [8] Правилник о границама садржаја радионуклида у води за пиће, животним намирницама, сточној храни, лековима, предметима опште употребе, грађевинском материјалу и другој роби која се ставља у промет, Сл. гл. РС 86/11

## **RADIOACTIVITY OF MILK FROM SERBIA DURING THE YEAR 2014**

**Jovana ILIĆ, Suzana BOGOJEVIĆ, Vesna ARSIĆ, Irena TANASKOVIĆ**

Serbian Institute of Occupational Health „Dr Dragomir Karajović“, Belgrade,  
Serbia, jovana.ilic@institutkarajovic.rs

### **ABSTRACT**

The main pathways of artificial radionuclides into the human body are inhalation and ingestion through food and drinking water. Taking into account the hazardous effect of radioactive compounds on human health, special attention should be paid to the level of radionuclides in food, especially milk, which has important place in human diet, particularly in children's. Among the man-made radionuclides present in global fallout,  $^{137}\text{Cs}$  (half-life 30.17 y) and  $^{90}\text{Sr}$  (half-life 28.78 y) have been considered as the fission products of greatest potential hazard to humans due to their long half-lives and their chemical and metabolic similarities to potassium and calcium, respectively. This paper presents the results of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  activity concentrations monitoring in milk samples which were taken from seven locations in Serbia during the year 2014. The mean value of activity concentrations for each location was determined. Effective doses received from milk consumption were estimated for adult population in the Republic of Serbia. The results of measurements carried out during the year 2014, show that activity concentrations of these radionuclides were very low compared to the maximum allowed content of  $^{137}\text{Cs}$  and derived concentration of  $^{90}\text{Sr}$  in milk.

## KONCENTRACIJE ČETIRI RADIONUKLIDA I ČETIRI METALA U MIŠIĆU *LIZA RAMADA*

Ivanka ANTOVIĆ <sup>1</sup>, Nikola SVRKOTA <sup>2</sup>, Ranka ŽIŽIĆ <sup>2</sup> i Nevenka ANTOVIĆ <sup>3</sup>

1) Departman za biomedicinske nauke, Državni univerzitet u Novom Pazaru, Srbija,

[ivanka\\_antovic@yahoo.com](mailto:ivanka_antovic@yahoo.com)

2) Centar za ekotoksikološka ispitivanja, Podgorica, Crna Gora,

[nikola.svrkota@ceti.co.me](mailto:nikola.svrkota@ceti.co.me)

3) Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet Crne Gore, Podgorica, Crna Gora, [nena@rc.pmf.ac.me](mailto:nena@rc.pmf.ac.me)

### SADRŽAJ

Koncentracije aktivnosti četiri radionuklida (<sup>137</sup>Cs, <sup>40</sup>K, <sup>214</sup>Bi/<sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ac/<sup>232</sup>Th) u mišiću ribe *Liza ramada* iz južnog Jadranskog mora (zaliv Boka Kotorska, Crna Gora), određene pomoću standardnog HPGe gama spektrometra, pokazale su gornje nivoe od 2 Bq/kg, 96 Bq/kg, 3.6 Bq/kg, 7.3 Bq/kg, respektivno. Koncentracioni faktori kojima se procjenjuje transfer radionuklida iz vode u tkivo ribe su  $\leq 500, 212, 365$  – za <sup>137</sup>Cs, <sup>214</sup>Bi, <sup>228</sup>Ac, respektivno. Ovdje predstavljeni rezultati saglasni su sa prethodno dobijenim za druge vrste roda *Liza*, kao i ostale izučavane vrste iz porodice *Mugilidae* iz južnog Jadranskog mora, s izuzetkom <sup>40</sup>K koji pokazuje nešto niže koncentracije aktivnosti (srednja vrijednost – 77 Bq/kg). Koncentracije metala Pb, Cr, Cu i Zn, određene pomoću iCAP 6300 ICP-OES, u mišiću *L. ramada* pokazale su redosljed Zn > Cu > Cr > Pb, uz odnos prema koncentracijama u morskoj vodi od 1540, 110, 196, < 20, respektivno.

### 1. Uvod

Tokom prethodnih radioekoloških ispitivanja marinske sredine južnog Jadranskog mora, i s tim u vezi zaliva Boka Kotorska, analizirani su morska voda, sediment, mulj sa detritusom, i pojedine vrste riba – u prvom redu cipoli (porodica *Mugilidae*) (npr. [1-3]). Pri tom, razmatrano je pet od ukupno šest vrsta Evro-Mediterranskih cipola prisutnih u vodama Jadranskog mora uz obalu Crne Gore – *Mugil cephalus* Linnaeus, 1758, *Chelon labrosus* Risso, 1826, *Liza aurata* Risso, 1810, *Liza ramada* Risso, 1826 i *Liza saliens* Risso, 1810. Odnosno, u datom smislu do sada jedino nije razmatrana vrsta *Oedalechilus labeo* Cuvier, 1829, i ona bi trebalo da bude predmet budućih istraživanja. Takođe, u kontinuitetu treba da budu razmatrane i ostale vrste, uz dodatna istraživanja čiju potrebu nameću dobijeni rezultati i savremene ekološke potrebe. Tim prije što bi transferi radionuklida (tj. koncentracioni faktori) mogli ukazati na metaboličke nivoe kod različitih vrsta riba – kroz poređenja koncentracionih faktora i sadržaja radionuklida u životnoj sredini.

S ciljem dobijanja kompletne radioekološke i ekotoksikološke slike, u novoj seriji ispitivanja, osim radionuklida, tj. njihovih koncentracija aktivnosti, istraživanja prate i analize sadržaja teških metala, jer se na taj način rizici mogu cjelovitije posmatrati – i za pojedinu vrstu i za datu životnu sredinu. Ovdje su predstavljene koncentracije aktivnosti četiri radionuklida (<sup>137</sup>Cs, <sup>40</sup>K, <sup>214</sup>Bi/<sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ac/<sup>232</sup>Th), kao i koncentracije četiri metala – Pb, Cr, Cu i Zn – u mišiću vrste *L. ramada*, što može biti korišćeno u daljim analizama i procjenama rizika – kako za vrstu, tako i za čovjeka koji je koristi u ishrani.

## 2. Materijal i metodi

Jedinke *L. ramada*, dužine 37.4 cm i 35.4 cm (uzorci 1 i 2, respektivno), uzorkovane su u zalivu Boka Kotorska (Tivat), a na istom mjestu uzorkovana je i voda (20 L). Za pripremu uzoraka korišćena je standardna procedura [4]. Nakon disekcije, mišić je pripremljen za gama spektrometrijsku analizu, smješten u 50 mL-cilindričnu plastičnu posudu (masa mišića: 23.3 g i 36.3 g, respektivno), a voda je evaporisana do 1 L i smještena u Marineli posudu. Posude su proizvodnje *Czech Metrology Institute*, a mješavine gama emitujućih radionuklida u plastičnoj cilindričnoj posudi od 50 mL i Marineli posudi od 1 L, od istog proizvođača, korišćene su za kalibraciju spektrometara HPGe ORTEC-GEM-40190, relativne efikasnosti 40 % i ORTEC-GEM-30185-S, relativne efikasnosti 30 %. Živo vrijeme mjerenja bilo je: 83 743 s i 86 589 s (mišići) i 80 176 s (voda). Za određivanje koncentracija aktivnosti produkata raspada  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{232}\text{Th}$  ( $^{214}\text{Bi}$  i  $^{228}\text{Ac}$ , respektivno), kao i  $^{40}\text{K}$  i  $^{137}\text{Cs}$ , korišćeni su intenzivni fotopikovi i standardni postupak zasnovan na neto brzini brojanja u fotopiku, intenzitetu gama zraka, kalibracijom određenoj fotoefikasnosti, i masi uzorka. Minimalna detektibilna aktivnost određivana je korišćenjem 3MDA metoda [5]. Mišić vrste *L. ramada* prikazan je na slici 1.



Slika 1. Mišić *L. ramada*

U *Centru za ekotoksikološka ispitivanja* u Podgorici takođe su, u mišiću *L. ramada* 1 i vodi, nakon odgovarajuće pripreme, izmjerene i koncentracije metala Pb, Cr, Cu, Zn, pomoću iCAP 6300 ICP-OES – *Thermo Scientific*; a mjerna nesigurnost bila je od 5.18 % (Pb) do 8.93 % (Zn).

## 3. Rezultati i diskusija

Koncentracije aktivnosti radionuklida date su u tabeli 1, a koncentracije četiri izabrana metala – u tabeli 2.

Koncentracije aktivnosti radionuklida dominantno određuju dozu zračenja kojoj je vrsta *L. ramada* izložena (eksterno i interno ozračivanje), dok su s druge strane sadržaji metala po jediničnoj masi, i u okolnom prostoru, dominantno važni za procjenu njihovog uticaja, tim prije što metali mogu biti toksični za akvatične organizme.

Tabela 1. Koncentracije aktivnosti radionuklida

Uzorak	$^{137}\text{Cs}$	$^{40}\text{K}$	$^{214}\text{Bi}$	$^{228}\text{Ac}$
Mišić <i>L. ramada</i> 1 (Bq/kg)	< 2	95.4 ± 8.2	≤ 3.6	≤ 7.3
Mišić <i>L. ramada</i> 2 (Bq/kg)	≤ 1.16	59 ± 5	3.54 ± 0.38	≤ 4.49
Voda (Bq/L)	≤ 0.004	8.25 ± 0.28	0.017 ± 0.002	≤ 0.02

Nivo  $^{137}\text{Cs}$  u mišiću *L. ramada* 1 ispod minimalne detektibilne aktivnosti, tj. ispod 2 Bq/kg, saglasan je sa prethodno određenom koncentracijom aktivnosti u mišiću druge vrste iz roda *Liza* – *L. aurata* (0.39 Bq/kg i 0.52 Bq/kg [1]), dok je u vrsti *C. labrosus*, prethodno određena nešto veća koncentracija aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  (od 2.28 Bq/kg do 3.67 Bq/kg [2]). Treba takođe napomenuti da je većina dosadašnjih istraživanja bila vezana za cijele jedinke, te da je, između ostalog, zaključeno da smanjenje koncentracije aktivnosti ovog izotopa u ribi ustvari reflektuje promjene u njegovoj koncentraciji aktivnosti u vodi, što je potvrđeno u istraživanjima pojedinih vrsta iz Baltičkog mora (*Gadus morhua*, *Clupea harengus*, *Platichthys flesus*) [6].

Koncentracija aktivnosti  $^{40}\text{K}$  (95.4 Bq/kg i 59 Bq/kg, srednja: 77.2 Bq/kg) je niža od onih koje su tokom prethodnog istraživanja dobijene za neke druge vrste mugilida.

Ra-226, tj. njegov potomak  $^{214}\text{Bi}$ , određen je na nivou 3.6 Bq/kg („≤“ u tabeli 1 znači da je aktivnost određena u standardnoj proceduri, ali i da je procijenjena minimalna detektibilna aktivnost bila približno ista). U mišićima druge vrste istog roda (*L. aurata*), srednja koncentracija aktivnosti  $^{226}\text{Ra}$  bila je oko 2.3 Bq/kg [3]. U vrsti *C. labrosus*, koncentracija aktivnosti bila je između 0.88 Bq/kg i 3.05 Bq/kg [2].

Th-232 (preko njegovog potomka  $^{228}\text{Ac}$ ), određen je na nivou  $\leq 7.3$  Bq/kg, što je u saglasnosti sa prethodnim rezultatima za *L. aurata* i druge vrste iz porodice Mugilidae, gdje su za procjenu nivoa aktivnosti  $^{232}\text{Th}$  korišćeni različiti njegovi potomci [7] ((1.25-1.57) Bq/kg, 4.54 Bq/kg i 7.39 Bq/kg, i drugi do sada nepublikovani rezultati – dobijeni pomoću HPGe spektrometra, ali i drugih tehnika/metoda).

Koncentracije aktivnosti radionuklida u okolnoj vodi, na nivou minimalne detektibilne aktivnosti ( $^{137}\text{Cs}$  i  $^{228}\text{Ac}$ ), uz nisku aktivnost  $^{214}\text{Bi}$ , i napomenu da je uzorkovano 20 L i zatim upareno do 1 L, i nakon toga mjereno, daju vrijednosti koncentracionih faktora:

*koncentracija aktivnosti radionuklida u mišiću (Bq/kg)/koncentracija aktivnosti radionuklida u vodi (Bq/L)*

u iznosu koji je (jednak ili manji od) 500, 11.6, 212, 365 – za  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ , respektivno.

**Tabela 2. Koncentracije metala**

Element	Mišić <i>L. ramada</i> 1 (mg/kg)	Voda (mg/L)
Pb	< 0.1	$\leq 0.005$
Cr	0.196	$\leq 0.001$
Cu	0.22	0.002
Zn	4.62	0.003

Iz razmatranja drugih kontaminanata, kao što su metali – od značaja za zaštitu vrste i životne sredine, slijedi: u ovom radu razmatrani Pb, Cr, Cu i Zn, pokazali su (izuzev Pb) koncentracije iznad minimalne detektibilne (tabela 2), kao i odnose:

*koncentracija metala u mišiću ribe (mg/kg)/koncentracija metala u vodi (mg/L),*

u iznosu (jednako ili manje od): 20, 196, 110, 1540, respektivno; što je osnov za buduća istraživanja u vezi sa bioakumulacijom metala u pojedinim tkivima ove vrste ribe.

U prilog tome, na primjer, i prethodna istraživanja urađena na slatkovodnoj vrsti *Clarias gariepinus* (Teugels) [8], u kojoj je distribucija razmatranih metala bila  $Pb > Cr > Cu > Zn$  (uz relativno nisku koncentraciju u mišićima). U mišiću *L. ramada* koncentracije metala su:  $Zn > Cu > Cr > Pb$ , zbog čega će uslijediti dalje analize i istraživanja, tim prije što je u poredbenom radu vrsta bila izložena otpadnim vodama [8], a ovdje su razmatrane koncentracije metala „prirodno“ sadržane u vrsti i okolnoj vodi.

#### 4. Zaključak

Gornji nivoi koncentracija aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{214}\text{Bi}/^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ac}/^{232}\text{Th}$  u ovdje analiziranom mišiću *L. ramada* (2 Bq/kg, 96 Bq/kg, 3.6 Bq/kg, 7.3 Bq/kg, respektivno), saglasni su sa nivoima koji su prethodno određeni u drugim vrstama roda *Liza*, kao i ostalim izučavanim vrstama iz porodice Mugilidae iz južnog Jadranskog mora, s izuzetkom  $^{40}\text{K}$  koji pokazuje niže koncentracije aktivnosti. Na osnovu ovih rezultata, bilo kakav efekat usljed prisustva navedenih radionuklida – u ribi i okolnoj vodi, ne bi se mogao očekivati. S druge strane, među razmatranim metalima najveću koncentraciju pokazao je Zn, a najmanju Pb, pri čemu je opseg koncentracionih faktora (iz vode) od < 20 do 1540, što zahtijeva dalje analize.

#### 5. Literatura

- [1] I. Antović i N. M. Antović. Aktivnosti  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{40}\text{K}$  u jedinkama vrste cipola (Mugilidae) *Liza aurata* iz južnog Jadranskog mora. *Zbornik radova XXV simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore*, Kopaonik, Srbija, 2009. 20-24.
- [2] I. Antovic, N. M. Antovic. Determination of concentration factors for Cs-137 and Ra-226 in the mullet species *Chelon labrosus* (Mugilidae) from the South Adriatic Sea. *J. Environ. Radioact.* 102 (2011) 713-717.
- [3] I. Antović i N. M. Antović. Koncentracioni faktori  $^{226}\text{Ra}$  kod vrste cipola (Mugilidae) *Liza aurata*. *Zbornik radova XXVI simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore*, Tara, Srbija, 2011. 141-144.
- [4] IAEA. Measurement of radionuclides in food and the environment (a guidebook). Technical reports series No. 295. 1989. IAEA, Vienna
- [5] ORTEC. Gamma-vision 32. Gamma-ray spectrum analysis NCA emulator for Microsoft (2003).
- [6] T. Zelewska, M. Suplinska. Fish pollution with anthropogenic  $^{137}\text{Cs}$  in the southern Baltic Sea. *Chemosph.* 90 (2013) 1760-1766.
- [7] N. M. Antovic, I. Antovic, N. Svrkota. Levels of thorium-232 in the South Adriatic Sea marine environment of Montenegro. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 284 (2010) 605-614.
- [8] T. T. Gbem, [J. K. Balogun](#), [F. A. Lawal](#), [P. A. Annune](#). Trace metal accumulation in *Clarias gariepinus* (Teugels) exposed to sublethal levels of tannery effluent. *Sci. Total Envir.* 271 (2001) 1-9.

#### Zahvalnica

Istraživanja u *Centru za ekotoksikološka ispitivanja* u Podgorici finansijski su podržana od strane Ministarstva nauke Crne Gore.

## CONCENTRATIONS OF FOUR RADIONUCLIDES AND FOUR METALS IN *LIZA RAMADA* MUSCLE

Ivanka ANTOVIĆ<sup>1</sup>, Nikola SVRKOTA<sup>2</sup>, Ranka ŽIŽIĆ<sup>2</sup> and Nevenka ANTOVIĆ<sup>3</sup>

1) Department of Biomedical Sciences, State University of Novi Pazar, Serbia,

[ivanka\\_antovic@yahoo.com](mailto:ivanka_antovic@yahoo.com)

2) Centre for Ecotoxicological Research, Podgorica, Montenegro,

[nikola.svrkota@ceti.co.me](mailto:nikola.svrkota@ceti.co.me)

3) Faculty of Natural Sciences and Mathematics, University of Montenegro, Podgorica

[nenaa@rc.pmf.ac.me](mailto:nenaa@rc.pmf.ac.me)

### ABSTRACT

Activity concentrations of four radionuclides ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{214}\text{Bi}/^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ac}/^{232}\text{Th}$ ) in muscles of the fish *Liza ramada* from the South Adriatic Sea (Boka Kotorska Bay, Montenegro), determined using a standard HPGe gamma spectrometer, showed upper levels of 2 Bq/kg, 96 Bq/kg, 3.6 Bq/kg, 7.3 Bq/kg, respectively. The concentration factors used to evaluate radionuclide transfer from water to fish tissue are found to be  $\leq 500$ , 212, 365 – for  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ , respectively. Here presented results are in accordance with previously obtained for the other species from the *Liza* genus, as well as other studied species from the family of Mugilidae from the South Adriatic Sea, except for  $^{40}\text{K}$  showing somewhat lower activity concentrations (an average – 77 Bq/kg). The concentrations of metals Pb, Cr, Cu i Zn, determined using iCAP 6300 ICP-OES, in *L. ramada* muscle showed an order  $\text{Zn} > \text{Cu} > \text{Cr} > \text{Pb}$ , together with ratio to the concentrations in seawater of 1540, 110, 196,  $< 20$ , respectively.

## RADIOAKTIVNOST LEKOVITOG BLATA U BANJAMA SRBIJE

**Irena TANASKOVIĆ, Suzana BOGOJEVIĆ, Vesna ARSIĆ, Jovana ILIĆ**  
*Institut za medicinu rada Srbije "Dr Dragomir Karajović", Deligradska 29,  
11000 Beograd, Srbija, irena.tanaskovic@institutkarajovic.rs*

### **SADRŽAJ**

*Mnoga ležišta mineralne vode u Srbiji, imaju apsolutnu starost reda 1350-30000 godina, merenu prema sadržaju izotopa  $^{14}\text{C}$ . Za formiranje ležišta mineralnih i termalnih voda neophodan je uslov slabe vodozamene, čime se omogućava duži kontakt vode i stena. Mineralne vode natapaju zemljište stvarajući lekovito blato peloid obogaćeno raznim komponentama. U radu su prikazani rezultati merenja ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti, specifične aktivnosti  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$  i  $^{235}\text{U}$  u lekovitom banjaskom blatu peloidu uzorkovanom u banjama Srbije. Lekovita blata su uzorkovana na terenima različitih tipova geološke sredine. Maksimalne vrednosti ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti su 180 Bq/kg i 970 Bq/kg, respektivno. Maksimalne specifične aktivnosti  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$  i  $^{235}\text{U}$  su 650 Bq/kg, 40 Bq/kg, 57 Bq/kg, 47 Bq/kg, 55 Bq/kg i 2,4 Bq/kg, respektivno.*

### **1. Uvod**

Unutar teritorije Srbije izdvaja se nekoliko geotektonskih jedinica (celina) markiranih određenim specifičnostima u geološkom sastavu, geomorfološkom sklopu i hidrogeološkim uslovima. Podela na geotektonske hidrogeološke jedinice, Panonski basen, Vardarska zona, Karpatobalkanidi i Srpsko-Makedonski masiv, izvršena je na osnovu nastanka, sastava i tektonskog sklopa tektonskih struktura [1].

Balneologija je nauka o lekovitom dejstvu mineralnih izvora na ljudski organizam. Srbija raspolaže velikim brojem banja, u kojima se mineralna voda koristi u balneološke svrhe za piće, kupanje i orožavanje, a gde postoji mogućnost koristi se i lekovito blato peloid. U prirodi je prisutan veliki broj mineralnih lekovitih voda, koje se mogu klasifikovati na osnovu više kriterijuma, kao što su mineralizacija, jonski i gasni sastav, sadržaj terapijski aktivnih komponenti, radioaktivnost, kiselost, odnosno alkalnost i temperatura. Minerali predstavljaju izdvojene prirodne neorganske čvrste čestice sa kristalastom strukturom, od kojih su sastavljene skoro sve stene. Mali broj minerala se rastvara u vodi, na primer halit, a većina je slabo rastvorljiva ili potpuno nerastvorljiva. Posledica toga je da podzemna voda u većini slučajeva vrši fizički transport minerala. Mineralne banjске vode iz dubina iznose najfiniji mulj bogat mineralima i aktivnim komponentama, natapajući tlo i pretvarajući ga u naslage lekovitog blata. Nivo zdravlja stanovništva formira se pod uticajem ogromnog broja unutrašnjih i spoljašnjih faktora. Jedan od spoljašnjih faktora je primena lekovitog banjškog blata u terapijske svrhe. Cilj rada je ispitivanje radioaktivnosti lekovitog banjškog blata peloida sa različitih geoloških područja Srbije i uticaj hidrogeoloških karakteristika nalazišta blata na radioaktivnost.

### **2. Materijal i metode**

Lekovita blata su uzorkovana u banjama Srbije u periodu 2014-2015. god., gde se aktivno koristi u balneološke svrhe. Uzorkovanje je bazirano na petrološko-strukturnim karakteristikama terena. Uzorci blata su sušeni na  $105\text{ }^{\circ}\text{C}$ , mleveni i prosejani kroz sito



otvora 2 mm [2, 3]. Merenja ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti vršena su na niskofonskom  $\alpha\beta$  - proporcionalnom gasnom brojaču PIC-WPC-9550 proizvođača Protean Instrument Corporation. Nivo osnovnog alfa zračenja je 0,1 imp/s, a osnovnog beta zračenja 0,4 imp/min. Efikasnost brojača za alfa zračenje je 31 % a za beta zračenje iznosi 42 % i određena je pomoću referentnih materijala  $^{241}\text{Am}$  i  $^{90}\text{Sr}$ , respektivno. Gamaspektrometrijska merenja vršena su na HPGe detektorima, relativne efikasnosti 25 % i 40 %, rezolucije 1,95 keV odnosno 1,85 keV (1,332 MeV  $^{60}\text{Co}$ ) firme "ORTEC". Energetska kalibracija i kalibracija efikasnosti HPGe detektora obavljena je pomoću referentnog radioaktivnog materijala matriksa silikonske smole gustine  $1,22 \text{ g/cm}^3$ , Czech Metrological Institute Praha. Uzorci lekovitog blata, posle uspostavljanja radioaktivne ravnoteže, mereni su 60000 s. Rezultati merenja dati su sa mernom nesigurnošću koja je izražena kao proširena merna nesigurnost za faktor  $k=2$  koji za normalnu raspodelu odgovara nivou poverenja od 95 %.

### 3. Rezultati i diskusija

U sklopu početnih istraživanja lekovito blato peloid je uzorkovano u šest banja. U Srpsko-makedonskom masivu uzorkovano je u Prolom banji, Ribarskoj banji i Selters banji. U Panonskom basenu uzorkovano je u Rusandi i Junaković banji i u Vardarskoj zoni u Banji Vrujci. U tabelama 1 i 2 su prikazani rezultata ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti i gamaspektrometrijske analize lekovitog blata.

**Tabela 1. Ukupna alfa i beta aktivnost u lekovitom banjском blatu peloidu**

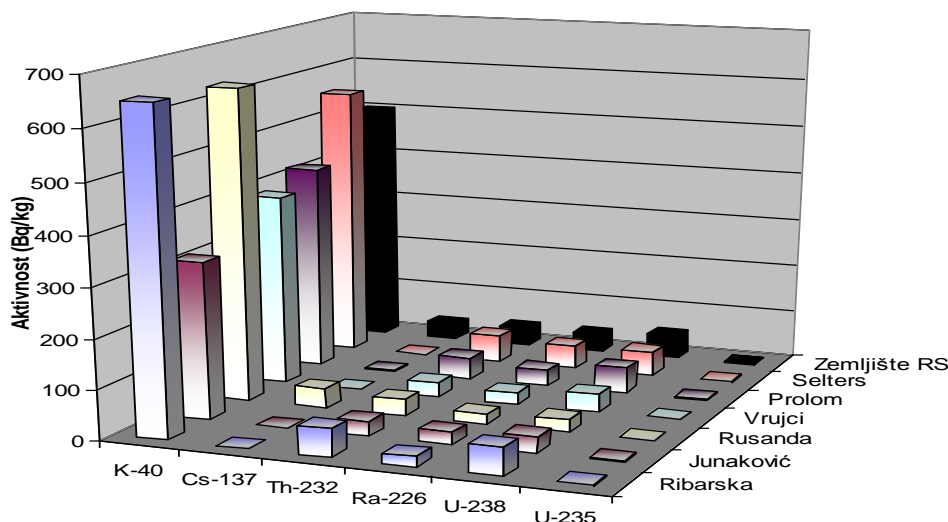
Ime banje	Ukupna alfa (Bq/kg)	Ukupna beta (Bq/kg)
Prolom	$120 \pm 30$	$390 \pm 40$
Ribarska	$140 \pm 30$	$730 \pm 50$
Selters	$180 \pm 30$	$950 \pm 60$
Rusanda	$93 \pm 24$	$970 \pm 60$
Junakovic	$66 \pm 21$	$500 \pm 40$
BanjaVrujci	$93 \pm 24$	$560 \pm 50$

**Tabela 2. Specifična aktivnost radionuklida u lekovitom banjском blatu peloidu**

Ime banje	$^{40}\text{K}$ (Bq/kg)	$^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg)	$^{232}\text{Th}$ (Bq/kg)	$^{226}\text{Ra}$ (Bq/kg)	$^{238}\text{U}$ (Bq/kg)	$^{235}\text{U}$ (Bq/kg)
Prolom	$420 \pm 40$	$2.3 \pm 0.1$	$44 \pm 4$	$33 \pm 3$	$53 \pm 9$	$2,4 \pm 0,3$
Ribarska	$650 \pm 60$	$< 0,1$	$57 \pm 6$	$20 \pm 2$	$55 \pm 21$	$1,4 \pm 0,3$
Selters	$560 \pm 20$	$< 0,3$	$56 \pm 3$	$47 \pm 3$	$49 \pm 7$	$< 1,5$
Rusanda	$630 \pm 20$	$40 \pm 1$	$34 \pm 2$	$20 \pm 1$	$25 \pm 6$	$< 0,6$
Junakovic	$320 \pm 10$	$< 0,1$	$29 \pm 1$	$25 \pm 1$	$33 \pm 3$	$2,1 \pm 0,7$
BanjaVrujci	$390 \pm 10$	$< 0,1$	$29 \pm 2$	$24 \pm 4$	$37 \pm 6$	$1,2 \pm 0,2$

Najveću ukupnu alfa aktivnost od 180 Bq/kg sadrži lekovito blato Selters banje, a najveću ukupnu beta aktivnost sadrži Banja Rusanda 970 Bq/kg. Udeo aktivnosti  $^{40}\text{K}$  u ukupnoj beta aktivnosti lekovitog blata kretala se od 49 do 100 % i zavisi od fizičko-hemijskih karakteristika vode. Najveća aktivnost  $^{137}\text{Cs}$  od 40 Bq/kg pronađena je u peloidu Banje Rusande. Na grafiku 1. prikazana je specifična aktivnost radionuklida u ispitivanom lekovitom blatu u poređenju sa prosečnim vrednostima specifične aktivnosti radionuklida zemljišta u Srbiji [4].

**Grafik 1. Specifična aktivnost radionuklida u lekovitom blatu i zemljištu Srbije**



Specifična aktivnost  $^{40}\text{K}$  u peloidu Ribarske banje i banje Rusande veća je od 500 Bq/kg, prosečne specifične aktivnosti  $^{40}\text{K}$  u zemljištu. Specifična aktivnost  $^{232}\text{Th}$  u peloidu Prolom, Ribarske i Selters banje veća je od 38 Bq/kg, prosečne specifične aktivnosti  $^{232}\text{Th}$  u zemljištu. Specifična aktivnost  $^{226}\text{Ra}$  u peloidu Selters banje veća je od 38 Bq/kg, prosečne specifične aktivnosti  $^{226}\text{Ra}$  u zemljištu. Specifična aktivnost  $^{238}\text{U}$  i  $^{235}\text{U}$  u peloidima je na nivou prosečnih vrednosti u zemljištu.

#### 4. Zaključak

U ovom radu je ispitana radioaktivnost šest uzoraka lekovitog blata peloida, uzorkovanog u banjama Srbije. Maksimalne vrednosti ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u lekovitom blatu su 180 Bq/kg i 970 Bq/kg, respektivno. Specifična aktivnost veštačkog radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  u lekovitom blatu u Banji Rusandi, poreklom od kontaminacije prouzrokovane nuklearnim akcidentom u Černobilju 1986. god., je na nivou prosečnih vrednosti u zemljištu sa teritorije Srbije. Nisu uočene znatne razlike između vrednosti specifične aktivnosti radionuklida u lekovitom blatu i prosečnih vrednosti u zemljištu na teritoriji Srbije. Sve vrednosti specifične aktivnosti ispitivanih radionuklida u lekovitom blatu su ispod maksimalnih vrednosti u zemljištu Srbije [4]. Veliki značaj korišćenja mineralnih izvora u balneološke svrhe u cilju poboljšanja ljudsko zdravlja, ukazuje na potrebu dugoročnih i sveobuhvatnih merenja radioaktivnosti peloida tj., nastavak ovih ispitivanja u zavisnosti od geološke strukture nalazišta, klimatskih uslova terena, izdašnosti, starosti mineralnih izvora itd.

## 5. Literatura

- [1] B. Filipović, Mineralne, termalne i termomineralne vode Srbije, Rudarskogeološki fakultet, Beograd i Udruženje banjskih i klimatskih mesta Srbije. Vrnjačka Banja. (2003) 15-16.
- [2] Technical Report Series No.295, 1989. IAEA, Vienna.
- [3] Multi Agency Radiological Laboratory Analytical Protocols Manual (MARLAP), Vol. II, Appendix F, Part II. 2004.
- [4] Pantelić G, Eremić Savković M, Vitorović G, Vuletić V, Tanasković I, Javorina Lj. Radionuclides activity concentration in soil in Serbia. Third European IRPA Congress on Radiation protection 14-18 June 2010; Helsinki, Finland. 2010. P-16-24.

### SERBIAN SPAS MUD RADIOACTIVITY

**Irena TANASKOVIĆ, Suzana BOGOJEVIĆ, Vesna ARSIĆ, Jovana ILIĆ**  
*Institute of Occupational Health of Serbia "Dr Dragomir Karajović",  
Deligradska 29, 11000 Belgrade, Serbia, irena.tanaskovic@institutkarajovic.rs*

#### ABSTRACT

Many deposits of mineral water in Serbia, according to the content of the isotope  $^{14}\text{C}$ , have an absolute age of 1350-30000 years. Necessary condition for the formation of deposits of mineral and thermal waters is sluggish water movement, allowing a longer contact of water with rock. Mineral waters irrigate the land, creating peloid mud enriched with various components. The paper presents the results of measurements of total alpha and total beta activity, specific activity of  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$  in samples of medicinal spa mud peloid from Serbian spas. The medicinal muds were sampled on the courts of different types of geological environment. The maximum values of total alpha and total beta activities in the medicinal mud samples were 180 Bq/kg and 970 Bq/kg, respectively. The maximum specific activities of  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$  were 650 Bq/kg, 40 Bq/kg, 57 Bq/kg, 47 Bq/kg, 55 Bq/kg and 2.4 Bq/kg, respectively.

# RADIOAKTIVNOST ZEMLJIŠTA NA TERITORIJI GRADA KRAGUJEVCA

**Biljana MILENKOVIĆ<sup>1</sup>, Jelena STAJIĆ<sup>1</sup>, Ljiljana GULAN<sup>2</sup> i Dragoslav NIKEZIĆ<sup>1</sup>**

1) Univerzitet u Kragujevcu, Prirodno-matematički fakultet, Kragujevac, Srbija,  
bmilenkovic@kg.ac.rs

2) Univerzitet u Prištini, Prirodno-matematički fakultet, Kosovska Mitrovica, Srbija

## SADRŽAJ

Koncentracije radionuklida su merene u 30 uzoraka zemljišta sakupljenih na teritoriji grada Kragujevca. Specifične aktivnosti <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K i <sup>137</sup>Cs su merene gama spektrometrijskom metodom koristeći koaksijalni germanijumski detektor, HPGe. Srednje vrednosti ± standardne devijacije su 33.5±8.2, 50.3±10.6, 425.8±75.7 i 40.2±26.3 Bq kg<sup>-1</sup>, respektivno. Ovi rezultati su u opsegu tipičnom za Srbiju i dobro se slažu sa prosečnim svetskim vrednostima. Koncentracije <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th i <sup>137</sup>Cs pokazuju normalnu raspodelu. Jačina apsorbovane doze u vazduhu, godišnja efektivna doza, eksterni hazard indeks i rizik pojave kancera su takodje procenjeni i njihove srednje vrednosti su 63.7 nGy h<sup>-1</sup>, 78.1 μSv, 0.4 i 2.7·10<sup>-4</sup>, respektivno. RAD7 uređaj je korišćen za merenje jačine ekshalacije radona u nekoliko uzoraka sa najvećim sadržajem <sup>226</sup>Ra. Rezultati emanacione moći radona su takodje predstavljeni u ovom radu. Srednja vrednost jačine emanacione moći radona je 0.24.

## 1. Uvod

Radijaciono izlaganje stanovništva uglavnom potiče od prirodnih izvora tj. kosmičkog zračenja i radionuklida prisutnih u okolini još od formiranja Zemlje. Prirodna radioaktivnost zemljišta je uglavnom uzrokovana prisustvom <sup>238</sup>U i <sup>232</sup>Th serija i <sup>40</sup>K [1]. Različiti nivoi prirodne radioaktivnosti zavise od geoloških i geografskih karakteristika zemljišta. Sa druge strane najvažniji veštački radionuklid je <sup>137</sup>Cs, koji se deponuje na tlu kao posledica ljudskih aktivnosti tj. testova nuklearnog naoružanja i nuklearnih akcidenata.

Proučavanje radioaktivnosti zemljišta može da obezbedi referentne podatke za procenu izlaganja stanovništva usled spoljašnjeg gama zračenja i unutrašnjeg ozračivanja uzrokovanog transferom radionuklida iz zemlje u biljke koje se koriste u ljudskoj ishrani. Osim toga, koncentracije <sup>226</sup>Ra i <sup>232</sup>Th u zemljištu mogu biti povezane sa koncentracijama alfa emitera, <sup>222</sup>Rn i <sup>220</sup>Rn, u vazduhu. Ovi radioaktivni gasovi i njihovi kratkoživeći potomci mogu da uzrokuju ozbiljne štetne efekte na tkivu ljudskih pluća i predstavljaju glavni uzrok unutrašnjeg radijacionog izlaganja [2].

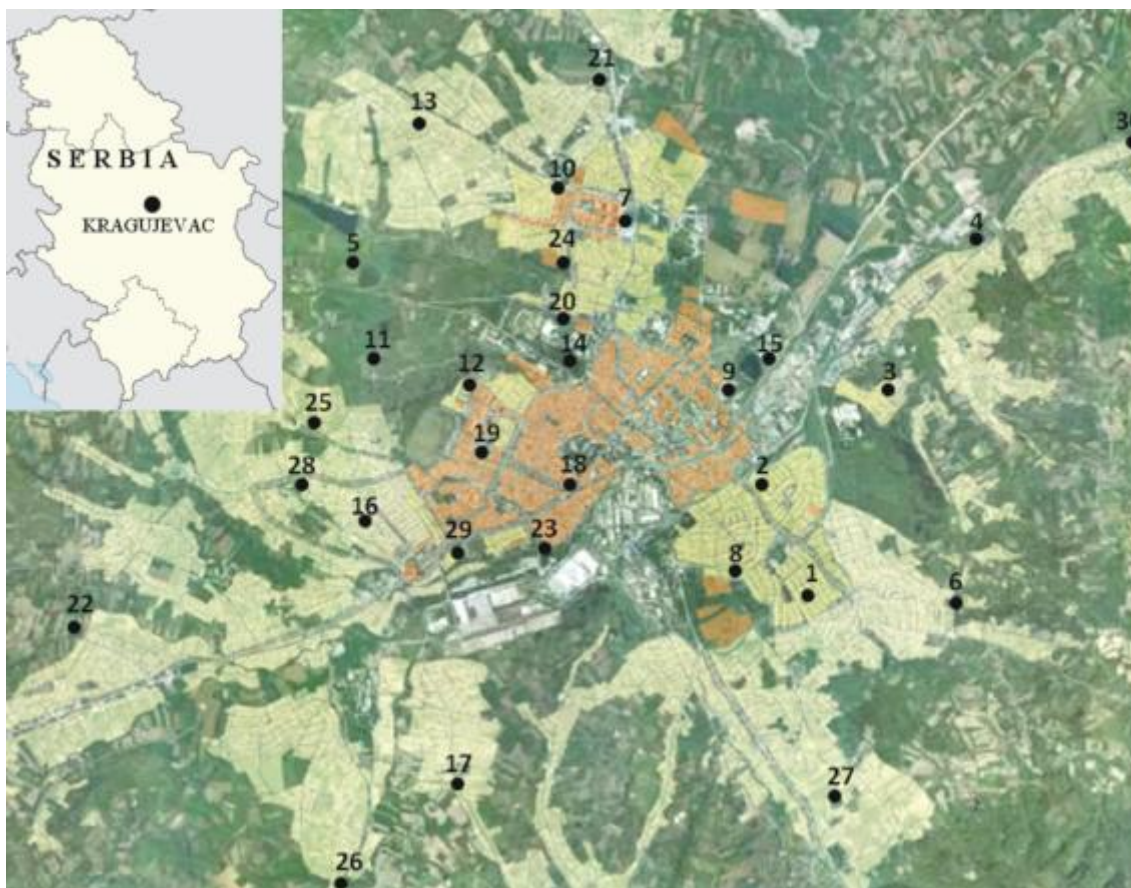
Cilj ovog rada je da predstavi rezultate merenja radioaktivnosti u uzorcima zemljišta sakupljenih sa teritorije grada Kragujevca.

## 2. Eksperimentalni deo

Uzorci neobrađenog zemljišta su prikupljeni sa 30 lokacija u gradu Kragujevcu, tokom proleća 2013. godine. Lokacije uzorkovanja su ravnomerno raspoređene po gradu, birajući mesta sa većom gustinom naseljenosti, Slika 1.

Uzorci su sakupljeni sa površine 1m<sup>2</sup> do 10 cm dubine, primenjujući IAEA metod [3]. Uzorci su sušeni na temperaturi od 100-110 °C do konstantne mase, zatim su usitnjeni i prosejani da se dobije zapremina od 450 ml za Marineli posudu. Uzorci se pakuju u

Marineli posude i zatapaju silikonom, gde se nakon 30 dana, uspostavlja radioaktivna ravnoteža između  $^{226}\text{Ra}$  i njegovih potomaka.



**Slika 1. Mapa uzorkovanih lokacija na teritoriji grada Kragujevca**

Gama spektrometrijski sistem korišćen za analizu uzoraka zemljišta čini koaksijalni HPGe detektor (GEM30-70, ORTEC) relativne efikasnosti 30 % i višekanalni analizator. Sistem ima energetska rezoluciju (FWHM) od 1.85 keV na 1.33 MeV ( $^{60}\text{Co}$ ). Kalibracija detektora je izvršena kalibracionim izvorom češkog metrološkog instituta, (tip 2 MBSS). Detektor je smešten u olovno kućište debljine 10 cm u cilju smanjenja prirodnog fona. Aktivnost svakog uzorka i fona je merena 24 h pod istim uslovima. Specifična aktivnost  $^{226}\text{Ra}$  u uzorcima je određena kao prosečna aktivnost iz dve odvojene gama linije:  $^{214}\text{Pb}$  na 351.9 keV i  $^{214}\text{Bi}$  na 609.3 keV. Specifična aktivnost  $^{232}\text{Th}$  je određena prema intenzitetima gama linija  $^{228}\text{Ac}$  (na energijama 911.1 keV i 968.9 keV) i  $^{208}\text{Tl}$  (na energijama 583.0 keV i 860.6 keV). Specifična aktivnost  $^{40}\text{K}$  je određena prema intenzitetu jedine gama linije na 1460.7 keV. Za određivanje aktivnosti veštačkog radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  korišćen je intenzitet gama linije na 661.6 keV. Jačina ekshalacije radona iz pet uzoraka sa najvećim sadržajem  $^{226}\text{Ra}$  je određena koristeći komoru povezanu sa RAD7 uređajem. Koncentracija radona u komori je praćena 7 dana i jačina ekshalacije je dobijena fitovanjem krive rasta. Detaljan opis ovog metoda je dat u radu [4].

### 3. Rezultati i diskusija

Rezultati merenja koncentracija prirodnih radionuklida i  $^{137}\text{Cs}$  u zemljištu su predstavljeni u Tabeli 1. Izračunate srednje vrednosti specifičnih aktivnosti  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  i  $^{137}\text{Cs}$  su: 33.5, 50.3, 425.8 i 40.2  $\text{Bq kg}^{-1}$ , respektivno. Ove vrednosti se dobro slažu sa prosečnim svetskim vrednostima 32, 45 i 412  $\text{Bq kg}^{-1}$  za  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  i  $^{40}\text{K}$  [5], respektivno.

**Tabela 1. Deskriptivna statistika specifičnih aktivnosti radionuklida, jačine apsorbovane doze u vazduhu, godišnje efektivne doze, eksternog hazard indeksa i rizika pojave kancera (ELCR)**

	$^{226}\text{Ra}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	$^{232}\text{Th}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	$^{40}\text{K}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	$^{137}\text{Cs}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	$\dot{D}$ ( $\text{nGy h}^{-1}$ )	$D_E$ ( $\mu\text{Sv}$ )	$H_{\text{ex}}$	ELCR ( $10^{-4}$ )
<b>Min</b>	20.4	29.9	167	0.5	43.7	53.6	0.3	1.9
<b>Max</b>	55.2	73.4	559	90.5	83.2	102.1	0.5	3.6
<b>AS</b>	33.5	50.3	425.8	40.2	63.7	78.1	0.4	2.7
<b>GS</b>	32.5	49.1	417.5	23.7	62.9	77.1	0.37	2.7
<b>SD</b>	8.2	10.6	75.7	26.3	10.3	12.7	0.06	0.4
<b>MED</b>	31.7	50.3	431.5	41.2	63.5	77.9	0.4	2.7

AS – aritmetička sredina; GS – geometrijska sredina; SD – standardna devijacija; MED – medijana

Poređenje sa dostupnim rezultatima prirodne i veštačke radioaktivnosti u gradovima susednih država dato je u Tabeli 2.

Dobijene su slične prosečne vrednosti za  $^{226}\text{Ra}$ , dok je srednja koncentracija za  $^{232}\text{Th}$  slična ili viša nego izmerena u regionu. Najviše koncentracije  $^{232}\text{Th}$  su izmerene na lokacijama 17, 22, 25 i 28, koje se nalaze na brdovitom predgrađu zapadnog dela grada. Sa druge strane, srednja koncentracija  $^{40}\text{K}$  je nešto niža nego publikovana u regionu. Razlika u radioaktivnosti zemljišta je uzrokovana geološkim i geografskim karakteristikama ispitivanog regiona.

Srednja vrednost dobijena za veštački radionuklid  $^{137}\text{Cs}$  je uporediva sa vrednostima prethodno merenim u drugim delovima Srbije: 48.3  $\text{Bq kg}^{-1}$  [6] i 36.4  $\text{Bq kg}^{-1}$  [7]. Rezultati u ovom radu potvrđuju činjenicu da je  $^{137}\text{Cs}$  još uvek prisutan u okolini kao posledica Černobilskog akcidenta i atmosferskih nuklearnih proba.

**Tabela 2. Poređenje rezultata specifične aktivnosti sa rezultatima publikovanim u drugim gradovima u regionu**

Grad [reference]	Specifične aktivnosti ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )			
	$^{226}\text{Ra}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$
Beograd, Srbija [8]	33.6	39.3	508	-
Beograd, Srbija [9]	-	-	-	29.9
Mojkovac, Crna Gora [10]	28.6	43.1	620.8	55
Kavadarci, Makedonija [11]	38.8	43.7	546	41.5
Banja Luka, Republika Srpska [12]	36	33	459	20
Kragujevac, Srbija [ovaj rad]	33.5	50.3	425.8	40.2

Jačina apsorbovane doze  $\dot{D}$  (nGy h<sup>-1</sup>) u vazduhu na 1 m iznad tla uslovljena prisustvom prirodnih radionuklida računa se po sledećoj formuli [5]:

$$\dot{D} = 0.462A_{Ra} + 0.604A_{Th} + 0.0417A_K \quad (1)$$

gde su  $A_{Ra}$ ,  $A_{Th}$  i  $A_K$  specifične aktivnosti <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th i <sup>40</sup>K (Bq kg<sup>-1</sup>). Rezultati su prikazani u Tabeli 1. Srednja vrednost jačine apsorbovane doze je 63.7 nGy h<sup>-1</sup> (opseg 43.7-83.2 nGy h<sup>-1</sup>).

Godišnja efektivna doza za stanovništvo je računata na osnovu konverzionog koeficijenta 0.7 Sv Gy<sup>-1</sup> prema sledećoj formuli [5]:

$$D_E = 0.7 \cdot \dot{D} \cdot t \cdot p \quad (2)$$

gde je  $t$  godišnje vreme izlaganja (8760 h), a  $p$  je faktor za vreme boravka stanovništva na otvorenom i iznosi 0.2 [5]. Prosečna vrednost 78.1 μSv (opseg 53.6 – 102.1) je veća od godišnje prosečne vrednosti 66 μSv za spoljašnje izlaganje terestrijalnim izvorima zračenja. Treba napomenuti da je doprinos godišnjoj efektivnoj dozi od zračenja veštačkog radionuklida <sup>137</sup>Cs neznan (srednja vrednost 3.24 μSv) u odnosu na doprinos prirodnih radionuklida, pa nije uzet u obzir.

Rizik pojave kancera se računa po formuli:

$$ELCR = D_E \cdot DL \cdot PC \quad (3)$$

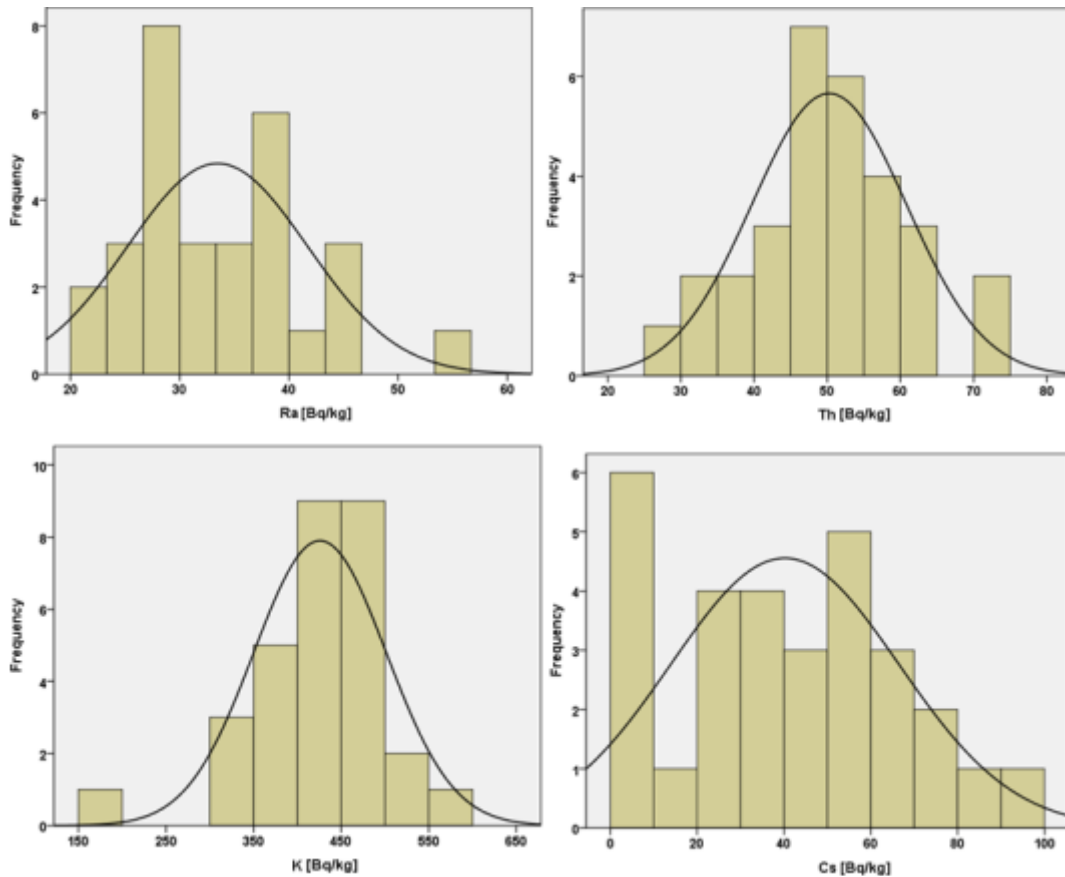
gde je  $D_E$  (μSv) godišnja efektivna doza,  $DL$  je životni vek, a  $PC$  je nominalni koeficijent verovatnoće za rizik od kancera za čitavu populaciju i iznosi 5.5·10<sup>-2</sup> Sv<sup>-1</sup> [13]. Rizik pojave kancera (ELCR) se kreće od 1.9·10<sup>-4</sup> do 3.6·10<sup>-4</sup>, sa srednjom vrednošću 2.7·10<sup>-4</sup> (Tabela 1). Ova vrednost je nešto iznad svetske srednje vrednosti 2.54 10<sup>-4</sup> (uzimajući u obzir godišnju efektivnu dozu od 66 μSv).

Eksterni hazard indeks, koji predstavlja modifikovanu veličinu radijum ekvivalenta, računa se po formuli [5]:

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \quad (4)$$

Deskriptivna statistika pomenutih veličina nalazi se u Tabeli 1.

Na slici 2 je prikazana raspodela koncentracija radionuklida zajedno sa normalnim krivama. Shapiro-Wilk test normalnosti otkriva normalnu raspodelu ( $p > 0.05$ ) koncentracija <sup>226</sup>Ra ( $p = 0.309$ ), <sup>232</sup>Th ( $p = 0.842$ ) i <sup>137</sup>Cs ( $p = 0.246$ ).



**Slika 2. Raspodela koncentracija radionuklida**

Spirmanova korelacija između koncentracija radionuklida je računata softverom SPSS 20.0. Korelacioni koeficijenti su prikazani u Tabeli 3 gde se može zapaziti jaka pozitivna korelacija između  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{232}\text{Th}$  koja je prikazana na slici 3. Ovo je očekivano zato što se  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{232}\text{Th}$  obično javljaju zajedno u prirodi i zato što imaju slično ponašanje tokom njihovog transporta [14].

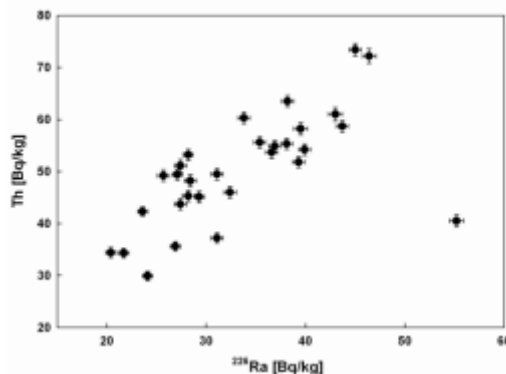
**Tabela 3. Spirmanova korelaciona matrica koncentracija radionuklida**

	$^{226}\text{Ra}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$
$^{226}\text{Ra}$	1	0.737**	0.133	0.362*
$^{232}\text{Th}$		1	0.220	0.193
$^{40}\text{K}$			1	-0.072
$^{137}\text{Cs}$				1

\* Nivo značajnosti 0.05

\*\* Nivo značajnosti 0.01





**Slika 3. Korelacija između specifičnih aktivnosti  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{232}\text{Th}$**

Rezultati jačine ekshalacije i emanacione moći radona za pet uzoraka sa najvećim sadržajem  $^{226}\text{Ra}$  predstavljeni su u Tabeli 4; srednja vrednost je 0.24.

**Tabela 4. Jačina ekshalacije radona,  $E$  ( $\text{mBq kg}^{-1} \text{h}^{-1}$ ), emanaciona moć i odgovarajuća koncentracija  $^{226}\text{Ra}$**

Sample No.	$^{226}\text{Ra}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	$E$ ( $\text{mBq kg}^{-1} \text{h}^{-1}$ )	Emanation Power
1	$55.2 \pm 0.7$	$114.4 \pm 1.3$	0.27
22	$43.0 \pm 0.7$	$79.7 \pm 1.1$	0.24
25	$45.0 \pm 0.6$	$97.9 \pm 1.7$	0.29
28	$46.4 \pm 0.7$	$72.6 \pm 1.1$	0.21
29	$43.7 \pm 0.6$	$57.3 \pm 0.9$	0.17

#### 4. Zaključak

U ovom radu su predstavljeni rezultati merenja uzoraka zemljišta sakupljenih na 30 lokacija na teritoriji grada Kragujevca. Dobijene vrednosti aktivnosnih koncentracija prirodnih radionuklida su u granicama prosečnih vrednosti u svetu. Prosečna aktivnosna koncentracija dobijena za veštački radionuklid  $^{137}\text{Cs}$  je uporediva sa vrednostima prethodno merenim u drugim delovima Srbije, što potvrđuju činjenicu da je  $^{137}\text{Cs}$  još uvek prisutan u okolini kao posledica Černobilskog akcidenta i atmosferskih nuklearnih proba. Jačina apsorbovane doze u vazduhu, godišnja efektivna doza, eksterni hazard indeks i rizik pojave kancera su takodje procenjeni i ne premašuju preporučene granice. Zapažena je jaka pozitivna korelacija između aktivnosnih koncentracija  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{232}\text{Th}$ . RAD7 uređaj je korišćen za merenje jačine ekshalacije radona u nekoliko uzoraka sa najvećim sadržajem  $^{226}\text{Ra}$  i procenjena je emanaciona moć radona.

#### 5. Literatura

- [1] UNSCEAR, Sources and effects of ionizing radiation, Report to General Assembly, with Scientific Annexes, 2000. New York, United Nations.
- [2] ICRP, Protection Against Radon at Home and Work. Ann. ICRP Publ. 65, Oxford 1993. Pergamon.
- [3] IAEA, Soil sampling for environmental contaminants. IAEA-TECDOC-1415. 2004. IAEA Vienna.

- [4] J.M. Stajic and D. Nikezic. Measurement of radon exhalation rates from some building materials used in Serbian construction. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 303 (2015) 1943–1947.
- [5] UNSCEAR, Report to the General Assembly, Annex B: Exposure of the public and workers from various sources of radiation, 2008. New York, United Nations.
- [6] S. Dragovic and A. Onjia. Classification of soil samples according to their geographic origin using gamma-ray spectrometry and principal component analysis. *J. Environ. Radioact.* 89 (2006) 150–158.
- [7] G. Dugalic, D. Krstic, M. Jelic, D. Nikezic, B. Milenkovic, M. Pucarevic, T. Zeremski-Skoric. Heavy metals, organics and radioactivity in soil of western Serbia. *J. Hazard. Mater.* 177 (2010) 697–702.
- [8] Lj. Jankovic Mandic and S. Dragovic. Assessment of terrestrial gamma exposure to the population of Belgrade (Serbia). *Radiat. Protect. Dosim.* 140 (2010) 369–377.
- [9] J. Petrovic, M. Cujic, M.M. Djordjevic, R.M. Dragovic, B.A. Gajic, S.S. Miljanic, S.D. Dragovic. Spatial distribution and vertical migration of Cs-137 in soils of Belgrade (Serbia) 25 years after the Chernobyl accident. *Environ. Sci. Process. Impacts.* 15 (2013) 1279–1289.
- [10] N.M. Antovic, D.S. Boskovic, N.R. Svrkota, I.M. Antovic. Radioactivity in soil from Mojkovac, Montenegro, and assessment of radiological and cancer risk. *Nucl. Technol. Radiat.* 27 (2012) 57–63.
- [11] S. Dimovska, T. Stafilov, R. Sajn. Radioactivity in soil from the city of Kavadarci (Republic of Macedonia) and its environs. *Radiat. Prot. Dosim.* 148 (2011) 107–120.
- [12] M. Jankovic, D. Todorovic, M. Savanovic. Radioactivity measurements in soil samples collected in the Republic of Srpska. *Radiat. Meas.* 43 (2008) 1448–1452.
- [13] ICRP, Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Ann. Publ. 103, 2007. Oxford, Pergamon.
- [14] A. Chandrasekaran, R. Ravisankar, A. Rajalakshmi, P. Eswaran, P. Vijayagopal, B. Venkatraman. Assessment of natural radioactivity and function of minerals in soils of Yelagiri hills, Tamilnadu, India by Gamma Ray spectroscopic and Fourier Transform Infrared (FTIR) techniques with statistical approach. *Spectrochim. Acta Part A.* 136 (2015) 1734–1744.

*Zahvalnica:* Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja, kroz projekat N<sub>0</sub> 171021

## ASSESSMENT OF RADIOACTIVITY LEVELS IN THE SOIL SAMPLES FROM KRAGUJEVAC CITY

**Biljana MILENKOVIĆ<sup>1</sup>, Jelena STAJIĆ<sup>1</sup>, Ljiljana GULAN<sup>2</sup> and Dragoslav  
NIKEZIĆ<sup>1</sup>**

*1) University of Kragujevac, Faculty of Science, Kragujevac, Serbia,  
[bmilenkovic@kg.ac.rs](mailto:bmilenkovic@kg.ac.rs),*

*2) University of Pristina, Faculty of Natural Science, Kosovska Mitrovica, Serbia*

### ABSTRACT

Radioactivity concentrations were measured in soil samples collected from the area of Kragujevac, one of the largest cities in Serbia. The specific activities of <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K and <sup>137</sup>Cs in 30 samples were measured by gamma spectrometry using a HPGe semiconductor detector. The average values ± standard deviations were 33.5±8.2, 50.3±10.6, 425.8±75.7 and 40.2±26.3 Bq kg<sup>-1</sup>, respectively. These results are in the range typical for Serbia and they are in good agreement with the average worldwide values. The activity concentrations of <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th and <sup>137</sup>Cs have shown normal distribution. The air-absorbed dose rates, the annual effective doses, external hazard indexes and excess lifetime cancer risk were also estimated and the mean values were 63.7 nGy h<sup>-1</sup>, 78.1 μSv, 138.1 Bq kg<sup>-1</sup>, 0.4 and 2.9·10<sup>-4</sup>, respectively. A RAD7 device was used for measuring radon exhalation rates from several samples with highest content of <sup>226</sup>Ra. The results of radon emanation power are presented in this study. The mean value of radon emanation power was 0.24.

## ПРОСТОРНА И ПРОФИЛНА РАСПОДЕЛА РАДИОНУКЛИДА У ТЛУ НА НЕКИМ ЛОКАЦИЈАМА НА КОСОВУ И МЕТОХИЈИ

**Љиљана ГУЈАН<sup>1</sup>, Јелена СТАЈИЋ<sup>2</sup>, Биљана ВУЧКОВИЋ<sup>1</sup>, Јелена ЖИВКОВИЋ РАДОВАНОВИЋ<sup>1</sup>, Душица СПАСИЋ<sup>1</sup> и Драгана КРСТИЋ<sup>2</sup>**

1) Универзитет у Приштини, Природно-математички факултет, Косовска Митровица, Србија, [ljgulan@gmail.com](mailto:ljgulan@gmail.com)

2) Универзитет у Крагујевцу, Природно-математички факултет, Крагујевац, Србија

### САДРЖАЈ

У овом раду су представљене активносне концентрације природних и вештачких радионуклида 42 узорка земљишта са 14 локација на Косову и Метохији. Специфичне активности  $^{226}\text{Ra}$  су сличне просечним светским вредностима; вредности  $^{232}\text{Th}$  су испод, а вредности  $^{40}\text{K}$  су изнад светског просека. Представљена је профилна расподела радионуклида према слојевима узоркованог земљишта. Установљен је спор пораст средњих вредности специфичних активности природних радионуклида са дубином земљишта. Код вештачког радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  запажа се тенденција бржег опадања активности са дубином.

### Увод

У свету постоје региони са повећаном радиоактивношћу који су последица већег садржаја радионуклида у тлу, јачине космичког зрачења и географског положаја. За информацију о стању радиоактивности у животној средини, неопходно је испитати садржај примордијалних радионуклида  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  у тлу. Управо 20% (0.48 mSv) укупне годишње ефективне дозе од природних извора зрачења потиче од зрачења радионуклида из тла [1]. Од интереса је и вештачки радионуклид  $^{137}\text{Cs}$  који доспева у животну средину атмосферским падавинама након тестова нуклеарног оружја и нуклеарних акцидентата. Овакви подаци могу бити референтни у случају будућих антропогених активности које могу узроковати додатне контаминације.

### 1. Циљ и метод истраживања

Истраживање је спроведено у циљу утврђивања просторне и профилне расподеле радионуклида у земљишту Косовског Поморавља и централног Косова. Укупно 42 узорка необрађеног земљишта је прикупљено са 14 локација током пролећа 2011. године до 40 cm дубине. При узорковању земљишта примењена је процедура препоручена и прописана од Међународне Агенције за атомску енергију [2]. Површински узорак (слој земљишта од 0-5 cm) добијен је из 1 m<sup>2</sup> површине сједињавањем четири узорка са углова квадрата и једног узорка у пресеку дијагонала. Профилни узорци земљишта са дубина 10-20 cm и 20-40 cm узети су само из средишта квадрата. Након чишћења од биљних остатака и ситног камења, узорци су сушени на температури од 100-110 °C. Marineli посуде са узорцима гранулације мање од 2 mm заптиване су пчелињим воском ради успостављања радиоактивне равнотеже. Гама-спектрометријска мерења су извршена према стандардној методи [3].

Гамаспектрометријски систем за одређивање активности радионукида у тлу чини HP Ge детектор модел GEM30-70 ORTEC релативне ефикасности 32% на 1.33 MeV ( $^{60}\text{Co}$ ) и вишеканални анализатор. Кућиште детектора је смештено у оловну заштиту дебљине 10 cm. Енергетска резолуција детектора (FWHM) је 1.85 keV на 1.33 MeV ( $^{60}\text{Co}$ ) и 725 eV на 122 keV ( $^{57}\text{Co}$ ). Калибрација детектора је извршена калибрационим извором чешког метролошког института, (тип 2 MBSS).

Снимање спектра за сваки узорак и за фон је трајало 10800 s. Специфична активност  $^{226}\text{Ra}$  одређена је усредњавањем активности фотопикова  $^{214}\text{Pb}$  на енергији 351.9 keV и  $^{214}\text{Bi}$  на енергији 609.3 keV. За одређивање специфичне активности  $^{232}\text{Th}$  коришћени су фотопикови  $^{208}\text{Tl}$  (на енергијама 583.0 и 860.6 keV) и  $^{228}\text{Ac}$  (на енергијама 911.1 и 968.9 keV). Специфична активност  $^{40}\text{K}$  одређена је на основу интензитета једине гама линије на енергији 1460.75 keV. За одређивање специфичне активности  $^{137}\text{Cs}$  коришћен је интензитет гама линије на енергији 661.62 keV.

## 2. Геологија подручја

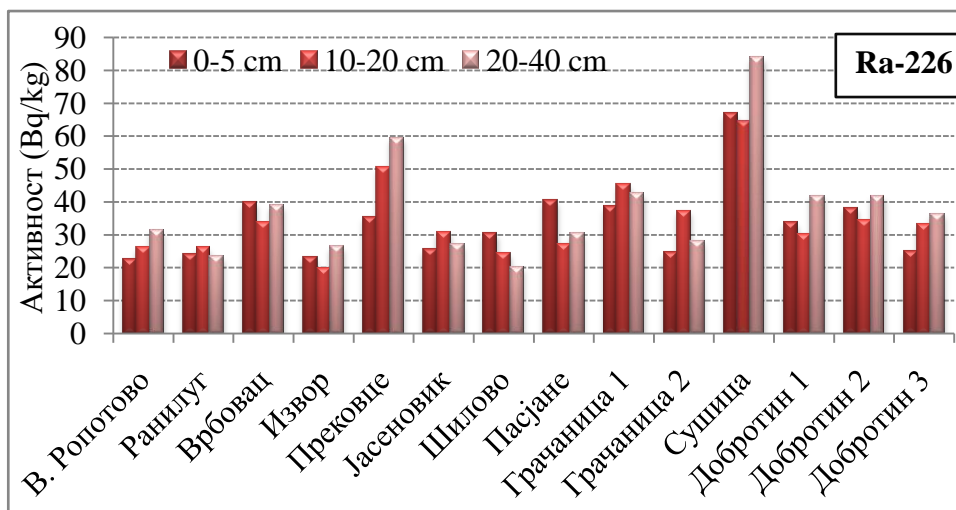
У геолошкој грађи Косовског Поморавља (југоисточни део Косова и Метохије) истичу се вулканогено-седиментне формације. За регион централног Косова карактеристичан је пространи неогени басен, настао таложењем песковитих глина са шљунковима које прелазе у сложени угљени хоризонт [4]. Поред депозита угља геолошку структуру чине гранити, метаморфисане вулканогено-седиментне стене и кредни флиш. Дуж уске и дуге тектонске зоне протежу се два раседа правцем север-северозапад и југ-југоисток [4].

## 3. Резултати и дискусија

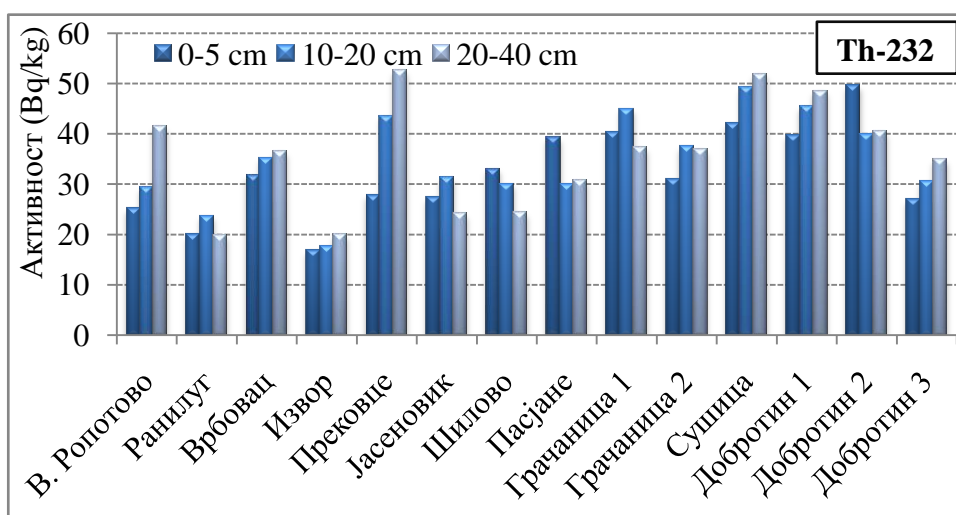
Специфичне активности  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$  у узорцима три различита слоја земљишта (0-5 cm, 10-20 cm и 20-40 cm) сакупљених са 14 локација представљене су на сликама од 1.-4., респективно. Дескриптивне статистике за вредности специфичних активности радионуклида приказане су у табели 1.

Најмање вредности специфичних активности  $^{226}\text{Ra}$  (слика 1.) у слојевима земљишта од 0-5 cm и 10-20 cm забележене су у Извору, а највеће у Сушици. У слоју земљишта од 20-40 cm активности  $^{226}\text{Ra}$  су варирале од 20.2 Bq kg<sup>-1</sup> (Шилово) до 83.8 Bq kg<sup>-1</sup> (Сушица). Висока вредност може указивати на локално концентрисање радијума у Сушици, с обзиром да је евидентна и значајна промена у концентрацији на дубини од 20-40 cm. Пораст концентрације  $^{226}\text{Ra}$  са дубином земљишта је приметан и у Великом Ропотову, Прековцу и Добротину 3. У осталим узорцима бележи се опадање или неправилна расподела активности  $^{226}\text{Ra}$  са дубином.

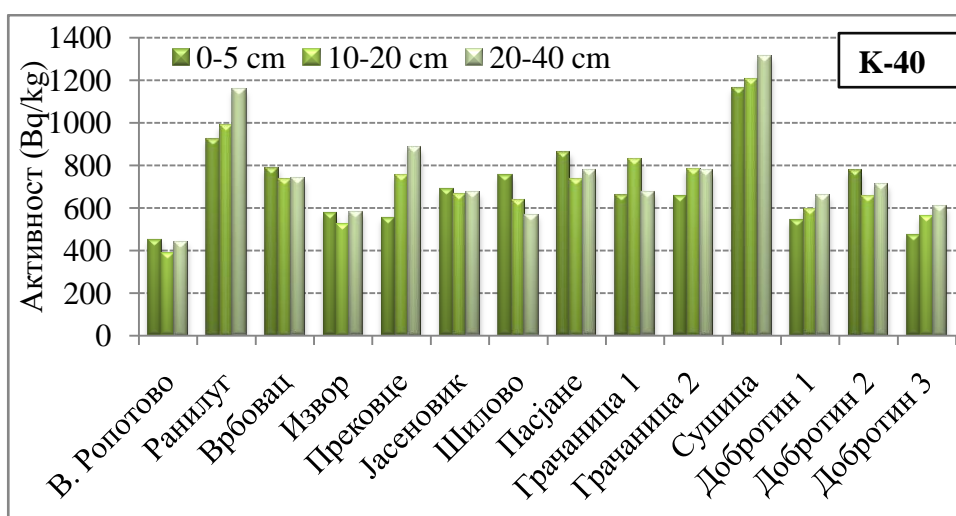
Специфичне активности  $^{232}\text{Th}$  (слика 2.) су врло променљиве како по слојевима земљишта тако и по местима узорковања. Опсег вредности за слој од 0-5 cm креће се од 16.8 Bq kg<sup>-1</sup> (Извор) до 49.6 Bq kg<sup>-1</sup> (Добротин 2). За слој земљишта 10-20 cm најмање вредности забележене су у Извору, а највеће у Сушици. У слоју земљишта од 20-40 cm, опсег вредности за  $^{232}\text{Th}$  креће се од 19.9 Bq kg<sup>-1</sup> (Ранилуг) до 52.6 Bq kg<sup>-1</sup> (Прековце). На више локација специфична активност расте са дубином узорковања. Опадање активности  $^{232}\text{Th}$  са дубином узорковања приметно је само у Шилову.



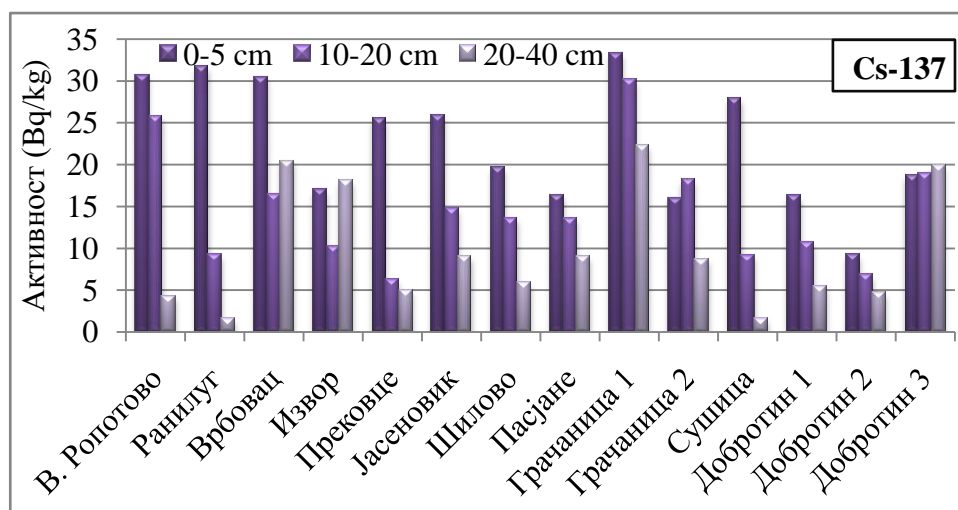
Слика 1. Специфичне активности  $^{226}\text{Ra}$  на 14 локација на Косову и Метохији



Слика 2. Специфичне активности  $^{232}\text{Th}$  на 14 локација на Косову и Метохији



Слика 3. Специфичне активности  $^{40}\text{K}$  на 14 локација на Косову и Метохији



Слика 4. Специфичне активности  $^{137}\text{Cs}$  на 14 локација на Косову и Метохији

Табела 1. Дескриптивне статистике за вредности специфичних активности радионуклида у профилним узорцима земљишта са 14 локација на Косову и Метохији

Радионуклид/ слој земљишта		Минимум ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	Максимум ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	Медијана ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	Средња вредност ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	Стандардна девијација ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )
$^{226}\text{Ra}$	0-5cm	22.5	69.9	33.7	33.7	11.4
	10- 20cm	19.9	64.5	33.1	34.7	11.4
	20- 40cm	20.2	83.8	31.2	37.4	16.2
$^{232}\text{Th}$	0-5cm	16.8	49.6	31.1	32.1	8.8
	10- 20cm	17.6	49.2	31.2	34.4	8.8
	20- 40cm	19.9	52.6	36.5	35.2	10.7
$^{40}\text{K}$	0-5cm	449	1161	654	686	197
	10- 20cm	385	1203	668	698	207
	20- 40cm	439	1310	675	729	242
$^{137}\text{Cs}$	0-5cm	9.2	33.3	19.7	22.1	7.6
	10- 20cm	6.3	30.1	13.6	14.2	6.8
	20- 40cm	1.6	22.3	7.2	9.7	7.3

Велики опсег вредности специфичних активности  $^{40}\text{K}$  (слика 3.) указује на неравномерну просторну расподелу. Евидентан је пораст опсега вредности по слојевима од око  $100 \text{ Bq kg}^{-1}$ . Пораст вредности  $^{40}\text{K}$  по дубини узорковања је изражен у Ранилугу, Прековцу, Сушици и Добротину 1,3. Највеће вредности специфичних активности  $^{40}\text{K}$  за све слојеве су забележене у Сушици, а најмање у

Великом Ропотову.

Из табеле 1, се уочава, да су средње вредности специфичних активности  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  приближно једнаке по дубинама, што се и очекује, с обзиром да су то радионуклиди природног порекла.

Специфичне активности  $^{137}\text{Cs}$  у узоркованим слојевима (слика 4.), варирале су у опсегу  $1.6 \text{ Bq kg}^{-1}$  (Добротин 2) до  $33.3 \text{ Bq kg}^{-1}$  (Грачаница 1). Истраживања показују да је вертикална дифузија цезијума спор процес, а да промена концентрације са дубином није униформна, што је очекивано за вештачке радионуклиде. Неправилно опадање активности по дубини у неким подручјима може бити последица састава и сорпције тла. У испитиваним узорцима једино је приметан нагли пад вредности  $^{137}\text{Cs}$  са дубином у Ранилугу и Сушици (локације са највећим вредностима  $^{40}\text{K}$ ), што се може објаснити успореном миграцијом цезијума у земљиштима богатим калијумом [5]. Такође, и ефекат спирања (*wash off*) цезијума може да доведе до веома неравномерне расподеле у тлу.

#### 4. Закључак

На основу представљених резултата уочава се изразита варијабилност специфичних активности  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$  у 42 испитивана узорка. То може бити последица различитих педогених типова насталих у различитим фазама деградације стенске масе. Локална конфигурација терена, покретљивост и трансфер радионуклида кроз тле уз њихове физичкохемијске карактеристике значајно утичу на варијабилност специфичних активности. Евидентан је спор пораст средњих вредности специфичних активности природних радионуклида са дубином земљишта, док се супротно, код  $^{137}\text{Cs}$  запажа тенденција бржег опадања. У поређењу са вредностима специфичних активности природних радионуклида у свету: 32, 45 и  $420 \text{ Bq kg}^{-1}$  за  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$ , респективно [1], евидентне су сличне вредности  $^{226}\text{Ra}$ ; вредности  $^{232}\text{Th}$  су испод, а вредности  $^{40}\text{K}$  су изнад светског просека.

#### Захвалница

Овај рад је урађен у оквиру пројекта ИИИ41028 Министарства просвете, науке и технолошког развоја Републике Србије.

#### 5. Литература

- [1] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Annex B: Exposure of the public and workers from various sources of radiation, 2008. NY: UN.
- [2] IAEA 295, International Atomic Energy Agency, *Measurement of radionuclides in food and the Environment*. A guide book, Technical report series, 1989. IAEA, Vienna.
- [3] ASTM C 1402–04 Standard guide for high resolution gamma ray spectrometry of soil samples
- [4] Dimitrijević M.D., *Geologija Jugoslavije*. 1995. Geoinstitut, Beograd.
- [5] Van der Stricht E. and Kirchmann R., *Radioecology, Radioactivity and Ecosystems*. Oupeye, Belgium.



## SPATIAL AND PROFILE DISTRIBUTION OF RADIONUCLIDES IN SOIL FROM SOME LOCATIONS OF KOSOVO AND METOHILJA

**Liljana GULAN<sup>1</sup>, Jelena STAJIĆ<sup>2</sup>, Biljana VUČKOVIĆ<sup>1</sup>, Jelena ŽIVKOVIĆ RADOVANOVIĆ<sup>1</sup>, Dusica SPASIĆ<sup>1</sup> and Dragana KRSTIĆ<sup>2</sup>**

1) *University of Pristina, Faculty of Natural Science, Kosovska Mitrovica, Serbia,*  
[ljgulan@gmail.com](mailto:ljgulan@gmail.com)

2) *University of Kragujevac, Faculty of Science, Serbia.*

### ABSTRACT

This paper reports the activity concentrations of natural and artificial radionuclides in 42 soil samples from 14 locations of Kosovo and Metohija. Samples were taken from soil of 0-5 cm, 10-20 cm and 20-40 cm applying the template method. The specific activities of <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K and <sup>137</sup>Cs for each sample were measured 3 hours using coaxial HPGe detector (GEM30-70, ORTEC). The average specific activities of <sup>226</sup>Ra are similar to worldwide average values; the ones of <sup>232</sup>Th are below, and values of <sup>40</sup>K are above the worldwide average. Profile distribution of radionuclides is presented according to the sampled soil layers. Slow increase of the mean specific activity values of natural radionuclides with the soil depth is established. Mean <sup>226</sup>Ra activity concentration in soil layers of 0-5 cm, 10-20 cm and 20-40 cm increase as follows: 33.7, 34.7 and 37.4 Bq kg<sup>-1</sup>. Similarly, mean <sup>232</sup>Th values increase with depth like: 32.1, 34.4 and 35.2 Bq kg<sup>-1</sup>. Mean values of <sup>40</sup>K were found 686, 698 and 729 Bq kg<sup>-1</sup> for soil layers of 0-5 cm, 10-20 cm and 20-40 cm, respectively. There is a tendency of faster decrease in specific activity of artificial radionuclide <sup>137</sup>Cs with depth; for 14 locations the mean values were estimated as follows: 22.1, 14.2 and 9.7 for soil layers of 0-5 cm, 10-20 cm and 20-40 cm, respectively.

## <sup>238</sup>U I TEŠKI METALI U ZEMLJIŠTU NIKŠIĆA, CRNA GORA

**Nikola SVRKOTA<sup>1</sup>, Nevenka ANTOVIĆ<sup>2</sup>, Ranka ŽIŽIĆ<sup>1</sup>, Ranko ZEKIĆ<sup>1</sup>**

1) Centar za ekotoksikološka ispitivanja, Podgorica, Crna Gora,  
nikola.svrkota@ceti.co.me

2) Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet Crne Gore, Podgorica, Crna Gora

### SADRŽAJ

Na osnovu prethodno dobijenih indoor radonskih koncentracija u 55 stanova u Nikšiću, drugom po veličini gradu u Crnoj Gori, godišnja efektivna doza procijenjena u ovom radu pokazala je opseg od  $0.17 \text{ mSv y}^{-1}$  do  $16.5 \text{ mSv y}^{-1}$ , sa srednjom vrijednošću od  $2.1 \text{ mSv y}^{-1}$ . Nekultivisano zemljište sa 12 lokacija, selektovanih na osnovu geoloških i pedoloških karakteristika, analizirano je pomoću HPGe spektrometra, s ciljem da se odrede koncentracije aktivnosti <sup>238</sup>U. Njihov opseg je od  $39.7 \text{ Bq kg}^{-1}$  do  $112 \text{ Bq kg}^{-1}$ , a srednja vrijednost –  $59.5 \text{ Bq kg}^{-1}$ . Koristeći prethodno dobijene rezultate, razmatrane su i kumulativne koncentracije aktivnosti koje su pokazale da je doprinos <sup>238</sup>U od 4 % do 10 % (ako se u obzir uzme i <sup>137</sup>Cs), ili do 18 % (samo prirodni radionuklidi). Zbog značaja za zaštitu životne sredine, sadržaj određenog broja elemenata u tipičnim zemljištima Nikšića takođe je određen, pokazujući (na primjer u jednom uzorku) doprinos Mn, Ba, Zn, Ni, Cr, Pb, Cu, B, As – u iznosu od 71 %, 9 %, 7 %, 4 %, 3 %, 2 %, 2 %, 1 %, 1 %, respektivno.

### 1. Uvod

Nikšić je drugi najveći grad u Crnoj Gori (iako sa najvećom površinom opštinske teritorije –  $2065 \text{ km}^2$ ), sa 72 443 stanovnika (na osnovu popisa iz 2011. godine [1]). Prethodna istraživanja [2] su pokazala da su u Nikšiću indoor radonske koncentracije veće nego u drugim gradovima centralne i južne Crne Gore, kao i u ostalim zemljama Južne Evrope, što se može objasniti činjenicom da su neka njegova naselja izgrađena nad depozitima crvenih boksita, sa povećanim sadržajem uranijuma.

Ovo je dodatni razlog da se izmjere koncentracije aktivnosti <sup>238</sup>U u zemljištu. Na određenom broju lokacija, uz mjerenje doza, ranije su razmatrani i drugi terestrijalni radionuklidi [3, 4], što dozvoljava da se procijene i standardno korišćeni hazard indeksi.

Zbog značaja za zaštitu životne sredine, i integrisanog pristupa procjenama rizika, u okviru ovog rada urađene su i odgovarajuće hemijske analize, i određeni su sadržaji pojedinih teških metala.

### 2. Materijal i metode

#### 2.1. Uzorkovanje i mjerenje

Uzorkovanje nekultivisanog zemljišta u Nikšiću izvršeno je na dvanaest lokacija (slika 1; koordinate – u tabeli 1). Zahvaćena je površina oko  $200 \text{ km}^2$ , a mjesta uzorkovanja su birana prema geološkoj podlozi, koju u najvećem broju (NK-2, NK-4, NK-8, NK-9, NK-10, NK-11 i NK-12) čine kvartarni sedimenti fluvio-glacijalnog i aluvijalnog porijekla [5]. Na tri mjesta uzorkovanja, geološku podlogu čine karbonatni sedimenti: NK-1 – srednjetrijski karbonati dolomitsko-krečnjačkog sastava, NK-5 – bankoviti krečnjaci donje krede, i NK-3 – gornjekredni slojeviti i bankoviti krečnjaci. Lokacija NK-6 okarakterisana je vulkanskim i vulkanoklastičnim stijenama andezitskog sastava, a NK-7 – permsko-trijaskim klastitima (pješčarima i škriljcima) [5].

Prema tipu zemljišta, NK-2, NK-4, NK-8, NK-9, NK-10, NK-11, NK-12 su smeđa

zamljišta na šljunku i pijesku, NK-1, NK-3 i NK-5 – rendzine i crvenice na tvrdim karbonatima, a NK-6 i NK-7 – smeđa zemljišta na silikatnoj podlozi i kiselim vulkanitima [6].

Na svakoj lokaciji uzorkovano je zemljište mase oko 2 kg, iz površinskog sloja (do 5 cm), sa površine (25 x 25) cm<sup>2</sup>. U standardnoj proceduri uzorci su osušeni, prosijani, upakovani u Marineli posude od 1 litra i mjereni: NK-1-NK-10 – po 40 000 s) HPGe spektrometrom ORTEC, GEM – 40190, čija je relativna efikasnost 40 % i FWHM = 1.80 keV na 1.33 MeV (<sup>60</sup>Co), a NK-11 i NK-12 (22 361 s i 38 471 s, respektivno) – HPGe spektrometrom ORTEC, GEM-30185-S, relativne efikasnosti 30 % i FWHM = 1.72 keV na 1.33 MeV (<sup>60</sup>Co). U uzorcima su standardno mjereni <sup>137</sup>Cs, <sup>40</sup>K, <sup>232</sup>Th i <sup>226</sup>Ra (na primjer, [4]), a koncentracija aktivnosti <sup>238</sup>U određena je analizom pika na energiji 1001 keV (gama zrak koji prati raspad <sup>234m</sup>Pa do <sup>234</sup>U, energije 1001.03 keV i intenziteta 0.837 %).



**Slika 1. Mjesta uzorkovanja zemljišta**

Tri uzorka, NK-2, NK-5 i NK-6, pripremljena su i za hemijske analize u skladu sa EPA 3050b metodom [7], i mjerena pomoću iCAP 6300 ICP-OES, AMA-254 (Hg), i AA-6800 – koristeći GFAA tehniku (As).

## 2.2. Hazard indeksi

Koristeći prethodno publikovane *indoor* radonske koncentracije [2], u ovom radu su procijenjene godišnje efektivne doze ( $E_{Rn}$ , u Sv) usljed izlaganja radonu *indoor*:

$$E_{Rn} = DCF \cdot A_{Rn} \cdot F \cdot T, \quad (1)$$

gdje je DCF dozni konverzioni faktor (u Sv po Bq h m<sup>-3</sup>),  $A_{Rn}$  je srednja godišnja <sup>222</sup>Rn koncentracija (u Bq m<sup>-3</sup>), F je ravnotežni faktor između <sup>222</sup>Rn i njegovih potomaka, a T (u časovima) je vrijeme provedeno unutar kuće.

UNSCEAR preporučuje DCF od 9 nSv po Bq h m<sup>-3</sup>, kao i F od 0.4 [8]. Srednje T u oblasti Nikšića može se uzeti kao 13 sati dnevno.

Takođe, na osnovu novih i prethodno dobijenih koncentracija drugih terestrijalnih radionuklida (<sup>40</sup>K, <sup>232</sup>Th i <sup>226</sup>Ra) u uzorcima zemljišta, moguće je, koristeći standardne formule

$$H_{ex} = A_c(^{226}\text{Ra})/370 + A_c(^{232}\text{Th})/259 + A_c(^{40}\text{K})/4810, \quad (2)$$

$$H_{in} = A_c(^{226}\text{Ra})/185 + A_c(^{232}\text{Th})/259 + A_c(^{40}\text{K})/4810, \quad (3)$$

i

$$I_{yr} = A_c(^{226}\text{Ra})/150 + A_c(^{232}\text{Th})/100 + A_c(^{40}\text{K})/1500, \quad (4)$$

procijeniti eksterni, interni i tzv. *reprezentativni* (gama) hazard indeks, respektivno; čije vrijednosti  $\leq 1$  znače da se izlaganje zračenju usljed radionuklida u građevinskom materijalu limitira na  $1 \text{ mSv y}^{-1}$ .

### 3. Rezultati i diskusija

#### 3.1. Koncentracija aktivnosti $^{238}\text{U}$

Koncentracije aktivnosti  $^{238}\text{U}$  u uzorcima zemljišta iz Nikšića predstavljene su u tabeli 1.

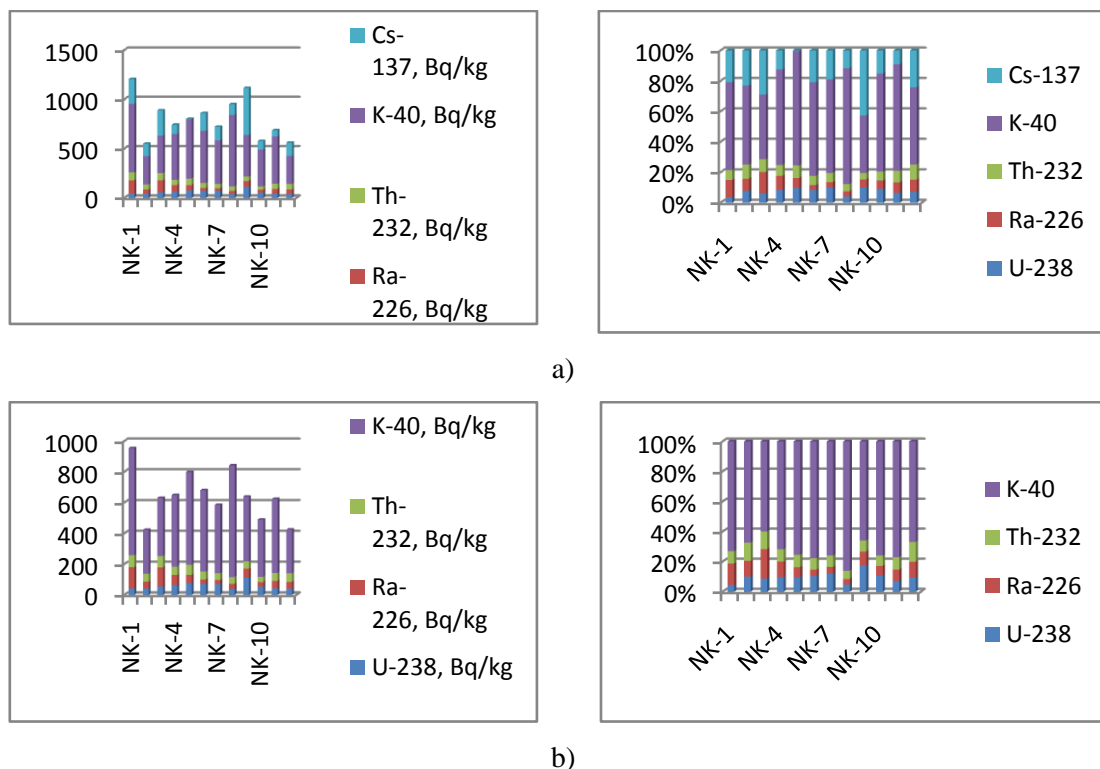
**Tabela 1. Koncentracija aktivnosti  $^{238}\text{U}$  u uzorcima zemljišta**

Uzorak zemljišta	Koordinate lokacije	$A_c(^{238}\text{U})$ , $\text{Bq kg}^{-1}$
NK-1	N 42°51.100' E 18°55.102'	43.1±13.4
NK-2	N 42°48.820' E 18°55.392'	42.9±14.6
NK-3	N 42°46.788' E 18°51.790'	55.8±20.8
NK-4	N 42°46.821' E 18°54.638'	62.3±17.3
NK-5	N 42°46.966' E 18°55.704'	77.4±17
NK-6	N 42°43.999' E 19°08.165'	72.5±15.5
NK-7	N 42°43.676' E 19°07.915'	70.9±14.2
NK-8	N 42°43.764' E 19°05.853'	39.7±13.9
NK-9	N 42°46.550' E 18°58.503'	112±16
NK-10	N 42°44.460' E 18°56.316'	53±13.3
NK-11	N 42°44.537' E 18°56.300'	43.6±21.3
NK-12	N 42°08.846' E 18°55.380'	40.3±15.5

Koncentracije aktivnosti kreću se od  $39.7 \text{ Bq kg}^{-1}$  do  $112 \text{ Bq kg}^{-1}$ , sa srednjom vrijednošću od  $59.5 \text{ Bq kg}^{-1}$ , što je oko 2 puta iznad srednje vrijednosti za cijelu teritoriju Crne Gore koja je *in situ* gama spektrometrijom dobijena 1994 ( $29.3 \text{ Bq kg}^{-1}$  [9]), i oko 15 % iznad srednje u Južnoj Evropi ( $51.7 \text{ Bq kg}^{-1}$  [10]). I najniža detektovana koncentracija veća je od srednje na svjetskom nivou ( $33 \text{ Bq kg}^{-1}$  [10]).

Kumulativna koncentracija aktivnosti radionuklida predstavljena je na slici 2. Doprinos  $^{238}\text{U}$  (slika 2a) kreće se od 4 % (NK-1, NK-8) do 10 % (NK-5, NK-7 i NK-9). Ako se

razmatraju samo prirodni radionuklidi (slika 2b), najveći doprinos uranijuma je na lokaciji NK-9 (18 %).



**Slika 2. Kumulativna koncentracija aktivnosti:  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  (a), samo prirodni radionuklidi ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) (b)**

### 3.2. Hazard indeksi

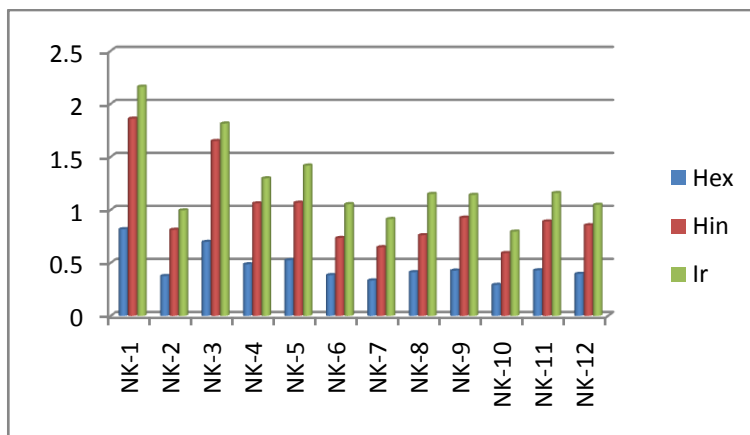
Procjene hazard indeksa prikazane su na slici 3. Eksterni,  $H_{\text{ex}}$ , ima vrijednosti između 0.29 i 0.82, sa srednjom vrijednošću od 0.47, i standardnom devijacijom i medijanom od 0.15 i 0.42, respektivno. Interni,  $H_{\text{in}}$ , varira od 0.59 do 1.86, sa srednjom vrijednošću, standardnom devijacijom i medijanom – 0.99, 0.39 i 0.87, respektivno. Na četiri lokacije (NK-1, NK-3, NK-4 i NK-5) ovaj indeks veći je od 1, što bi možda moglo da znači da radijacioni hazard nije zanemarljiv za stanovništvo koje tamo živi. Tzv. reprezentativni indeks,  $I_{\text{yr}}$  (na slici 3 –  $I_{\text{r}}$ ), mijenja se od 0.79 do 2.16, sa srednjom vrijednošću, standardnom devijacijom i medijanom – 1.25, 0.39 i 1.15, respektivno. Devet (od 12) izabranih lokacija u Nikšiću pokazalo je ovaj index veći od jedinice.

Godišnja efektivna doza usljed izlaganja indoor radonu predstavljena je na slici 4, s minimumom, maksimumom, srednjom vrijednošću, standardnom devijacijom i medijanom od  $0.17 \text{ mSv y}^{-1}$ ,  $16.5 \text{ mSv y}^{-1}$ ,  $2.1 \text{ mSv y}^{-1}$ ,  $2.8 \text{ mSv y}^{-1}$  i  $1.05 \text{ mSv y}^{-1}$ , respektivno.

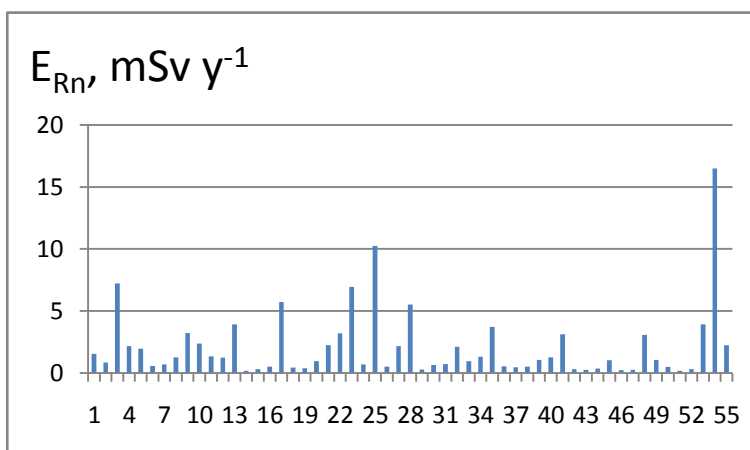
Na 26 (od 55) lokacija, vrijednosti navedene doze iznad su srednje na svjetskom nivou (srednje izlaganje prirodnim izvorima zračenja dato u izvještaju UNSCEAR [10] – ukupna godišnja efektivna doza od  $2.4 \text{ mSv}$ , izlaganje usljed inhalacije –  $1.26 \text{ mSv}$ , uz doprinos radona od  $1.15 \text{ mSv}$ ).

Najveća procijenjena doza odnosi se na dnevnu sobu jedne porodične kuće u naselju Rastoci, u kojoj je, suprotno očekivanju, tzv. „ljetnja“ koncentracija bila veća od „zimске“ [2].

Godišnje efektivne doze iznad 6.83 mSv (odgovara  $400 \text{ Bq m}^{-3}$  radonske koncentracije, što predstavlja akcioni nivo), nađene su za još tri privatne kuće u naseljima Rubeža, Kličevo i Čemenca.



Slika 3. Hazard indeksi: eksterni ( $H_{ex}$ ), interni ( $H_{in}$ ), reprezentativni ( $I_r$ )



Slika 4. Godišnja efektivna doza usljed izlaganja *indoor* radonu u Nikšiću, Crna Gora

### 3.3. Sadržaj metala

Rezultati hemijskih analiza (metali, metaloidi) uzoraka zemljišta sa lokacija NK-2, NK-5 i NK-6, dati su u tabeli 2.

Najveći doprinos (među razmatranim elementima) daje Mn (oko 77 %, 71 % i 77 %, respektivno), zatim Zn (5 %, 7 % i 5%, respektivno) i Ni (4 %, 4 % i 3%, respektivno). Pb, Cr i Cu pokazuju isti doprinos ukupnom (ovdje razmatranom) sadržaju elemenata (2 %, 3 % i 2 %, respektivno) – u svim uzorcima, dok je Mo bio ispod minimalne detektibilne koncentracije u uzorcima NK-5 i NK-6. Približna kompozicija elemenata u, na primjer, NK-5 uzorku je Mn, Ba, Zn, Ni, Cr, Pb, Cu, B, As – 71 %, 9 %, 7 %, 4 %, 3 %, 2 %, 2 %, 1 %, 1 %, respektivno. Upoređujući ove podatke sa dostupnim za uzorke pijeska sa Primorja Crne Gore [11], koncentracija As u NK-5 i NK-6 je niža, kao i B u NK-2, dok su Cr i Ni u svim uzorcima nižih koncentracija od onih koje su izmjerene u uzorku pijeska sa Velike Plaže u Ulcinju. Ostali elementi pokazuju veće koncentracije, ako se izuzme Mo ( $10.08 \text{ mg kg}^{-1}$  u uzorku pijeska sa plaže Jaz [11]).

**Tabela 2. Rezultati hemijskih analiza**

Element	Uzorak NK-2, mg kg <sup>-1</sup>	Uzorak NK-5, mg kg <sup>-1</sup>	Uzorak NK-6, mg kg <sup>-1</sup>	Minimalna detektibilna koncentracija, mg kg <sup>-1</sup>
As	6.89	9.09	7.33	0.1
B	5.84	19.08	10.24	0.5
Cd	3.03	3.52	2.71	0.04
Hg	0.0521	0.0264	0.049	0.0001
Cr	40.43	38.57	32.26	0.08
Cu	21.36	21.47	19.01	0.08
Mn	998.2	908.2	891.6	0.08
Ni	47.59	45.32	31.8	0.08
Pb	23.75	19.81	22.14	0.08
Zn	61.97	86.24	63.15	0.08
Ba	78.33	119.6	80.91	0.08
Mo	0.46	<0.25	<0.25	0.25

#### 4. Zaključak

Izmjerene koncentracije aktivnosti <sup>238</sup>U u uzorcima zemljišta iz Nikšića, kao i koncentracije metala u istim, uz prethodno razmatrane koncentracije aktivnosti ostalih, za zaštitu od zračenja bitnih terestrijalnih radionuklida i *indoor* <sup>222</sup>Rn koncentracija, uz procijenjene hazard rizike, osnov su za dalje analize stanja životne sredine i rizika po stanovništvo – u drugom po veličini gradu u Crnoj Gori.

**Zahvalnica:** Istraživanja su podržana od strane Ministarstva nauke Crne Gore.

#### 5. Literatura

- [1] Zavod za statistiku Crne Gore – MONSTAT. Statistički godišnjak 2012. Podgorica, Crna Gora (2012).
- [2] N. Antovic, P. Vukotic, R. Zekic, R. Ilic. Indoor radon concentrations in the town of Niksic – Montenegro. *Radiat. Prot. Dosim.* 124 (2007) 385-391.
- [3] Nikola Svrkota, Nevenka M. Antović, Perko Vukotić, Tomislav Anđelić. Prirodni radionuklidi i cezijum-137 u tlu Nikšića. Zbornik radova međunarodnog simpozijuma *Geoekologija – XXI vijek, teorijski i aplikativni zadaci*, Žabljak-Nikšić (2010) 703-711.
- [4] N. M. Antović, N. Svrkota, I. Antović, R. Svrkota, R. Žižić, D. Živković. Radioactivity impact assessment of Nikšić region in Montenegro. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 302 (2014) 831-836.
- [5] M. Mirković, M. Živaljević, V. Djokić, Z. Perović, M. Kalezić, M. Pajović. Geološka karta Crne Gore, 1:200 000. 1985. Geološki zavod Crne Gore, Podgorica.
- [6] G. Djuretić, B. Fuštić, M. Djuretić, P. Čelebić. Pedološka karta SFRJ, 1:50 000 (list Nikšić 1). 1986. Poljoprivredni institut, Podgorica.
- [7] U. S. Environmental Protection Agency (EPA), Test methods, <[www.epa.gov/osw/hazard/testmethods/sw846/pdfs/3050b.pdf](http://www.epa.gov/osw/hazard/testmethods/sw846/pdfs/3050b.pdf)> (1996).
- [8] UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation, Annex E: Sources-to-effects assessment for radon in homes and workplaces. 2006. United Nations, New York.
- [9] P. Vukotic, N. Antovic, S. Dapcevic, G. Borisov, V. Kuzmic, V. Kulakov, M.

Mirkovic, M. Pajovic, R. Svrkota, B. Fustic, G. Djuretic. Background gamma-radiation in Montenegro. In: Proc. IRPA Regional Symposium on Radiation Protection in Neighbouring Countries of Central Europe, Prague (1997) 477-479.

[10] UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation. Report to the General Assembly of the United Nations with Scientific Annexes, 2000. United Nations, New York.

[11] N. M. Antovic, N. Svrkota, I. Antovic, R. Svrkota, D. Jancic. Radioactivity in Montenegro beach sands and assessment of the corresponding environmental risk. *Isot. Environ. Health. S.* 49 (2013) 153-162.

## <sup>238</sup>U AND HEAVY METALS IN SOILS OF NIKŠIĆ, MONTENEGRO

**Nikola SVRKOTA**<sup>1</sup>, **Nevenka ANTOVIĆ**<sup>2</sup>, **Ranka ŽIŽIĆ**<sup>1</sup>, **Ranko ZEKIĆ**<sup>1</sup>

1) *Centre for Ecotoxicological Research, Podgorica, Montenegro,*  
*nikola.svrkota@ceti.co.me*

2) *Faculty of Natural Sciences and Mathematics, University of Montenegro,*  
*Podgorica*

### ABSTRACT

From previously obtained *indoor* radon concentrations in 55 dwellings in Nikšić, the second largest town in Montenegro, the annual effective dose evaluated in this work showed the range from 0.17 mSv y<sup>-1</sup> to 16.5 mSv y<sup>-1</sup>, with an average of 2.1 mSv y<sup>-1</sup>. Uncultivated soils from 12 locations, selected using the criteria of geological and pedological characteristics, were analyzed by the HPGe spectrometer, with an aim to determine activity concentrations of <sup>238</sup>U. Their range was found to be from 39.7 Bq kg<sup>-1</sup> to 112 Bq kg<sup>-1</sup>, with an average of 59.5 Bq kg<sup>-1</sup>. By using previously obtained results, the cumulative activity concentrations were also considered, showing a contribution of <sup>238</sup>U from 4 % to 10 % (taking into account <sup>137</sup>Cs, as well), or up to 18 % (natural radionuclides only). Having in mind a significance for environmental protection, content of some elements in typical Nikšić soils was also determined, showing (for example, in one sample) a contribution of Mn, Ba, Zn, Ni, Cr, Pb, Cu, B, As – in an amount of 71 %, 9 %, 7 %, 4 %, 3 %, 2 %, 2 %, 1 %, 1 %, respectively.



## ANALIZA RADIOAKTIVNOSTI MATERIJALA SA VULKANA ETNA SICILIJA

**Marija JANKOVIĆ<sup>1</sup>, Dragana TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Nataša SARAP<sup>1</sup>, Milica RAJACIĆ<sup>1</sup>, Jelena NIKOLIĆ<sup>1</sup>, Gordana PANTELIĆ<sup>1</sup> i Ivan PETROVIĆ<sup>1,2</sup>**

1) Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, 11001 Beograd, Srbija, marijam@vinca.rs

2) Univerzitet u Beogradu, Fizički fakultet, 11000 Beograd, Srbija

### SADRŽAJ

*Rad predstavlja rezultate merenja prirodne radioaktivnosti u materijalima koji su uzeti iz vulkana Etna na Siciliji tokom 2014. godine. Analiza je urađena spektrometrijom gama emitera na HPGe detektorima i određivanjem ukupne alfa i beta aktivnosti na gasnom proporcionalnom brojaču. U uzorcima su detektovani prirodni radionuklidi  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{235}\text{U}$ , i  $^{238}\text{U}$ . Ukupna alfa aktivnost kretala se u granicama od minimalne detekcione koncentracije do  $227 \text{ Bq kg}^{-1}$  do, dok je ukupna beta aktivnost bila u opsegu od  $250 \text{ Bq kg}^{-1}$  do  $684 \text{ Bq kg}^{-1}$ .*

### 1. Uvod

Etna je aktivni stratovulkan u Italiji koji se nalazi na istočnoj obali Sicilije (slika 1), blizu Mesine i Katanije [1]. Etna je s više od 3.320 metara nadmorske visine najviši vulkan i najviša planina ispod Alpa u Evropi. Prema načinu postanka i prema obliku kupe i kratera vulkani se dele u tri grupe: eksplozivni tip - vulkani koji nastaju eksplozijom lave, gasova i para pri čemu je lava zastupljena u manjoj meri; izbačeni materijal je raspršen u komade, blokove, prašinu koji zajedno sa gasovima formiraju kružni prsten oko kratera; lavični tip - vulkani kod kojih se aktivnost ogleda u izlivanju lave dok su erupcije odsutne; ovaj tip vulkana, havajski tip, formira ploče i platoe oko kratera tako da su kupe skoro sasvim odsutne; mešoviti tip ili stratovulkan - tip vulkana kod koga se javljaju i eksplozivni i lavični vid vulkanske aktivnosti (Etna i Vezuv). Lava se uglavnom sastoji od  $\text{SiO}_2$  (60 %),  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (15 %),  $\text{CaO}$  (5 %),  $\text{MgO}$  (3,5%),  $\text{FeO}$  (3,5 %) i  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (3 %). U njenom sastavu su takođe prisutni gasovi i pare ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{S}$ ,  $\text{NH}_4$ ,  $\text{Cl}$ ,  $\text{Ar}$ ,  $\text{H}$ ,  $\text{N}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{HCl}$ ,  $\text{NaCl}$ ,  $\text{KCl}$ ,  $\text{FeCl}_3$ ,  $\text{HF}$ ,  $\text{NH}_3$ ). Očvršćavanjem navedenih produkata vulkanskih erupcija obrazuju se razne vulkanske stene. Materijali koji potiču od stena uglavnom sadrže prirodne radionuklide kao što su članovi niza  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  i  $^{40}\text{K}$  [2].

Novoformirane kopnene mase, nastale usled vulkanskih erupcija ili skorih složenih tektonskih poremećaja, imaju povišene koncentracije prirodnih radionuklida u zemljištu i kao takve imaju uticaj na izloženost populacije dejstvu jonizujućeg zračenja.

Kao jedan od glavnih i najviše ispitivanih radionuklida u stenama vulkanskog porekla, ističe se radon. Izotopi radona se u prirodi pojavljuju kao produkti sva tri prirodna radioaktivna niza -  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  i  $^{235}\text{U}$ . Radon je specifičan sa tačke gledišta zaštite od zračenja, zato što je to jedini gas u prirodnom radioaktivnom nizu. Zbog toga, radon lako difunduje kroz stene, lako je rastvorljiv u vodi i može se preneti daleko od mesta nastanka, čime doprinosi prirodnom nivou zračenja u okolini.

Ekshalacija radona iz vulkanskih stena i podzemnih i nadzemnih voda ispitivana je od strane mnogih autora [1,3] ali ima malo podataka o sadržaju prirodnih radionuklida u lavi u čvrstom stanju. Takođe u literaturi ima malo podataka koji se odnose na sadržaj prirodnih radionuklida u stvrdnutoj lavi koja se nalazi na lokaciji vulkana Etna.

U ovom radu dati su rezultati ispitivanja sadržaja radionuklida u stvrđutoj lavi koja je uzeta na lokalitetu vulkana Etna, na prvom nivou, metodom spektrometrije gama emitera.



**Slika 1. Vulkan Etna na Siciliji**

## **2. Eksperimentalni deo**

Analiza radioaktivnosti ispitivana je u uzorcima stvrđute lave sa različitim primesama metala, tako da su uzorci bili različitih boja, npr. crvena, bela, siva, braon (slika 2). Uzorci su uzeti 2014. godine na osnovnom platou vulkana.



**Slika 2. Mesta uzorkovanja na lokaciji vulkana Etna**

Priprema uzoraka za spektrometriju gama emitera obuhvata mlevenje i prosejavanje do određene granulacije i odmeravanje u geometriju merenja. U pripremljenim uzorcima uspostavljena je radioaktivna ravnoteža. Spektrometrija gama emitera urađena je na HPGe detektorima relativne efikasnosti 20 i 50 %. Za kalibraciju detektora korišćen je sekundarni referentni radioaktivni materijal u geometriji plastične kutije od 125 cm<sup>3</sup>

matriksa zemlje koji je dobijen od primarnog referentnog radioaktivnog materijala, Czech Metrological Institute, Praha, 9031-OL-427/12, type ERX, ukupne aktivnosti 72.40 kBq na 31.08.2012. godine ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ). Vreme merenja uzoraka je 60 ks.

Priprema uzoraka za merenje ukupne alfa i beta aktivnosti obuhvata odmeravanje samlevenog uzorka u planšetnu od nerđajućeg čelika. Merenja su obavljena odmah nakon pripreme uzorka, na niskofonskom gasnom proporcionalnom brojaču Thermo Eberline FHT 770T (ESM Eberline Instruments GmbH, Erlangen, Nemačka). Efikasnost merenja ukupne alfa i beta aktivnosti je određena upotrebom standardnih izvora  $^{241}\text{Am}$  i  $^{90}\text{Sr}$ , i iznosi 26 odnosno 35 %.

Rezultati merenja dati su sa mernom nesigurnošću koja je izražena kao proširena merna nesigurnost za faktor  $k = 2$  koji za normalnu raspodelu odgovara nivou poverenja od 95 %.

### 3. Rezultati i diskusija

Rezultati dobijeni analizom uzoraka materijala sa Etne spektrometrijom gama emitera prikazani su u Tabeli 1. Detektovani su prirodni radionuklidi  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  i  $^{235}\text{U}$  i  $^{238}\text{U}$ , dok je koncentracija proizvedenog radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  u svim uzorcima ispod minimalne granice detekcije. Maksimalne koncentracije  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{232}\text{Th}$  nađene su u crvenoj lavi, maksimalna koncentracija  $^{40}\text{K}$  je dobijena za sivo braon lavu, dok je maksimalna koncentracija  $^{238}\text{U}$  dobijena za belu lavu (velika merna nesigurnost aktivnosti). Dobijene vrednosti koncentracije za  $^{226}\text{Ra}$  su u intervalu od 46 do 89 Bq kg<sup>-1</sup>, za  $^{232}\text{Th}$  od 28 Bq kg<sup>-1</sup> do 49 Bq kg<sup>-1</sup> i za  $^{40}\text{K}$  od 360 Bq kg<sup>-1</sup> do 580 Bq kg<sup>-1</sup>. Očigledno je da su dobijene veće vrednosti koncentracije  $^{226}\text{Ra}$  u odnosu na  $^{232}\text{Th}$ . Veća koncentracija radijuma-226 u uzorcima indukuje moguću emanaciju radona [4].

Odnos  $^{226}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$  je u opsegu 1.3 do 2.3, odnos  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  se kretao u opsegu od 0.6 do 1.1, dok je odnos  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$  bio u opsegu 2 do 2.8. Ovako visok odnos  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{238}\text{U}$  prema  $^{232}\text{Th}$  govori o tome da su uzorci poticali od relativno mladih magmatskih stena. S obzirom na dužinu vremena poluraspada ovih radionuklida i pod pretpostavkom da se geohemijski procesi dešavaju trenutno, trajanje neravnoteže među  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{232}\text{Th}$  i  $^{238}\text{U}$  i  $^{232}\text{Th}$  traje 8000 i 300000 godina, redom. Time dobijamo informaciju o relativnoj starosti magmatskih stena koje su uzorkovane [5]. Odnos  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  se kretao u opsegu od 0.045 do 0.083 što približno odgovara prirodnom poreklu uranijuma.

U radu Trevisi et al. [4] ispitivani su uzorci lave sa područja Italije i dobijene su znatno veće vrednosti prirodnih radionuklida u odnosu na rezultate prikazane u ovom radu. Srednja vrednost koncentracije  $^{226}\text{Ra}$  u uzorcima lave iz vulkana Etna je duplo manja nego u uzorcima lave ispitivanim u radu [4], srednja vrednost koncentracije  $^{232}\text{Th}$  je manja 6 puta nego u lavi iz rada [4],  $^{40}\text{K}$  i  $^{238}\text{U}$  su pet puta manji. U poređenju sa drugim vulkanskim stenama i vulkanskim tufom, za koje su rezultati merenja koncentracije prirodnih radionuklida dati u referencama [4,6] dobijene su nešto niže vrednosti.

Rezultati merenja ukupne alfa i beta aktivnosti dati su u Tabeli 2. Ukupna alfa aktivnost kretala se u granicama od minimalne detekcione koncentracije (MDC) do 227 Bq kg<sup>-1</sup> (maksimalna vrednost ukupne alfa aktivnosti se ne razlikuje značajno od MDC), dok je ukupna beta aktivnost bila u opsegu od 250 do 684 Bq kg<sup>-1</sup>, i značajno se razlikuje od doprinosa aktivnosti  $^{40}\text{K}$  u ukupnoj beta aktivnosti.

**Tabela 1. Vrednosti koncentracija radionuklida u uzorcima stvrdnute lave sa lokacije vulkana Etna**

Boja uzorka	Sadržaj radionuklida (Bq kg <sup>-1</sup> )					
	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th	<sup>40</sup> K	<sup>137</sup> Cs	<sup>235</sup> U	<sup>238</sup> U
Bela	80 ± 8	35 ± 4	400 ± 30	< 1	1.8 ± 0.2	40 ± 20
Crvena I	89 ± 9	49 ± 6	480 ± 40	< 1	< 1.2	< 20
Crvena II	58 ± 5	35 ± 4	370 ± 30	< 1	1.2 ± 0.2	21 ± 13
Tamno siva	60 ± 10	35 ± 8	370 ± 40	< 1	< 2	< 40
Sivo braon	60 ± 5	30 ± 5	580 ± 50	< 0.5	< 0.7	< 10
Sivo crvena	66 ± 5	35 ± 4	370 ± 30	< 1	< 0.7	< 20
Sivo roze	82 ± 7	43 ± 7	530 ± 40	< 1	< 1	< 20
Svetlo siva	46 ± 6	28 ± 5	460 ± 40	< 0.4	< 0.6	< 9
Sivo bela	65 ± 4	39 ± 4	360 ± 20	< 0.1	2.5 ± 0.3	30 ± 10
Sivo zelena	46 ± 5	35 ± 5	420 ± 40	< 1	< 1	< 20

**Tabela 2. Vrednosti koncentracija ukupne alfa i beta aktivnosti u uzorcima stvrdnute lave sa lokacije vulkana Etna**

Boja uzorka	Ukupna alfa aktivnost (Bq kg <sup>-1</sup> )	Ukupna beta aktivnost (Bq kg <sup>-1</sup> )
Bela	< 177	250 ± 90
Crvena I	< 182	520 ± 170
Crvena II	< 231	462 ± 140
Tamno siva	220 ± 90	655 ± 130
Sivo braon	215 ± 90	684 ± 120
Sivo crvena	< 220	554 ± 160
Sivo roze	227 ± 90	585 ± 120
Svetlo siva	213 ± 90	667 ± 110
Sivo bela	< 188	462 ± 100
Sivo zelena	189 ± 90	663 ± 120

#### 4. Zaključak

Na osnovu dobijenih rezultata merenja radioaktivnosti u uzorcima stvrdnute lave sa vulkana Etna na Siciliji, zaključeno je da se dobijene vrednosti koncentracije prirodnih radionuklida istog reda veličine kao i koncentracije prirodnih radionuklida u zemljištu ili građevinskom materijalu. U poređenju sa lavom sa druge lokacije u Italiji i drugim vulkanskim stenama i vulkanskim tufom u ovom radu su dobijene niže vrednosti.

#### Zahvalnica

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva za nauku i tehnološki razvoj Srbije pod sledećim projektom: III43009.

#### 5. Literatura

- [1] B. Kozłowska, D. Morelli, A. Walencik, J. Dorda, I. Altamore, V. Chieffalo, S. Giammanco, G. Imme and W. Zipper. Radioactivity in waters of Mt. Etna (Italy). *Radiation Measurements*. 44 (2009) 384-389.
- [2] EC European Commission. Radiation Protection Unit, Radiological protection

principles concerning the natural radioactivity of building materials. *Radiat. Prot* 112, 1999.

[3] W. D'Alessandro and F. Vita. Groundwater radon measurements in the Mt. Etna area. *J. Environ. Radioact.* 65 (2003) 187-201.

[4] R. Trevisi, M. Bruno, C. Orlando, R. Ocone, C. Paolelli, M. Amici, A. Altieri and B. Antonelli. Radiometric characterization of more representative natural building materials in the province of Rome. *Radiation Protection Dosimetry*. 113 (2005) 168-172.

[5] R. Wordel, D. Mouchel, V. A. Sole, J. Hoogewerff and J. Hertogen. Investigation of the natural radioactivity of volcanic rock samples using a low background gamma-ray spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 339 (1994) 332-328.

[6] S. Righi, L. Bruzzi, Natural radioactivity and radon exhalation in building materials used in Italian dwellings, *Journal of Environmental Radioactivity* 88 (2006) 158-170.

## RADIOACTIVITY ANALYSIS OF THE MATERIAL FROM ETNA VOLCANO AT SICILY

**Marija JANKOVIĆ<sup>1</sup>, Dragana TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Nataša SARAP<sup>1</sup>, Milica RAJAČIĆ<sup>1</sup>, Jelena NIKOLIĆ<sup>1</sup>, Gordana PANTELIĆ<sup>1</sup> and Ivan PETROVIĆ<sup>1,2</sup>**

*1) University of Belgrade, Institute for nuclear sciences "Vinča", Radiation and Environmental Protection Department, 11001 Belgrade, Serbia, marijam@vinca.rs*

*2) University of Belgrade, Faculty of Physics, 11000 Belgrade, Serbia*

### ABSTRACT

This paper presents measurement of the natural radioactivity occurring in the samples taken from Etna, Sicily in 2014. A gamma spectrometry analysis was performed on HPGe detectors and gross alpha and beta counting was performed by gas proportional counter. The samples consisted of various rocks and hard lava with different metals and mineral particles. For a sample to be measured, first it needs to be grinded and sealed in appropriate geometry to achieve a radioactive equilibrium. Naturally occurring radionuclides  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{235}\text{U}$ , and  $^{238}\text{U}$  were detected in the samples. The measured activity concentrations of the naturally occurring radionuclides were lower than those measured in volcanic tuff and lava, reported in a literature and were similar to the activity concentration in soil and building materials. The determined  $^{226}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  and  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$  ratio indicates that the samples were originated from relatively young magmatic rocks, while the  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  ratio was consistent with the natural uranium. Gross alpha activity was below minimal detectable concentration up to  $227 \text{ Bq kg}^{-1}$  and gross beta ranged from  $250 \text{ Bq kg}^{-1}$  to  $684 \text{ Bq kg}^{-1}$ . In some samples, gross beta was significantly different than a contribution to the beta activity originating from  $^{40}\text{K}$ .

## KONTAMINACIJA VAZDUHA USLED RESUSPENZIJE RADIONUKLIDA IZ ZEMLJIŠTA

**Mirjana RADENKOVIĆ<sup>1</sup>, Branka DJUROVIĆ<sup>2</sup> i Šćepan MILJANIĆ<sup>3</sup>**

- 1) Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke Vinča, Beograd, Srbija, mirar@vinca.rs
- 2) VMA, Medicinski fakultet VMA Univerziteta odbrane, Beograd, Srbija, djurovic.branka@gmail.com
- 3) Univerzitet u Beogradu, Fakultet za fizičku hemiju, Beograd, Srbija epan@ffh.bg.ac.rs

### SADRŽAJ

U radu su prikazani rezultati procene pojave povišenih koncentracija radionuklida u vazduhu usled resuspenzije materijala sa kontaminiranog zemljišta, primenom dva različita pristupa: pomoću modela formiranja čestičnog depozita i određivanjem faktora resuspenzije. Poređenjem dobijenih rezultata ( $0.295 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  i  $6.2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , respektabilno) sa rezultatima alfa-spektrometrijski određenog sadržaja osiromašenog uranijuma ( $0.43- 602 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ) u atmosferskom aerosolu tokom sanacije područja kontaminiranog osiromašenim uranijumom došlo se do nalaza da postoji neslaganje odnosno da kontaminacija vazduha u realnim uslovima može biti daleko viša u odnosu na predviđenu. Rezultati udela osiromašenog uranijuma u ukupnom (do 89%) u pojedinim uzorcima vazduha sa kontaminiranog područja, ukazuju na visok stepen resuspenzije kontaminanta u vazduhu. S obzirom na to da najveći broj čestica suspendovanih u vazduhu može biti aerodinamičkog prečnika oko  $1 \mu\text{m}$ , to se putem inhalacije čestice mogu uneti i ostati deponovane u respiratornim organima, aktivnosti na dekontaminaciji zemljišta se moraju pažljivo planirati i obavljati uz striktnu primenu mera lične i kolektivne zaštite. Kontinuirani monitoring vazduha i stalni medicinski nadzor nad radnicima moraju biti obezbeđeni.

### 1. Uvod

Postojanje površinske kontaminacije zemljišta radionuklidima može uzrokovati pojavu radioaktivnih kontaminanata i u vazduhu iznad površine, pod određenim vremenskim uslovima ili usled delovanja čoveka. U oba slučaja dolazi do podizanja čestica u vazduh gde mogu da borave i duže vreme ukoliko dodje do njihovog čvršćeg vezivanja za već prisutne komponente atmosferskog aerosola. Ova pojava je utoliko izraženija ukoliko su čestice manje mase, odnosno manjeg aerodinamičkog prečnika, što zavisi od tipa zemljišta, ali zavisi i od ostalih fizičko-hemijskih parametara, kao što su intenzitet i vrsta kontaminacije, vlažnost vazduha, brzina vetra, prisustvo sekundarnih anjona, organskih zagadjivača, itd. Resuspenzija i pojava povišenih koncentracija radionuklida u vazduhu iznad kontaminiranog zemljišta, može imati značajne posledice po zdravlje ljudi usled eventualnog unošenja u organizam inhalacijom. Ukoliko se pritom radi o respirabilnim česticama aerodinamičkog prečnika oko  $1 \mu\text{m}$ , postoji mogućnost da one i ostanu deponovane u respiratornim organima čime se njihovo štetno dejstvo uvećava usled pojave radioaktivnih potomaka unetih radionuklida. S obzirom na veliki broj promenljivih parametara koji utiču na pojavu resuspenzije sa zemljišta, ona se može samo grubo kvantifikovati. U radu će biti prikazani rezultati određivanja koncentracije uranijuma u vazduhu, na osnovu analize depozita aerosola, uzorkovanog tokom radova

na sanaciji jednog od kontaminiranih područja. Dobijeni rezultati će biti upoređeni sa rezultatima izračunavanja koncentracije uranijuma u vazduhu primenom dva različita pristupa: na osnovu modela formiranja čestičnog depozita i određivanjem faktora resuspenzije [1]

## 2. Materijal i metode

Odredjivanje osiromašenog uranijuma u aerosolu usled resuspenzije sa kontaminiranog zemljišta, vršeno je iz depozita aerosola uzorkovanog nekoliko sati dnevno tokom sanacije kontaminiranog područja. Uzorkovanje je vršeno prisivavanjem  $1-7 \times 10^3 \text{ m}^3$  vazduha kroz filtre, nakon čega su oni tretirani u postupku radiohemijske separacije zasnovane na jonoizmenjivačkoj hromatografiji (DOWEX 1x8) uz dodatak oko  $0.1 \text{ Bq } ^{232}\text{U}$  trasera. Tankoslojni alfa-izvori su pripremani procedurom elektrodepozicije po Talvitiju i mereni alfa-spektrometrijom visoke rezolucije u alfa-komorama sa PIPS detektorima površine  $100$  i  $300 \text{ mm}^2$  i efikasnosti  $7\%$  i  $15\%$ , respektivno. Sadržaj osiromašenog uranijuma u uzorcima je određivan na osnovu odnosa aktivnosti  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  i  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ . [2]

Primenjujući model formiranja čestičnog depozita (dust-loading approach), posmatran je osiromašeni uranijum deponovan na površinskom zemljištu pri zaustavljanju i fragmentiranju projektila na tlu kao i količina koja se našla na tlu usled spuštanja prašine i aerosola stvorenih samozapaljenjem osiromašenog uranijuma u vazduhu tokom dejstava avijacije. Uzroci njegovog ponovnog pojavljivanja u vazduhu u obliku aerosola mogu biti vremenski uslovi ili ljudska aktivnost. Koncentracija izotopa uranijuma  $C_V$  ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ ) u vazduhu se tada može izraziti kao funkcija koncentracije uranijuma u zemljištu  $C_Z$  ( $\text{Bq}/\text{kg}$ ) sa kojeg se vrši podizanje i resuspenzija a relacija je uspostavljena preko faktora  $S_E$  ( $\text{kg}/\text{m}^3$ ):

$$C_V = S_E \cdot C_Z \quad (1)$$

Pristup formiranja čestičnog depozita se primenjuje za opisivanje resuspenzije sa zemljišta koje je kontaminirano pre izvesnog intervala vremena. Po drugoj metodologiji, kvantifikacija se vrši određivanjem faktora resuspenzije  $K_R$  ( $\text{m}^{-1}$ ) koji se može definisati preko površinske kontaminacije  $A_S$  ( $\text{Bq}/\text{m}^2$ ).

$$C_V = K_R \cdot A_S \quad (2)$$

Faktor resuspenzije je funkcija više parametara i ima različite vrednosti za različita podneblja i klimatske uslove kao i za različite vrste aktivnosti, te se posmatra uz aproksimacije specifične za uslove primene. [1] S druge strane, procena očekivane koncentracije uranijuma u vazduhu, makar i gruba, neophodna je da bi se mogli planirati adekvatni postupci dekontaminacije kao i sredstva zaštite tokom izvođenja radova na određenom području.

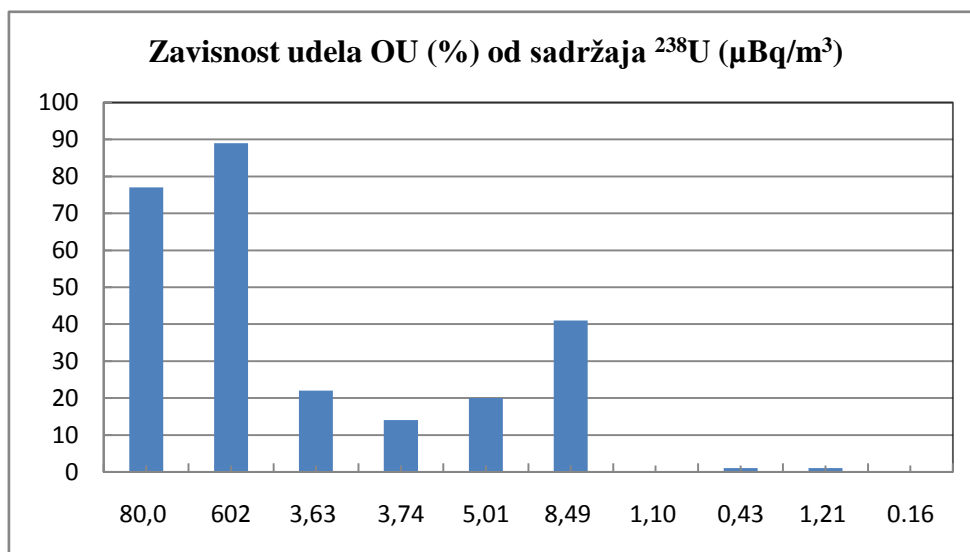
## 3. Rezultati i diskusija

Rezultati određivanja izotopa uranijuma ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ) u uzorcima aerosola tokom radova na sanaciji kontaminiranog područja alfaspektrometrijskom metodom prikazani su u Tabeli 1.

**Tabela 1. Sadržaj izotopa uranijuma u uzorcima aerosola odredjen alfa-spektrometrijski**

Oznaka	V m <sup>3</sup>	A( <sup>238</sup> U) μBq/m <sup>3</sup>	A( <sup>234</sup> U) μBq/m <sup>3</sup>	A( <sup>235</sup> U) μBq/m <sup>3</sup>
BF1	1886	80,0 ± 6,8	11,9 ± 1,3	0,83 ± 0,28
BF2	2045	602 ± 61	63,1 ± 6,9	6,5 ± 1,2
BF3	5099	3,63 ± 0,28	2,06 ± 0,18	0,05 ± 0,02
BF4	5177	3,74 ± 0,36	2,60 ± 0,13	0,07 ± 0,04
BF5	2182	5,01 ± 0,39	2,99 ± 0,27	0,05 ± 0,02
BF6	1700	8,49 ± 0,90	3,12 ± 0,47	0,16 ± 0,09
BF7	5875	1,10 ± 0,14	1,13 ± 0,14	<MDC
BF8	2693	0,43 ± 0,07	0,41 ± 0,07	<MDC
BF9	6854	1,21 ± 0,09	1,18 ± 0,09	<MDC
BF10	1958	<0,16	0,08 ± 0,02	<MDC

Prikazani rezultati pokazuju da se sadržaj uranijuma, odnosno koncentracija najzastupljenijeg izotopa <sup>238</sup>U, u uzorcima vazduha kreće u veoma širokom opsegu 0.43-602 μBq/m<sup>3</sup> odnosno 0.03-48.6 ng/m<sup>3</sup>, što ukazuje da je potrebna dodatna korelacija sa detaljima uzorkovanja kao što su: period i udaljenost u odnosu na aktivnosti radnika, kao i vrsta aktivnosti (mašinski radovi, itd). Maksimalna vrednost aktivnosti odredjena na filtru BF2 (602 μBq/m<sup>3</sup>) veoma se razlikuje od ostalih i može se objasniti prisustvom manjeg fragmenta materijala projektila na filtru. Prikaz kontaminacije vazduha u uzorcima sa različitim sadržajem ukupnog uranijuma, dat je na Slici 1.



**Slika1. Kontaminacija vazduha (udeo osiromašenog uranijuma u %) u funkciji sadržaja <sup>238</sup>U usled resuspenzije**



Na osnovu podataka o pronađenom materijalu od OU (30 projektila) na ispitivanoj površini zemljišta, uz pretpostavku da je sav materijal homogeno raspoređen na tlu, površinska kontaminacija bi se mogla iskazati kao  $5\text{g OU/m}^2$ . S obzirom da je u realnom slučaju utvrđena kontaminacija strogo lokalizovana odnosno tačkasta, uz pretpostavku da je 10% materijala iz projektila ostalo na površinskom zemljištu u obliku nerastvornih oksida, u radijusu oko 50 cm oko svakog projektila, nivo tačkaste kontaminacije bi iznosio oko  $150\text{g uranijuma /m}^2$ , a doprinos OU iznosio bi  $0.5\text{g/m}^2$  ( $6.2\text{kBq/m}^2$ ) za celu zonu kontaminacije. Uzimajući u obzir prethodno razmatranje i koeficijente  $K_R$  i  $S_E$  koji se odnose na resuspenziju izazvanu ljudskom aktivnošću, posle određenog perioda vremena, na "evropskom" tipu zemljišta, primenom pristupa formiranja čestičnog depozita, dolazi se do vrednosti koncentracije OU u vazduhu od  $6.2\text{ }\mu\text{Bq/m}^3$  ( $0.5\text{ ng/m}^3$ ), odnosno vrednosti  $0.295\text{ }\mu\text{Bq/m}^3$  ( $0.024\text{ ng/m}^3$ ) za primenu metode određivanja faktora resuspenzije. [2, 3].

Poredjenjem navedenih procenjenih vrednosti koncentracije OU u vazduhu sa realnim, vidi se da postoji neslaganje. Procenjene vrednosti bi tako više odgovarale stanju nakon završetka radova i smirivanja zemljišta odnosno uzorkovanju vazduha u uslovima kada nema ljudskih aktivnosti. Ovakvom zaključku doprinosi i rezultat  $0.81\text{ ng/m}^3$  za  $^{238}\text{U}$  u vazduhu, sa udelom 61 % OU, dobijen tokom sanacije druge kontaminirane lokacije [4] ili  $0.015\text{ ng/m}^3$  što je koncentracija  $^{238}\text{U}$  u vazduhu izmerena u Institutu Vinča.

Rezultati određivanja koncentracije uranijuma u vazduhu i njihovo neslaganje sa procenjenim vrednostima, pokazuju da je kontrola radioaktivnosti vazduha tokom radova na dekontaminaciji zemljišta neophodna. Dobijeni rezultati takodje ukazuju na potrebu primene adekvatnih mera lične i kolektivne zaštite ljudi, tokom izvođenja aktivnosti na kontaminiranom zemljištu, jer može doći do značajne resuspenzije čestica kontaminanta, u ovom slučaju OU. Po dospevanju u vazduh, radionuklidi koji su najčešće u obliku nerastvornih oksida, mogu se vezati za druge prisutne komponente atmosferskog aerosola, kao što su čestice mikroelemenata i minerala iz zemljišta, vodena para, joni  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ , organski i elementarni ugljenik, metan i drugi organski molekuli. Na ovaj način se formiraju asocijacije malih dimenzija (ispod  $50\text{ }\mu\text{m}$  u prečniku) a često i oko  $1\text{ }\mu\text{m}$  [5], koje se u vazduhu mogu zadržati veoma dugo a ukoliko se inhalacijom unesu u organizam, mogu se deponovati u respiratornim organima i dovesti do ozbiljnog narušavanja zdravlja.

#### **4. Zaključak**

Rezultati određivanja koncentracija radionuklida (OU) u vazduhu usled resuspenzije sa tla tokom aktivnosti na dekontaminaciji zemljišta, pokazuju više vrednosti u odnosu na procenjene koncentracije primenom modela formiranja čestičnog depozita i određivanjem faktora resuspenzije, te je potrebno obezbediti kontinualni monitoring radioaktivnosti vazduha, adekvatnu primenu mera zaštite i medicinski nadzor radnika.

#### **5. Napomena**

Rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja u okviru projekta br. III43009.

## 6. Literatura

- [1] The Royal Society: The health hazards of depleted uranium munitions, Part II. 2001. The Royal Society, Oxford, London
- [2] M. Radenković, Uticaj kontaminacije uranijumom na radiološke i hemijske karakteristike ekosistema. 2008. Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu
- [3] Army Environmental Policy Institute (AEPI): Health and Environmental Consequences of Depleted Uranium Use in the US Army: Techn. Report. 1995. Atlanta, USA.
- [4] M. Radenković, T. Andjelić, M. Kovačević, P. Vukotić, Depleted uranium in the air during the clean-up operations at Cape Arza, *J.Serb.Chem.Soc.* 69(12) (2004) 1159-1161.
- [5] Danesi, P.R., et al. Depleted uranium particles in selected Kosovo samples. *J. Environ.Radioact.* 64 (2003), 143-154.

### AIR CONTAMINATION DUE TO RADIONUCLIDES RESUSPENSION

**Mirjana RADENKOVIĆ<sup>1</sup>, Branka DJUROVIĆ<sup>2</sup> and Šćepan MILJANIĆ<sup>3</sup>**

- 1) *Univerisity of Belgrade, VINCA Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, Serbia, mirar@vinca.rs*
- 2) *Military Medical Academy, Faculty of Medicine MMA Univesity of Defence, Belgrade, Serbia, djurovic.branka@gmail.com*
- 3) *Univerisity of Belgrade, Faculty of Physical Chemistry, Belgrade, Serbia, epan@ffh.bg.ac.rs*

#### ABSTRACT

Results of the assesment of enhanced concentrations of radionulides in the air, due to resuspension of material from the contaminated soil, by application of two approaches: dust-loading approach and by the resuspension factor determination, are presented in the paper. Comparison of obtained results ( $0.295 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  i  $6.2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , respectively) with results of depleted uranium content ( $0,43\text{-} 602 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ) determined by alpha spectrometry in atmospheric aerosol samples collected during the clean-up activities at the area contaminated with depleted uranium had shown significant discrepancy between results and indicated the posibility of much higher levels of air contamination due to resuspension in real conditions than predicted. Results of depleted uranium share in the total uranium amount (up to 89%) in the aerosol samples are indicating high level of resuspension. Taking into account that aerodinamic diametar of the most suspended particles may be very small (about  $1\mu\text{m}$ ), those may enter and be deposited into the respiratory organs by inhalation, planing of the clean up activities have to be done carefully and with strict application of personal and collective safety measures. Continious air monitoring and occupational health control must be provided.

## СИСТЕМАТСКО ИСПИТИВАЊЕ САДРЖАЈА РАДИОНУКЛИДА У ГРАЂЕВИНСКОМ МАТЕРИЈАЛУ У ТОКУ 2014.ГОДИНЕ

**Софија ФОРКАПИЋ, Јан ХАНСМАН, Душан МРЂА, Кристина БИКИТ,  
Иштван БИКИТ**

*Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет, Нови Сад,  
Србија, sofija@df.uns.ac.rs*

### САДРЖАЈ

*Програмом систематског испитивања садржаја радионуклида у грађевинском материјалу који је прописала Агенција за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије предвиђено је да се са стоваришта грађевинског материјала и из малопродајних радњи сакупе најчешће коришћени производи првенствено домаћег порекла, а уколико таквих нема, пореклом из увоза. Према врсти грађевински материјали предвиђени за испитивање садржаја радионуклида се могу поделити у две категорије: структурни материјал: бетон-блок, цигла, цреп, гипс, цемент, песак, шљунак, пепео и шљака и прекривни материјали: гранит, камен, мермер, керамичке плочице/подне, керамичке плочице/зидне. Лабораторија за испитивање радиоактивности узорака и дозе јонизујућег и нејонизујућег зрачења, Природно-математичког факултета у Новом Саду је у току октобра и новембра 2014. године извршила узорковање 57 узорака грађевинског материјала горе поменутих категорија са стоваришта и из малопродајних радњи и након одговарајуће припреме узорака гама-спектрометријском методом одредила садржај радионуклида у узорцима грађевинског материјала. У раду су приказане и дискутоване измерене концентрације активности радионуклида у узоркованом грађевинском материјалу са израчунатим гама индексима за ентеријер и екстеријер.*

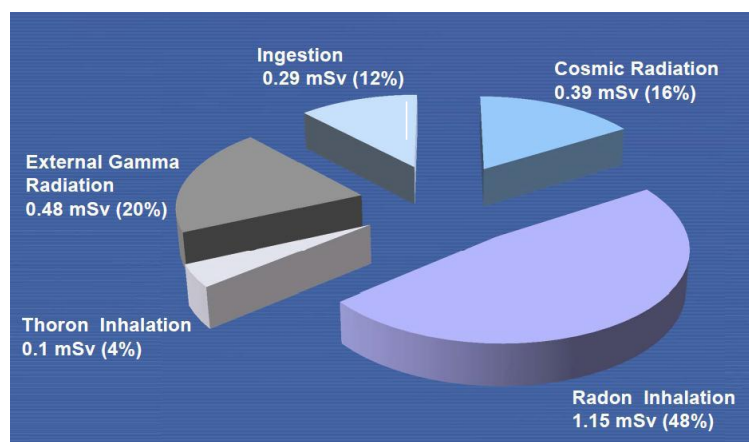
### 1. Увод

Истраживања вршена последње деценије показују да у нормалним условима преко 70% укупне годишње дозе коју прима становништво потиче од природних извора јонизујућих зрачења, при чему је 40% условљено удисањем природног радиоактивног гаса, радона односно његових потомака, слика 1. Поред радона од природних извора јонизујућег зрачења велики допринос дози дају и примордијални радионуклиди (15%) присутни у стенама, земљишту и грађевинским материјалима и космичко зрачење (13%). Сем наведених извора највећи удео у излагању становништва јонизујућем зрачењу имају извори јонизујућег зрачења у медицини (дијагностика и терапија - преко 30%), док су мање значајни извори у индустрији и јавној употреби (нивомери, громобрани, јављачи пожара итд.).

Вероватноћа да појединац доживи одређени штетни ефекат као резултат излагања јонизујућем зрачењу, радијациони ризик, одређује се преко дозе - физичке величине која служи као квантитативна мера нивоа излагања јонизујућем зрачењу. Повећан радијациони ризик може се јавити услед:

1. екстерног (спољашњег) озрачивања, када се извор зрачења налази изван организма и
2. интерног (унутрашњег) озрачивања, када извори јонизујућих зрачења доспевају у организам на следећи начин:

- инхалацијом (доминантно радон и његови потомци) и
- ингестијом - уношењем у организам путем дугог ланца исхране (земљиште-биљке-животиње-човек).



Слика 1. UNSCEAR2008: Расподела годишње дозе које прима становништво од излагања природним изворима јонизујућег зрачења [1]

У нашој земљи препоруке и норме међународних организација су имплементирани у Закону о заштити од јонизујућих зрачења и о нуклеарној сигурности (Службени гласник Републике Србије бр. 36/2009) из кога произилази Правилник о границама излагања јонизујућим зрачењима и мерењима ради процене нивоа излагања јонизујућим зрачењима (Службени гласник РС бр. 86/2011.) у циљу процене степена индивидуалне изложености становништва јонизујућим зрачењима. На основу овог Правилника неопходно је одређивање укупне ефективне дозе  $E$  која представља квантитативну меру укупног излагања јонизујућем зрачењу услед наведених могућности озрачивања:

$$E = H_p(d) + \sum_j e(g)_{j,ing} I_{ing} + \sum_j e(g)_{j,inh} I_{inh} \quad (1)$$

где је  $H_p(d)$  индивидуална екстерна доза,  $e(g)_{j,ing}$  и  $e(g)_{j,inh}$  очекиване ефективне дозе по јединичном уношењу за радионуклид ( $j$ ) унет храном или удисањем за појединца у старосној групи ( $g$ ).

Препорукама Међународне комисије за заштиту од зрачења ICRP (Публикација 103, 2007) снижава се граница годишње дозе за професионалце на 20 mSv/год усредњено на период од 5 год. (максимално годишње 50 mSv). За појединце из становништва граница годишње дозе је 1 mSv/год са максималним излагањем од 5 mSv током једне године, под условом да се не прекорачи средња годишња вредност од 1 mSv током 5 година. Контрола радиоактивности грађевинског материјала се заснива на ограничавању дозе од спољашњег излагања на 0,3 mSv годишње [2], [3].

Радиоактивност грађевинског материјала зависи од минерала који су коришћени за његову производњу (нпр. неки гранит и алуминијумски шкриљац имају повишен садржај природних радионуклида). Границе радиоактивне контаминације грађевинског материјала који се употребљава у високој градњи за ентеријер у нашој земљи регулисане су законом и износе:

за радијум ( $^{226}\text{Ra}$ ) –  $3 \cdot 10^2 \text{ Bq/kg}$ ;

за торијум ( $^{232}\text{Th}$ )- $2 \cdot 10^2$  Вq/kg;  
за калијум ( $^{40}\text{K}$ ) –  $3 \cdot 10^3$  Вq/kg.

Гама индекс за грађевинске материјале (Правилник о границама садржаја радионуклида у води за пиће, животним намирницама, сточној храни, лековима, предметима опште употребе, грађевинског материјала и другој роби која се ставља у промет „Службени гласник РС“, бр. 86/11 и 97/13) мора бити мањи од 1 и израчунава се на следећи начин:

$$I = \frac{C_{Ra}}{300} + \frac{C_{Th}}{200} + \frac{C_K}{3000} \quad (2)$$

где су:  $C_{Ra}$ -концентрација радијума ( $^{226}\text{Ra}$ ) у Вq/kg;  $C_{Th}$ -концентрација торијума ( $^{232}\text{Th}$ ) у Вq/kg;  $C_K$ - концентрација калијума ( $^{40}\text{K}$ ) у Вq/kg.

Границе радиоактивне контаминације грађевинског материјала који се користи у високој градњи за екстеријер износе:

за радијум ( $^{226}\text{Ra}$ ) –  $4 \cdot 10^2$  Вq/kg;  
за торијум, ( $^{232}\text{Th}$ ) - $3 \cdot 10^2$  Вq/kg;  
за калијум ( $^{40}\text{K}$ ) –  $5 \cdot 10^3$  Вq/kg.

Гама индекс за грађевинске материјале мора бити мањи од 1 и израчунава се на следећи начин:

$$I = \frac{C_{Ra}}{400} + \frac{C_{Th}}{300} + \frac{C_K}{5000} \quad (3)$$

Границе радиоактивне контаминације грађевинског материјала који се користи у нискоградњи као подлога за путеве, игралишта и осталу нискоградњу (испод слоја за прекривање) тако да не утиче на повећање јачине апсорбоване дозе гама зрачења у ваздуху износе:

за радијум ( $^{226}\text{Ra}$ ) –  $7 \cdot 10^2$  Вq/kg;  
за торијум ( $^{232}\text{Th}$ )- $5 \cdot 10^2$  Вq/kg;  
за калијум ( $^{40}\text{K}$ ) –  $8 \cdot 10^3$  Вq/kg.

Гама индекс за грађевинске материјале мора бити мањи од 1 и израчунава се на следећи начин:

$$I = \frac{C_{Ra}}{700} + \frac{C_{Th}}{500} + \frac{C_K}{8000} \quad (4)$$

## 2. Програм испитивања и метода мерења

Испитивање садржаја радионуклида у грађевинском материјалу у Републици Србији спроводи се према Закону о заштити од јонизујућих зрачења и нуклеарној сигурности („Службени гласник РС 36/09 и 93/12) и Правилнику о границама садржаја радионуклида у води за пиће, животним намирницама, сточној храни, лековима, предметима опште употребе, грађевинског материјала и другој роби која се ставља у промет („Службени гласник РС“, бр. 86/11 и 97/13).

Систематско испитивање садржаја радионуклида у грађевинском материјалу током 2014.године је спроведено у складу са Уговором између Агенције за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Републике Србије и Природно-математичког факултета у Новом Саду за набавку услуга– јавна набавка мале вредности бр. 04/14 ЈНМВ (уговор бр. 404-02-8/7/2014-07 од 7.10. 2014.године). Мерење и анализу резултата извршила је акредитована Лабораторија за испитивање радиоактивности узорака и дозе јонизујућег и нејонизујућег

зрачења на Природноматематичком факултету у Новом Саду. Програм испитивања у складу са тендерском документацијом је приказан у табели 1.

**Табела 1. Елементи за израду програма испитивања садржаја радионуклида у грађевинском материјалу**

Врста узорка	Врста испитивања	Место узорковања	Укупан број узорка
<b>СРУКТУРНИ МАТЕРИЈАЛ</b>			
Бетон-блок	Гамаспектрометријско испитивање садржаја радионуклида	Стоваришта грађевинског материјала; малопродајне радње	5
Цигла			5
Цреп			3
Гипс			3
Цемент			3
Песак			4
Шљунак			4
Пепео и шљака			4
<b>ПРЕКРИВНИ МАТЕРИЈАЛИ</b>			
Гранит	Гамаспектрометријско испитивање садржаја радионуклида	Стоваришта грађевинског материјала; малопродајне радње	6
Камен			6
Мермер			4
Керамичке плочице-подне			5
Керамичке плочице-зидне			5

Узорци грађевинског материјала су узети по методи IAEA Technical Report Series No.295 – Measurement of Radionuclides in Food and the Environment. Узорци грађевинског материјала су механички уситњени до форме праха и хомогенизовани. Материјал припремљен на овај начин је пренет посуде за мерење облика цилиндра висине 62 mm и пречника 67 mm. Типична маса узорака износила је између 200 g и 300 g. Концентрација активности радионуклида одређена је методом нискофонске гама-спектрометрије.



**Слика 2. HPGe спектрометар произвођача Canberra у нискофонској заштити од гвожђа**

Гама-спектрометријска мерења су извршена према стандардној методи IAEA Technical Report Series No.295. Коришћена су три високорезолуциона HPGe детектора. Први од њих, произвођача CANBERRA номиналне ефикасности од 36% има моћ разлагања од 1.9 keV-а на 1332 keV. Детектор је смештен у специјалну нискофонску заштитну комору са оловним зидовима дебљине 12 cm и бакарним унутрашњим слојем. Други HPGe детектор, номиналне ефикасности 22% је смештен у специјалну нискофонску заштитну комору са гвозденим зидовима дебљине 25 cm (Слика 2). Комора је израђена од гвожђа ливеног пре другог светског рата, тако да не садржи примесе вештачке радиоактивности и снижава ниво околног зрачења за око 1000 пута. Спектри су преко ланца предпојачавача и појачавача типа CANBERRA доведени у вишеканални анализатор CANBERRA са два аналогно-дигитална конвертора и укупне меморије од 8192 канала. Вишеканални анализатор је директно повезан са РС рачунаром у којем су обрађивани и сторирани измерени спектри. За обраду спектра коришћена је верзија програма GENIE која осим идентификованих гама-линија увек исказује спектралне интензитете и за више од 30 изабраних изотопа. За гама-спектрометријска мерења радиоактивности у узорцима земљишта коришћен је и ултра ниско-фонски германијумски детектор типа GMX (са проширеним енергетским опсегом од 10 keV до 3 MeV-а произвођача ORTEC, номиналне ефикасности 32% у пасивној и активној заштити. Пасивна заштита је израђена од олова дебљине 12 cm у облику цилиндра и пресвучена слојем калаја и бакра. Активна заштита (вето детектори) су пет сцинтилационих пластичних детектора који су у антикоинцидентном режиму рада са HPGe детектором и у потпуности прекривају пасивну заштиту. Активна заштита снижава интегрални одброј у фону за фактор 3 за опсег од 50 keV-а до 2800 keV-а, што снижава праг детекције и погодно је за мерења узорака из животне средине.

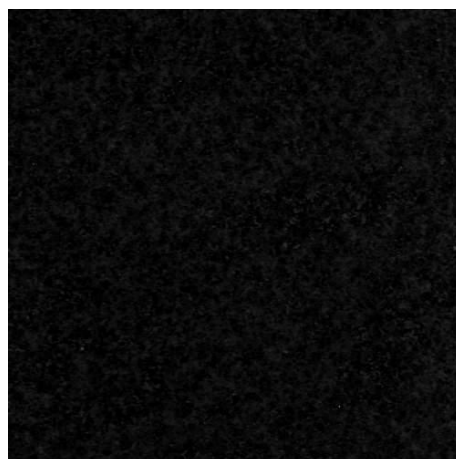
### **3. Резултати систематског испитивања садржаја радионуклида у грађевинском материјалу**

Резултати одређивања садржаја радионуклида - гама емитера у узорцима грађевинског материјала су према категоријама материјала дати у табели 2. Систематика овог испитивања је приказана у табели преко опсега концентрација активности за детектоване природне радионуклиде – гама емитере и гама индекса за ентеријер и екстеријер. Представљене су само концентрације дугоживећих природних радионуклида  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  измерене у узорцима грађевинског материјала. Од структурних материјала испитани су бетонски блокови који су узети са градилишта у Новом Саду. За израду ових блокова коришћени су домаћи материјали: цигла, песак и цемент из цементаре LAFARGE у Беочину. Испитано је пет узорака цигле из домаћих циглана који су коришћени за зидање стамбених објеката на градилиштима у Новом Саду. Поред тога испитан је и узорак итонг блока домаћег произвођача Вреоци. Такође су узорковани различити црепови домаћих произвођача који су коришћени на градилиштима у Новом Саду или се могу купити на стовариштима грађевинског материјала: цреп Тоza Марковић Кикинда и сиви цреп Кањижа. Испитан је садржај радионуклида у најчешће коришћеном цементу уз поређење измерених вредности за цемент домаћег произвођача и за цемент из увоза. Дати су резултати испитивања садржаја радионуклида у узорцима шљунка и песка домаћег порекла, док су узорци пепела

и шљаке доминантно из увоза и користе се као адитиви за цемент или за изолацију у грађевинарству. На стовариштима и у продајним салонима уз консултацију са продавцима које се плоче и прекривни материјали најчешће користе набављени су узорци чији ја садржај радиоактивности испитан. Није детектовано присуство произведених – вештачких радионуклида, приказане су концентрације природних радионуклида са израчунатим гама индексом за ентеријер и екстеријер.



CIELO DE MARFIL



INDIA DARK

Слика 3. Узорци гранита најчешће коришћени као прекривни материјали

Табела 2. Резултати систематског испитивања садржаја радионуклида у грађевинском материјалу у току 2014.

Врста узорка (број узорака)	Опсег [Bq/kg]			Опсег [Bq/kg]	
	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th	<sup>40</sup> K	Гама индекс (за ентеријер)	Гама индекс (за екстеријер)
<b>СТРУКТУРНИ МАТЕРИЈАЛИ:</b>					
Бетон-блок (5)	8-48	8,6-41,5	179-630	0,17-0,54	0,11-0,36
Цигла (5)	297-47,7	26,1-46	316-620	0,143-0,58	0,094-0,39
Цреп (3)	22,1-46,2	13,2-42,2	47-650	0,16-0,58	0,11-0,39
Гипс (3)	7-21	6	34-80	0,07-0,13	0,05-0,09
Цемент (4)	5-104	3-32	32-350	0,04-0,51	0,03-0,36
Песак(4)	4-37	2-24	30-280	0,04-0,33	0,03-0,23
Шљунак (4)	4-24	3-14	40-390	0,03-0,28	0,02-0,19
Пепео и шљака (4)	11-52	4-29	30-300	0,07-0,42	0,05-0,29
<b>ПРЕКРИВНИ МАТЕРИЈАЛИ:</b>					
Гранит (6)	14-191	3-65	122-1430	0,12-1,35	0,08-0,92
Камен (6)	9-49	28-45	35-1020	0,04-0,72	0,03-0,47
Мермер (4)	6-37	5-17	40-250	0,08-0,35	0,06-0,23
Керамичке плочице-подне (5)	12,8-104	7,9-89	268-950	0,17-1,11	0,11-0,75
Керамичке плочице-зидне (5)	28-119	37-69	470-1450	0,60-0,92	0,39-0,60



#### **4. Закључак и дискусија резултата**

На основу приказаних резултата може се закључити да у узорцима грађевинског материјала доминира природна радиоактивност. У скоро свим испитаним узорцима гама индекси за унутрашњу и за спољашњу употребу грађевинских материјала не прелазе граничну вредност 1 што значи да је са аспекта радиоактивности безбедно користити дате материјале у грађевинарству за изградњу станова. Најнижи садржај радионуклида показују узорци гипса, песка и шљунка од структурних материјала и узорци мермера од прекривних материјала. Највиши садржај радионуклида показују неки узорци гранита и керамичких плочица. У једном узорку подних плочица домаћег порекла гама индекс за ентеријер прелази граничну вредност 1 што само потврђује чињеницу да је неопходно контролисати радиоактивност грађевинског материјала и то не само при увозу или извозу, него и у домаћој производњи. Поред узорака цигле испитан је и садржај радионуклида итонг блока домаћег произвођача и утврђен је нижи ниво радиоактивности у односу на цигле што је у сагласности са тврдњама произвођача. У јавности је постојала сумња око повишеног нивоа радиоактивности овог производа због претпоставке да се у изради ових блокова користе алуминијумски шкриљци. Добијени резултати и велика одступања у гама индексима код појединих материјала (гранит, керамичке плочице) потврђују да се пажљивијом селекцијом грађевинског материјала радијациони ризик од спољашњег озрачивања у становима може смањити.

#### **5. Literatura**

[1] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Ionizing Radiation: Sources and Effects, UNSCEAR 2008 REPORT, VOLUME II, 2008. United Nations, New York.

[2] Radiation Protection 112: Radiological Principles concerning the Natural Radioactivity of Building Materials 1999, European Commission Directorate-General Environment. Nuclear Safety and Civil Protection

[3] EC, 1997: Radiation Protection 88. Recommendations for implementation of Title VII of the European Basic Safety Standards concerning significant increase in exposure due to natural radiation sources. European Commission. Office for Official Publications of the European Commission. Radiation Protection Series.

## RESULTS OF THE FIRST RADIOACTIVITY MONITORING OF BUILDING MATERIALS IN SERBIA 2014

**Sofija FORKAPIĆ, Jan HANSMAN, Dušan MRĐA, Kristina BIKIT, Ištvan BIKIT**

*Laboratory for Radioactivity and Dose Measurements, Department of Physics, Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Novi Sad, Serbia  
sofija@df.uns.ac.rs*

### ABSTRACT

*Schedule of Radioactivity monitoring of building materials which is proposed by Serbian Radiation Protection and Nuclear Safety Agency considers samples of mostly used building materials taken from warehouses and stores or if it is not possible originated from the import. Two categories of buildings materials are selected for radioactivity investigation: structural materials: concrete block, brick, tile, plaster, cement, sand, gravel, ash and slag and coating materials: granite, stone, marble, ceramic tile/flooring, ceramic tiles/wall. Laboratory for Radioactivity and Dose Measurements at the Faculty of Sciences in Novi Sad was performed sampling of 59 buildings materials mentioned categories from warehouses or stores and after adequate preparation determined radionuclide content of samples by gamma spectrometry method. In this paper the obtained results of radionuclide activity concentrations of sampled building materials with calculated gamma index for interior and exterior are shown and discussed.*

## НАЦИОНАЛНИ ПРОГРАМ МЕРЕЊА РАДОНА У СРБИЈИ

**Владимир УДОВИЧИЋ<sup>1</sup>**, **Димитрије МАЛЕТИЋ<sup>1</sup>**, **Маја ЕРЕМИЋ САВКОВИЋ<sup>2</sup>**,  
**Гордана ПАНТЕЛИЋ<sup>3</sup>**, **Предраг УЈИЋ<sup>3</sup>**, **Игор ЧЕЛИКОВИЋ<sup>3</sup>**, **Софија**  
**ФОРКАПИЋ<sup>4</sup>**, **Драгослав НИКЕЗИЋ<sup>5</sup>**, **Владимир МАРКОВИЋ<sup>5</sup>**, **Весна**  
**АРСИЋ<sup>6</sup>**, **Јована ИЛИЋ<sup>6</sup>**

- 1) *Институт за физику Београд, Универзитет у Београду, Београд, Србија, udovicic@ipb.ac.rs*
- 2) *Агенција за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије, Београд, Србија*
- 3) *Институт за нуклеарне науке Винча, Универзитет у Београду, Београд, Србија*
- 4) *Природно-математички факултет, Универзитет у Новом Саду, Нови Сад, Србија*
- 5) *Природно-математички факултет, Универзитет у Крагујевцу, Крагујевац, Србија*
- 6) *Институт за медицину рада Србије “Др Драгомир Карајовић”, Београд, Србија*

### САДРЖАЈ

*Допринос радона укупном излагању становништва је највећи и представља најважнији извор јонизујућих зрачења међу онима који су природног порекла. Велики број земаља у свету посвећује посебну пажњу проблему радона и у већини су успостављени национални програми за радон. У Србији је 2014. године започео рад на изради и имплементацији ефикасног националног акционог плана за радон који за циљ има заштиту и смањење ризика изложености становништва радону у затвореним просторијама. Овај акциони план захтева рад многих националних агенција, институција и других заинтересованих страна, укључујући и националне, регионалне и локалне организације одговорне за јавно здравље и заштиту од зрачења. На почетку, пројектовање и реализација прве националне проспекције радона у боравишним просторијама у Србији је од пресудног значаја. Предложени дизајн је представљен у овом раду.*

### 1. Увод

У најновијим препорукама Међународне агенције за атомску енергију (МААЕ) [1] и директивама ЕУ [2] које се односе на област заштите од зрачења, проблем радона је добио већи простор и значај будући да је Светска Здравствена Организација идентификовала радон као другог највећег узрочника канцера плућа. У члану 103. документа [2] посебно се наглашава обавеза земаља чланица ЕУ да донесу и имплементирају национални акциони план за радон, који се дефинише у посебном анексу XVIII. Анекс XVIII садржи 14 елемената као својеврстан водич за припрему акционог плана. У том смислу, у Србији је средином 2014. године отпочео рад на изради и примени националног акционог плана (НАП-а) за радон. Као институција која ће координирати НАП одређена је Агенција за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије (СРПНА). У оквиру СРПНА-е формирана је радна група за радон која је састављена од представника научно-истраживачких и високо образовних институција, које су се у свом истраживачком

раду бавиле радоном, са циљем да обезбеди техничку и стручну подршку у примени НАП-а и спровођењу прве националне проспекције радона у Србији, евалуацији добијених резултата и предлагању мера за редукацију радона у боравишним и радним срединама у Србији. Први велики задатак у оквиру израде НАП-а је добијање прве националне мапе радонског ризика у Србији. Предложени дизајн је представљен у овом раду, као и приказ досадашњег рада на изради НАП-а за радон.

## 2. Национални акциони план за радон

У мају 2014. године у Институту за физику у Београду одржан је Радон Форум, као састанак стручњака који су се бавили радоном као истраживачком темом. На том скупу је одлучено да се проблематици радона приђе на један системски и свеобухватан начин. Као институција која ће координирати националним програмом за радон у Србији одређена је СРПНА. У оквиру СРПНА-е формирана је радна група за радон. У радној групи су ангажовани представници следећих научно- истраживачких институција:

1. Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет, Департман за физику, Катедра за нуклеарну физику, Нови Сад [3], [4], [5]
2. Универзитет у Београду, Институт за нуклеарне науке Винча, Београд:
  - *Лабораторија за нуклеарну и плазма физику* [6], [7], [8]
  - *Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине „Заштита“* [9], [10]
3. Универзитет у Београду, Институт за физику Београд [11], [12], [13]
4. Институт за медицину рада Србије „Др Драгомир Карајовић“, Центар за радиолошку заштиту, Београд [14], [15]
5. Универзитет у Крагујевцу, Природно-математички факултет Крагујевац, Институт за физику [16], [17].

Организациона структура НАП-а за радон у Србији је приказана на слици 1.



Слика 1. Организациона структура НАП-а за радон у Србији

С обзиром да се ради о мултидисциплинарном пројекту на националном нивоу, неопходна је подршка и координација са државним институцијама и надлежним министарствима које се баве заштитом животном средином, здрављем, грађевином, образовањем. До сада је добијена подршка већине од надлежних министарстава, које ће у наредним фазама развијања НАП-а бити укључене у радну групу за радон, Слика 2.



Слика 2. Сарадња са надлежним министарствима у развоју НАП-а за радон у Србији

Отворен је интернет радон форум на адреси: [www.cosmic.ipb.ac.rs/radon\\_forum](http://www.cosmic.ipb.ac.rs/radon_forum), као простор где експерти из области радона могу размењивати идеје и планове везане за будућност националног радонског програма у Србији. Но, на самом почетку развоја НАП-а, као најважнији задатак за 2015. годину стоји рад на изради прве националне проспекције радона у боравишним просторијама у Србији.

### 3. Национална проспекција радона у Србији

СРПНА је у сарадњи са МААЕ и надлежним министарствима отпочела са програмом мапирања радона у боравишним просторијама у Србији. Национални програм мерења радона у Србији представља део техничке сарадње који Република Србија има са МААЕ под називом Унапређење регулаторне инфраструктуре и правног система. Циљ овог програма је одређивање радиолошке изложености радону у боравишним просторијама услед удисања овог гаса, као и да се пронађу подручја у Србији са високим концентрацијама, то јест подручја са високим радонским потенцијалом.

**Дизајн националне проспекције радона у Србији:** На основу светских искустава у дизајнирању проспекције радона на националном нивоу [18], издвајају се два основна типа:

- Расподела радонских дозиметара на основу густине насељености у држави, методом случајног одабира мерних места,

- Просторна расподела заснована на подели територије државе у мрежу чија појединачна ћелија има димензије  $10 \text{ km} \times 10 \text{ km}$ , или гушће. У оквиру једне ћелије потребно је имати минимално  $5 \pm 2$  мерних места. Након добијања резултата, узима се аритметичка средина података усредњених по броју мерних места по једној ћелији.

У пракси се углавном користи комбинација ова два основна типа проспекције радона у складу са могућностима, пре свега финансијским. Без обзира на дате околности, увек треба проверити колика је репрезентативност предложеног дизајна, базирана на подацима из последњег пописа становништва. У случају Србије урађен је груби прорачун минималног броја мерних места који би задовољио оба типа проспекције радона (Слика 3), који износи 3500 мерних места. Треба истаћи да је, обзиром на величину територије и број становника Србије, изабран метод стратификованог узорка где се користи административна подела Србије по управним регионима (Слика 3). Унутар радне групе за радон, утврђена је подела одговорности појединачних институција за дату групу управних региона.

Long Name	(A)	(B)	(C)	(D)	(E)	(F)	(G)	(H)	(I)
	DISTRICT	SEAT	AREA	POPULATION PER	Measuring Place/District	GRID 10*10 Km	MX		Secondary school/District
Units			km <sup>2</sup>	km <sup>2</sup>		Minimum 1 per measuring place			
1	BOR	Bor	2547	35,31	45	195	195	80	15
2	BRANČEVO	Pozarevac	3885	46,79	59	156	156	90	10
3	BEOGRAD	Beograd	3227	597,94	640	97	640	80	56
4	ZLATIBOR	Zajcar	3623	32,65	41	199	199	74	11
5	WEST BAČKA	Sekeš	2426	77,85	98	73	98	50	14
6	SLATINA	Utek	6140	46,45	59	194	194	75	22
7	JABLANICA	Leposavić	2789	77,81	98	83	98	75	17
8	SOUTH BANAT	Novi Sad	4245	68,63	87	127	127	74	19
9	SOUTH BAČKA	Novi Sad	4096	101,35	191	120	191	75	29
10	KOŠARSKA	Vajnski	2474	76,42	89	74	89	74	9
11	ŠABAC	Šabac	3288	81,12	115	96	115	74	18
12	MOŠAVAČKA	Čanak	2098	73,24	89	96	96	74	13
13	SRPSKA	Nis	2729	536,83	173	82	173	75	23
14	PIROT	Pivot	2781	33,42	42	83	83	75	10
15	PUNJKOVAČKA	Novi Sad	1248	158,89	201	37	201	75	11
16	PUNJKOVAČKA	Jagodina	2814	81,42	103	78	103	74	18
17	ČENČEVCI	Vrnjačka	3528	45,89	57	196	196	75	18
18	BAČKA	Novi Sad	2647	86,18	114	80	114	75	13
19	BAČKA	Novi Sad	2818	74,83	87	118	118	75	20
20	SOUTH BANAT	Novi Sad	2329	62,98	80	76	80	75	13
21	SOUTH BAČKA	Subotica	1784	104,81	131	54	131	75	12
22	CENTRAL BANAT	Zrenjanin	3358	57,39	73	96	96	75	10
23	SRBIA	Novi Sad	3486	89,23	113	195	113	75	20
24	TOPLICA	Prokupac	2271	46,85	51	87	87	75	10
25	HRANIK	Kragujevac	2367	121,87	154	72	154	75	18

Слика 3. Расподела минималног броја мерних места по управним регионима

Сви власници кућа и станова који желе да учествују у пројекту, а са циљем одређивања концентрације радона, попуњавају унапред дефинисан упитник на интернет страни <http://cosmic.ipb.ac.rs/radon/index.html> посвећене радону у Србији (слика 4). Тиме исказују заинтересованост да узму учешће у пројекту. Планом и програмом је предвиђено да дистрибуција детектора за радон почне у септембру 2015 и у процес дистрибуције детектора биће укључени професори и ученици. У марту 2016, детектори који су стајали шест месеци у кућама и становима шаљу се у овлашћену лабораторију која ће након пријема истих извршити њихову обраду и на тај начин ћемо добити прву националну мапу радонског ризика у Србији. Резултати мерења биће презентовани власницима кућа и станова у којима се вршило мерење. На основу добијених резултата, у случајевима када концентрација радона пређе тренутно актуелни интервентни ниво од  $200 \text{ Bq/m}^3$  за новоизграђене или  $400 \text{ Bq/m}^3$  за постојеће објекте, препоручиће се читав скуп мера које могу резултирати смањењем концентрације радона и самим тим

смањењем ризика од добијања рака плућа. Додатно, сви прикупљени подаци за целу Србију омогућиће одређивање референтног националног нивоа концентрације радона за Србију.

**Комуникациона стратегија:** С обзиром на слабу информисаност становништва о радону и његовим штетним утицајем на здравље људи, посебна пажња је посвећена информисаности и подизању свести становништва о проблему радона. У том смислу, покренута је интернет страна о радону која има и функцију да привуче што већи број људи да се укључе у пројекат националног мерења радона у боравишним просторијама (Слика 4). Поред тога, СРПНА и радна група за радон припремиле су популарна предавања о радону која се одржавају широм Србије (више о томе може се наћи на званичном сајту СРПНА-е, <http://www.srbatom.gov.rs/srbatom/>).



Слика 4. Интернет страна посвећена радону

Кампању мерења прате и штампани материјали у виду флајера и то два типа, један који даје генералне информације о радону и други који је својеврсни водич за тестирање кућа и станова у оквиру националног програма мерења радона у Србији (Слика 5).



Слика 5. Флајери о радону

#### 4. Закључак

Шири смисао Националне стратегије мерења радона у Србији, као и система заштите од штетног дејства овог радиоактивног гаса, обухватио би решавање смањења дугорочних ризика излагању радона у затвореном простору, анализу земљишта и грађевинског материјала који се користи у изградњи, као и мерама у спречавању уласка радона у новоизграђене објекте. Те мере могле би бити препознате као еколошки елементи градње у националним законима везаним за грађевинарство. Анализа добијених резултата у националном програму мерења радона у Србији, послужиће као полазна основа израде и имплементације националног акционог плана за радон.

#### 5. Literatura

- [1] Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards INTERIM EDITION, General Safety Requirements Part 3 (2011) [http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/p1531interim\\_web.pdf](http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/p1531interim_web.pdf).
- [2] Council Directive 2013/59/EURATOM of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing Directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom. *Official Journal of the European Union* 2014; L13., <http://www.srbatom.gov.rs/srbatom/doc/eu-direktive/2013%2059%20eng.pdf>.
- [3] S. Forkapić, I. Bikit, J. Slivka, Lj. Čonkić, M. Vesković, N. Todorović, E. Varga, D. Mrđa and E. Hulber. Indoor radon in rural dwellings of the South-Pannonian region. *Radiat. Prot. Dosim.* 123 (2006) 378-383.
- [4] Jovana Nikolov, Natasa Todorovic, Istvan Bikit, Tanja Petrovic, Pantic, Sofija Forkapic, Dusan Mrda and Kristina Bikit: Radon in Thermalwaters in South-East Part of Serbia. *Radiat. Prot. Dosim.* 160 (2014) 239-243.
- [5] Todorović, N., Bikit, I., Vesković, M., Krmar, M., Mrđa, D., Forkapić, S., Hansman, J., Nikolov, J., Bikit, K.: Radioactivity in the indoor building environment in Serbia. *Radiat. Prot. Dosim.* 158 (2014) 208-215.
- [6] Zunic et al. High variability of indoor radon concentrations in uraniferous bedrock



- areas in the Balkan region. *Appl. Radiat. Isot.* 94 (2014) 328-337.
- [7] P. Ujić, I. Čeliković, A. Kandić, Z. Žunić. Standardization and difficulties of the thoron exhalation rate measurements using an accumulation chamber. *Radiat. Meas.* 43(8) (2008) 1396-1401.
- [8] F. Bochicchio, Z. S. Žunić, C. Carpentieri, S. Antignani, G. Venoso, V. Carelli, C. Cordedda, N. Veselinović, T. Tollefsen, P. Bossew. Radon in indoor air of primary schools: a systematic survey to evaluate factors affecting radon concentration levels and their variability. *Indoor Air.* 24 (2014) 315–326.
- [9] Pantelić G, Živanović M, Eremić Savković M., Forkapić S. Radon concentration intercomparison in Serbia, *Proceedings of the ninth symposium of the Croatian Radiation Protection Association*; Eds. Ž. Knežević, M. Majer, I. Krajcar-Bronić, 10.-12. April 2013. Krk, Croatia, ISBN 978-953-96133-8-7, CRPA Zagreb, 2013, 193-198.
- [10] G. Pantelić, M. Eremić Savković, M. Živanović, J. Nikolić, M. Rajačić, D. Todorović. Uncertainty evaluation in radon concentration measurement using charcoal canister. *Appl. Radiat. Isot.* 87 (2014) 452-455.
- [11] Udovičić V., Aničin I., Joković D., Dragić A., Banjanac R., Grabež B., Veselinović N. Radon Time-series Analysis in the Underground Low-level Laboratory in Belgrade, Serbia. *Radiat. Prot. Dosim.* 145(2-3) (2011) 155-158.
- [12] R. Banjanac, A. Dragić, B. Grabež, D. Joković, D. Markushev, B. Panić, V. Udovičić, I. Aničin, Indoor Radon Measurements by Nuclear Track Detectors: Applications in Secondary Schools. *Facta Universitatis* 4 (2006) 93-100.
- [13] Dimitrije M. MALETIĆ, Vladimir I. UDOVIČIĆ, Radomir M. BANJANAC, Dejan R. JOKOVIĆ, Aleksandar L. DRAGIĆ, Nikola B. VESELINOVIĆ, and Jelena Z. FILIPOVIĆ. Comparison of Multivariate Classification and Regression Methods for the Indoor Radon Measurements. *Nucl. Technol. Radiat. Prot.* XXIX(1) (2014) 17-23.
- [14] Eremić-Savković M, Pantelić G, Tanasković I, Vuletić V, Javorina Lj, Concentration of radon in apartments on the territory of Belgrade in period 1997-2001. *Arch. Toxic. Kinet. Xenobiot. Metab.* - Belgrade, 10(1-2) (2002) 195-197.
- [15] V. Arsić, J. Ilić, S. Bogojević, I. Tanasković, M. Eremić-Savković, Lj. Javorina. Assessment of the Effective Radon Dose, Measured in Schools and Kindergartens in Belgrade During 2012 and 2013, *Proceedings of Second East European Radon Symposium (SEERAS)*, pp. 17-20, Niš Serbia, May 27 – 30 2014.
- [16] Stevanovic, N., Markovic V., Nikezic D. Relationship between deposition and attachment rates in Jacobi room model. *J- Environ. Radioact.* 101(5) (2010) 349-352.
- [17] Jovanovic B., Nikezic D., Stevanovic N. Applied mathematical modeling for calculating the probability of the cell killing per hit in the human lung. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 290(3) (2011) 607-613.
- [18] National and Regional Surveys of Radon Concentration in Dwellings: Review of Methodology and Measurement Techniques, *IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series* 33 (2014). [http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/IAEA-AQ-33\\_web.pdf](http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/IAEA-AQ-33_web.pdf).

## NATIONAL INDOOR RADON SURVEY PROGRAMME IN SERBIA

**Vladimir UDOVIČIĆ<sup>1</sup>, Dimitrije MALETIĆ<sup>1</sup>, Maja EREMIĆ SAVKOVIĆ<sup>2</sup>,  
Gordana PANTELIĆ<sup>3</sup>, Predrag UJIĆ<sup>3</sup>, Igor ČELIKOVIĆ<sup>3</sup>, Sofija FORKAPIĆ<sup>4</sup>,  
Dragoslav NIKEZIĆ<sup>5</sup>, Vladimir MARKOVIĆ<sup>5</sup>, Vesna ARSIĆ<sup>6</sup>, Jovana ILIĆ<sup>6</sup>**

- 1) *Institute of Physics, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*
- 2) *Serbian Radiation Protection and Nuclear Safety Agency, Belgrade, Serbia*
- 3) *Vinča Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*
- 4) *Faculty of Science, University of Novi Sad, Novi Sad, Serbia*
- 5) *Faculty of Science, University of Kragujevac, Kragujevac, Serbia*
- 6) *Serbian Institute of Occupational Health "Dr Dragomir Karajović", Belgrade, Serbia*

### ABSTRACT

*Radon contribution to the overall public exposure is the greatest and represents the most important source of ionizing radiation among those that are of natural origin. The large number of the countries in the world pays special attention to the radon problem and the most of them have established national radon programmes. The establishing and implementation of an effective radon action plan, aimed to protect the public against indoor radon exposures in Serbia started in 2014.. This action plan requires input from many national agencies, institutions and other stakeholders, also include the national, regional and local organizations responsible for public health and radiation protection. At the beginning, design and realization of the first national indoor radon survey are of the crucial importance. The proposed design is presented in this work.*

# **RADON MEASUREMENTS AS PART OF SLOVENIAN NATIONAL PROGRAM OF SYSTEMATIC INVESTIGATION OF NATURAL RADIATION IN WORKING AND LIVING ENVIRONMENTS**

**Peter JOVANOVIČ**

*Institute of Occupational Safety, Chengdujska Street 25, 1260 Ljubljana – Polje, Slovenia*

## *Abstract*

*Regarding radiation protection regulations in Slovenia measurements of natural radiation in public institutions have to be done by accredited laboratory. Ministry of health started measurements of radon concentrations in schools and kindergartens twenty years ago. Monitoring is continuing and in last ten years 807 measurements of radon concentrations in public buildings by track each detectors were done. Radon concentrations in fifty eight kindergartens and schools and seventeen other public institutions were higher than proposed by regulations, 400 Bq/m<sup>3</sup> for schools and kindergartens and 1000 Bq/m<sup>3</sup> for other institutions. For those institutions special monitoring of radon concentrations in rooms, cracks and soil was carried out. After measurements dose assessment was done and remediation actions proposed. Concerning results of radon concentration measurements we can conclude, karst area and central southern part of Slovenia with limestone, marl and conglomerate as a main geological structure represent a strong radon source. Old buildings with cracks in the floor make a great possibility for radon entering rooms.*

## **1. Introduction**

Regarding radiation protection regulations in Slovenia [1] measurements of natural radiation in public buildings have to be done by accredited laboratory [2] to determine those with elevated radon concentrations. Ministry of health started measurements of radon concentrations in schools and kindergartens twenty years ago. Almost all kindergartens and schools were included in monitoring [3]. In kindergartens and schools with very high radon concentration measurements were repeated and objects remediate if needed. Monitoring is continuing and in last ten years 807 measurements of radon concentrations in public buildings by track each detectors were done [4]. Radon concentrations in fifty eight kindergartens and schools and seventeen other public institutions were higher than proposed by regulations, 400 Bq/m<sup>3</sup> for schools and kindergartens and 1000 Bq/m<sup>3</sup> for other institutions. For those institutions special monitoring was carried out. We did measurements by electronic devices in the period of one week to determine radon and radon progeny concentrations. In case of high radon concentration in rooms also radon concentrations in cracks and water or electricity installations in the basement were measured. In special cases radon concentration in soil near building was measured. After measurements dose assessment was done and remediation actions proposed.

## **2. Measuring methods**

Regarding the program determined by the ministry of health measurements of radon and/or daughter concentrations on different locations were taking into account. First measurements were always performed by track each detectors. After the inspection of the building one or more detectors were placed in rooms for the period of at least one

month in colder period of the year. After the exposure period detectors were sending back for analysis. If radon concentration in room overestimated  $400 \text{ Bq/m}^3$ , the measurement in the same room was repeated. Radon and radon progeny concentrations were measured by electronic devices for the period of one week or more in the same room. Devices were put on place away from windows and doors.

If radon concentration measured by track each detector and radon/daughter concentrations measured by electronic devices were higher than regulated by law, measurements of radon concentrations in cracks, holes, installations, shafts etc. were performed. Tube was put in the crack or hole and isolated. Measuring period on each location was up to 60 minutes, depending on the device and strength of the source.

Measurements of radon concentration in soil nearby the building were also implemented. The idea was to find possible connection between radon concentration in soil and in buildings. The stick was beat in the soil up to the depth of 80 cm and connected through tube with the device. Measuring period was up to 60 minutes, depending from the device and strength of the source.

After the set of two or three year measurements possible remediation actions were suggested. Longer measuring period was used because more data are available and it is easily define rooms for remediation, while some buildings are very small and have only one room in the basement, some buildings have more rooms in the basement and there is no need to remediate complete basement.

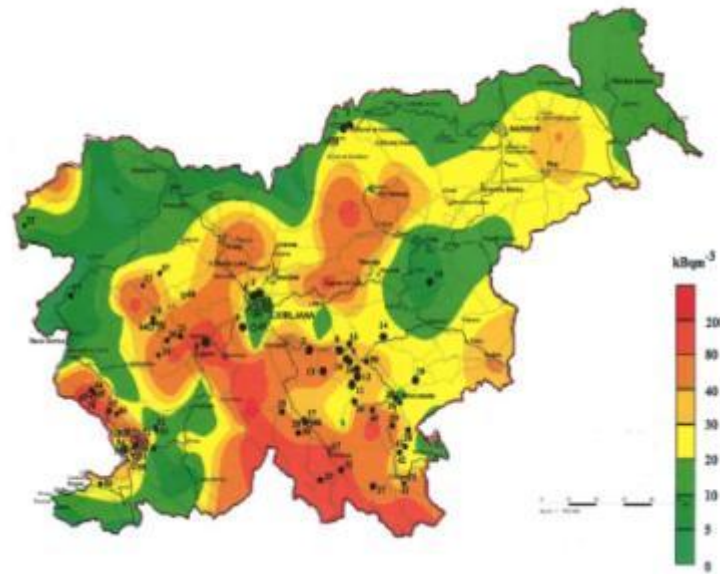
Long-term radon concentrations in buildings were measured by passive track each detectors made by Gammadata, Sweden, using a detection film made of CR39/PADC plastic mounted inside a closed container. Container is manufactured from an electrically conducting material to avoid effects of static buildup. The closed container permits only radon gas to enter. Thoron gas can not enter due to its short half-life.

For continuous measurements of radon concentrations electronic devices RAD7 (Durrige, USA) and Alphaguard (Germany) were used. For continuous measurements of radon progeny concentrations electronic devices WLM 30 (Scintrex, Canada), BWLM 2S (Tracerlab, Germany) and Doseman Pro (Sarad, Germany) were used. Measuring period for radon progeny concentration measurement was 30 minutes and for radon concentration measurement 60 minutes.

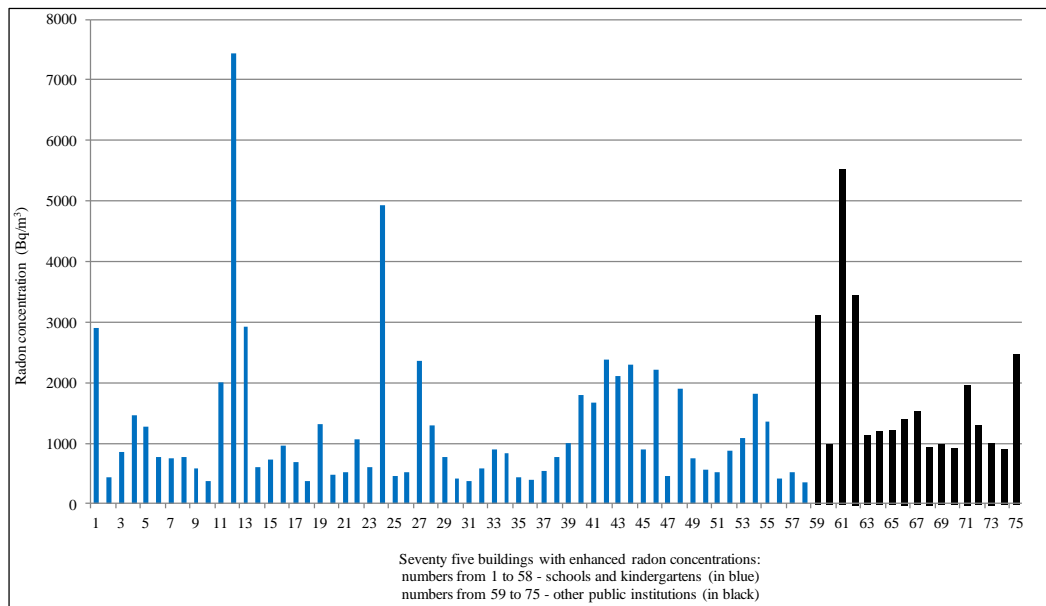
### **3. Results**

In the period from 2006 to 2015 eight hundred and seven (807) measurements of radon concentrations in three hundred sixteen (316) schools and kindergartens and fifty seven (57) other public institutions by track each detectors were done [4]. In schools and kindergartens six hundred sixty four (664) radon concentration measurements were done, in two hundred fifty six (256) cases radon concentrations were higher than  $400 \text{ Bq/m}^3$ . In other public institutions one hundred forty three (143) radon concentration measurements were done and in fifty one (51) case radon concentrations were higher than  $1000 \text{ Bq/m}^3$ . Regulated values were increased in fifty (58) kindergarten and school and seventeen (17) in other public institutions.

Measuring locations in fifty eight schools or kindergartens and seventeen other institutions with enhanced radon concentrations are presented on figure 1 and figure 2. Radon concentrations in schools and kindergartens are presented in black circles (numbers from 1 to 58). Radon concentrations in other institutions are presented in empty circles (numbers from 59 to 75).



**Figure 1. measuring locations in schools, kindergartens (black circles) and other institutions (empty circles)**



**Figure 2. Radon concentrations in schools, kindergartens and other institutions (numbers are the same as Figure 1)**

In sixteen kindergartens or schools and four other institutions radon concentrations in cracks or holes were measured. In ten of them also radon concentration in soil near the building was measured (*Table 1*).

**Table 1. Radon concentrations in rooms, cracks and soil (Bq/m<sup>3</sup>)\***

No	Rn - room	Rn - crack	Rn - soil
1	2900	40000	75000
12	7500	59000	127000
13	2500	14000	82000
16	950	4000	108000
21	1000	168000	
26	1000	3000	
27	2400	600	
29	800	10000	380000
39	900	7000	88000
40	1800	4000	105000
42	1330	20000	
43	2500	35000	
44	2000	27000	226000
45	900	17000	160000
46	2500	45000	
48	1300	13000	150000
54	1300	15000	
61	5500	30000	
62	1300	5000	
73	1300	5000	
75	2500	18000	

\*numbers are the same as in Figure 1

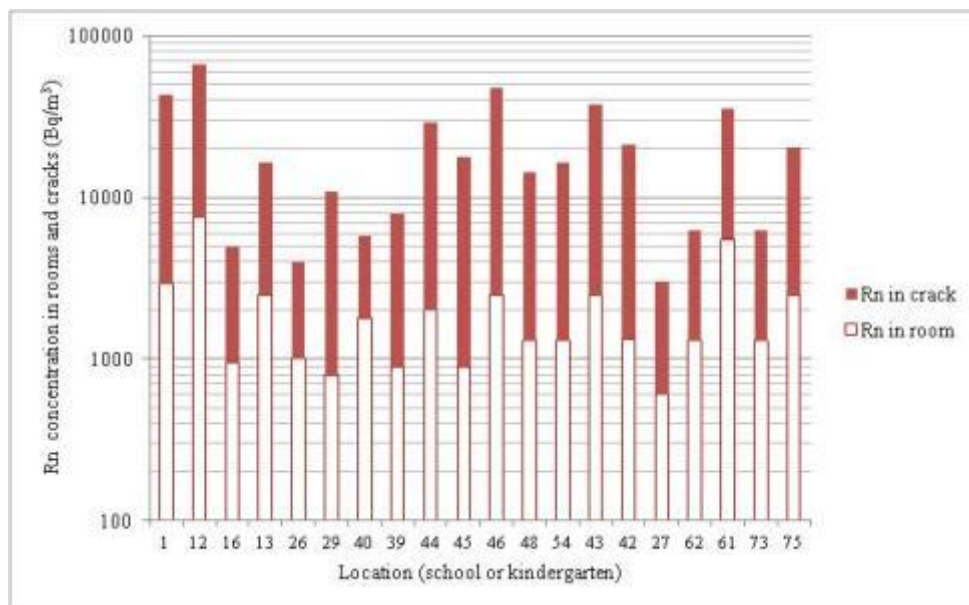
Regarding the geology measuring locations are located in typical karst area with limestone and marl and in central and southern part of Slovenia where the major geological basement forms marl and conglomerate (locations 5 - 58).

There are another two interesting locations, OŠ Prevalje (number 1) and MORS Todraž (number 60). OŠ Prevalje is located on the slag from steel industry in the vicinity, which is the main reason for high radon concentrations. MORS Todraž is located on the uranium mine tailings and increased radon concentrations were expected.

We can see good correlation between radon concentrations in soil, cracks and rooms (*Table 1, Figure 3*). From measuring locations we can eliminate OŠ Bučka (number 16), PŠ Dvor (number 26), VVO Vavta vas (number 40), GŠ Ribnica (number 27), UKC (number 62) and ŽP Divača (number 73).

OŠ Dvor is the only new building presented, all other building on the table 1 are older. There is a strong source of radon under the basement, but the floor is good isolated and radon can not enter the building.

GŠ Ribnica has a classroom in the cellar about two meters below the surface. The floor was remediated three years ago and we could not find any cracks in the floor or on the contacts floor-walls. Probably there are cracks in the walls. On locations PŠ Bučka, VVO Vavta vas, UKC and ŽP Divača there is a lot of small cracks in the floor and radon can enter the room through those.



**Figure 3. Radon concentrations in rooms and cracks**  
(numbers are the same as in Figure 1)

#### 4. Conclusions

Concerning results of radon concentration measurements we can conclude, (i) karst area and central southern part of Slovenia with limestone, marl and conglomerate as a main geological structure represent a strong radon source, (ii) old buildings with cracks in the floor make a great possibility to radon entering the rooms and finally (iii) remediation actions are urgent in almost all old schools and kindergartens on the area presented.

#### REFERENCES

- [1] Ionizing Radiation Protection and Nuclear Safety Act, Off. Gaz. of the RS, 102, 2004.
- [2] Rules on the monitoring of radioactivity, Off. Gaz. of the RS, 20, 2007.
- [3] J. Vavpotič, Systematic indoor radon and gamma-ray measurements in Slovenian schools, *Health Physics*. 78(5) (2000), 559-562.
- [4] P. Jovanovič, Systematic survey of working and living environment, ZVD, 2006 - 2013 (in Slovenian).

## **PREGLED MERENJA KONCENTRACIJE RADONA INSTITUTA ZA MEDICINU RADA SRBIJE „DR DRAGOMIR KARAJOVIĆ“**

**Vesna ARSIĆ, Jovana ILIĆ, Suzana BOGOJEVIĆ i Irena TANASKOVIĆ**  
*Institut za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“, Beograd, Srbija,  
[vesna.arsic@institut.karajovic.rs](mailto:vesna.arsic@institut.karajovic.rs), Deligradska 29, 11000 Beograd*

### **SADRŽAJ**

*U ovom radu je dat pregled višegodišnjih merenja koncentracije radona u stanovima, kućama, školama i vrtićima Srbije, koje je izvršila Laboratorija za ispitivanje radioaktivnosti Instituta za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“. Rezultati su prikazani po etapama, prateći hronologiju merenja, zaključno sa 2013. godinom.*

### **1. Uvod**

Ovaj rad je nastao kao priprema Instituta za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“ za ekspertsku misiju, koja je, u okviru nacionalnog projekta tehničke saradnje (projekat SRB/9/003 pod nazivom „*Enhancing the Regulatory Infrastructure and Legislative System*“), između Republike Srbije i Međunarodne agencije za atomsku energiju (MAAE), februara 2015. godine, održana u Beogradu u organizaciji Agencije za zaštitu od jonizujućih zračenja i nuklearnu sigurnost Srbije. Ovaj skup je bio trodnevni radni sastanak eksperata MAAE i eksperata na nacionalnom nivou, sa temom izrade nacionalnog programa merenja radona u Srbiji. Deo skupa je bio posvećen predstavljanju dosadašnjih iskustava i rezultata merenja koncentracije radona u Srbiji. Rezultati jedne od pet institucija-saradnika na ovom projektu-Instituta za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“, prikazani su u ovom radu.

### **2. Materijal i metoda**

Laboratorija za ispitivanje radioaktivnosti Instituta za medicinu rada „Dr Dragomir Karajović“, sprovodi određivanje koncentracije radona u zatvorenim prostorijama, pomoću kanistera sa aktivnim ugljem prema standardnoj metodi čiji autor je EPA-procedura 520/5-87-005 [1]. Za ovu metodu, između ostalog, 2009. godine laboratorija je akreditovana od strane Akreditacionog tela Srbije. Metoda se zasniva na adsorpciji radona na aktivnom uglju i gamaspektrometriji radonovih potomaka. Izlaganje kanistra česticama vazduha, po proceduri, traje od tri do šest dana u prostoriji koja se neće provetravati za to vreme. Nakon izlaganja, kanister se zatvara i obezbeđuje polivinilskom trakom, da radon koji se oslobađa, ostane u metalnom kanisteru. Vreme uspostavljanja ravnoteže između radona i njegovih kratkoživećih potomaka je 3 h i po isteku ta tri časa kanistri se postavljaju u kućište detektora i mere. Koncentracija radona-222 određuje se posredno, gamaspektrometrijom radonovih potomaka, koristeći pikove olova-214 na energijama od 295 i 352 keV i bizmuta-214 na energiji od 609 keV. Merenje se obavlja na scintilacionom detektoru (NaI) ili čisto germanijunskom detektoru. Za kalibraciju detektora i određivanje efikasnosti koristi se referentni etalon Ra-226, koji sadrži radijum-nitrat uniformno raspoređen u ugljenom filteru iste geometrije kao i ispitivani uzorci. Efikasnost detektora se računa pre svakog merenja. Samo merenje, po proceduri, traje 30 minuta, nakon čega se izračunava koncentracija radona u ispitivanoj prostoriji.



### 3. Rezultati i diskusija

Rezultati su grupisani prema hronologiji merenja koja su se odvijala u nekoliko etapa. Iako se u Evropi o radonu, kao sastavnom delu atmosferskog vazduha, zna praktično već nekoliko godina nakon njegovog otkrića, iako je veza između izloženosti radonu i nastanka raka pluća potvrđena već 1940. godine, ova tema se u Srbiji otvara dosta kasno, pa je istorija merenja radona kod nas, u odnosu na evropska iskustva, prilično kratka. Do devedesetih godina prošlog veka u našoj zemlji još uvek nisu postojali zakonski propisi u vezi sa ograničenjima izloženosti stanovništva i profesionalno izloženih lica radonu i nisu se vršila opsežna ispitivanja koncentracije radona u stambenim prostorijama. Počekom devedesetih godina Institut za medicinu rada „Dr Dragomir Karajović“ započinje seriju preliminarnih merenja koncentracije radona u Srbiji, uvodeći po prvi put, metodu detekcije radona pomoću aktivnog uglja. Deo ovih rezultata je publikovan u Atini, aprila 1997. godine na Prvom regionalnom radnom sastanku o radonu zemalja jugoistočne Evrope [2].

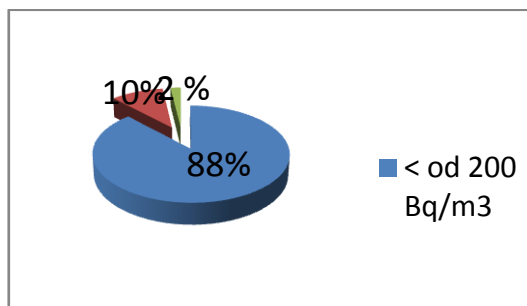
#### 1991 - 1997

Prva etapa obuhvata šestogodišnji period merenja u boravišnim prostorijama Srbije od 1991 do 1997, a analiza ovih rezultata prikazana je detaljno u magistarskom radu Irene Petrović [3]. Zahvaljujući temeljnom uzimanju podataka od vlasnika objekata, prikupljene su informacije o spratu merne prostorije, vrsti građevinskog materijala, načinu i godini izgradnje, ventilaciji, načinu grejanja i izvedeni su zaključci o uticaju ovih karakteristika na prisustvo radona u boravišnim prostorijama. Treba reći da iza ovih merenja i njihovih rezultata stoji višegodišnji trud većeg broja stručnjaka Odeljenja za radioekologiju Instituta za medicinu rada „Dr Dragomir Karajović“. Deo rezultata je uspešno publikovan ili izlagan na domaćim i međunarodnim skupovima [4], [5], [6], [7] i [8]. U ovom radu osvrnućemo se samo na glavna zapažanja izneta u magistarskoj tezi [3]. Sva merenja su obavljena u zimskom periodu. Odabir merenja koja će ući u analizu izvršen je na osnovu sprata merne prostorije, pouzdanosti i celovitosti popunjavanja pratećeg upitnika. Ukupnom broju stanova pridruženi su podaci i za 58 radnih prostorija - javnih objekata na teritoriji Republike Srbije (u pitanju su: vrtići, hoteli i banke). Merna nesigurnost svih merenja se kretala u opsegu od 5-10 %, dok se minimalna detektovana aktivnost kretala u opsegu od 5-7 Bq/m<sup>3</sup>. U tabeli 1 prikazani su rezultati merenja koncentracije radona u boravišnim prostorijama (kućama i stanovima zajedno) sa izdvojenim srednjim vrednostima za Beograd i ostala mesta u Srbiji, kao srednja vrednost (aritmetička sredina) za svih 568 prikazanih merenja. Rezultati kao i način prikazivanja, preuzeti su iz izvora [3].

**Tabela 1. Srednja koncentracija radona u stanovima i kućama Republike Srbije u periodu 1991 - 1997**

Merna mesta	Broj mernih mesta	Srednja koncentracija <sup>222</sup> Rn (Bq/m <sup>3</sup> )	Standardna devijacija SD	Medijana M	Srednja devijacija SSD
Beograd	390	84,06	146,27	27,00	89,79
Ostala mesta u Srbiji	178	89,39	115,59	41,79	89,39
Sva mesta u Srbiji	568	86,73	136,83	29,08	86,85

Na slici 1 je grafički prikazana procentualna raspodela koncentracije radona u boravišnim prostorijama, sa koje se jasno vidi da je u najvećem broju slučajeva (88 %) koncentracija radona bila ispod 200 Bq/m<sup>3</sup>, u 10 % slučajeva bila je u opsegu 200-600 Bq/m<sup>3</sup> i u svega 2 % slučajeva bila je preko 600 Bq/m<sup>3</sup>.



**Slika 1. Procentualna raspodela koncentracije radona u stanovima u periodu 1991-1997**

Ovi rezultati, analizirani i prikazani u magistarskoj tezi [3], potvrdili su, od ranije poznate zaključke: da su vrednosti koncentracije radona više u kućama nego u stanovima, da su ove vrednosti najviše u boravišnim prostorijama koje se greju na ugalj (u odnosu na ostale načina grejanja kao što su: grejanje na struju, uz pomoć klima uređaja, drva, gas i centralno grejanje), da su najviše u suterenskim i prizemnim prostorijama, da sa porastom sprata opada vrednost koncentracije radona i da je koncentracija radona najviša u najstarijim objektima.

### 1998 - 2013

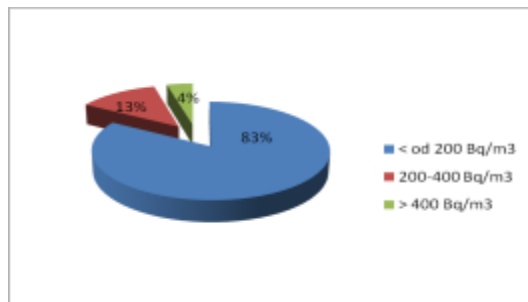
Period od 1998 - 2013 u najvećem broju slučajeva bio je posvećen, sticajem okolnosti (organizacije posla u Institutu), merenju koncentracije radona u stanovima na široj teritoriji Beograda. Izuzetak se pravi 2010 godine, kada se počinje sa merenjem koncentracije radona u predškolskim i školskim ustanovama Beograda. Pošto nije bilo prekida u merenju koncentracije radona u boravišnim prostorijama glavnog grada, u tabeli 2 su prikazani rezultati merenja koncentracije radona-srednja vrednost (aritmetička sredina), minimalna i maksimalna vrednost, na teritoriji Beograda, za celokupni period od 1998 do 2013 godine.

**Tabla 2. Rezultati merenja koncentracije radona u stanovima Beograda u periodu 1998 - 2013**

Broj mernih mesta	Srednja koncentracija <sup>222</sup> Rn [Bq/m <sup>3</sup> ]	Standardna devijacija SD	Minimalna koncentracija <sup>222</sup> Rn [Bq/m <sup>3</sup> ]	Maksimalna koncentracija <sup>222</sup> Rn [Bq/m <sup>3</sup> ]
400	111	142	8(2)	918(21)

Slika 2 je grafički prikaz procentualne raspodele koncentracije radona u stanovima za period merenja od 1998 do 2013 godine. I za ovaj period rezultati su pokazali sličnu

raspodelu: najviše stanova (88 %) je sa koncentracijom radona ispod 200 Bq/m<sup>3</sup>, a a najmanje (4 %) sa koncentracijom preko 600 Bq/m<sup>3</sup>.



**Slika 2. Procentualna raspodela koncentracije radona u stanovima Beograda u periodu 1998 - 2013**

### **2010 - 2013: Škole i vrtići**

2010. godine, Laboratorija je izvršila masovna merenja koncentracije radona u školama i vrtićima na teritoriji Beograda u okviru projekta monitoringa radioaktivnosti glavnog grada RS. Do ovog trenutka, Laboratorija je izvršila merenja u 112 škola i 78 vrtića (oko 50 % od ukupnog broja škola i vrtića iz širokog područja glavnog grada). U istom vremenskom razdoblju, u okviru istog projekta, Laboratorija je paralelno vršila i merenja koncentracije radona u boravišnim prostorijama (89 stanova), koji su pridruženi rezultatima merenja stanova u Beogradu za period 1998 - 2013. Ukupno, laboratorija raspolaže sa 1.023 rezultata u bazi podataka.

Metalni kanistri za merenje su bili postavljeni u prizemlju i na prvom spratu, uglavnom u učionicama, ređe u podrumu, u pomoćnim prostorijama i kancelarijama (5 merenja po svakoj školi ili vrtiću). Kao i u ostalim slučajevima, držeći se procedure, kanistri su otvarani za izlaganje u petak, po završetku nastave ili nakon zatvaranja vrtića. Deca i osoblje tokom izlaganja su bila izvan zgrada, ventilacioni sistem je bio isključen, prozori zatvoreni. Kanistri su prikupljeni ponedeljkom pre početka nastave, odnosno rada vrtića.

U tabeli 3 prikazane su srednje vrednosti (aritmetička sredina), maksimalne i minimalne vrednosti koncentracije radona po opštinama.

**Table 3: Raspored po opštinama srednjih koncentracija radona merenih u školama i vrtićima Beograda**

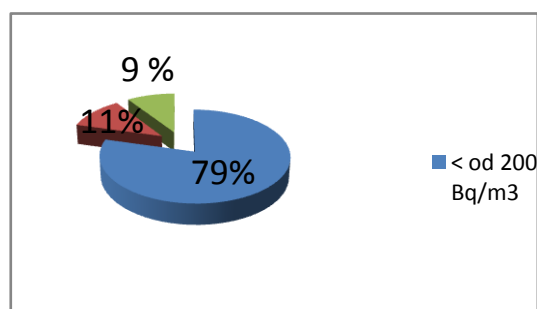
Opština	Srednja koncentracija $^{222}\text{Rn}$ [ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Standardna devijacija SD	Minimalna koncentracija $^{222}\text{Rn}$ [ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Maksiimalna koncentracija $^{222}\text{Rn}$ [ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ]
Čukarica	198	295	14(3)	1227(34)
Grocka	214	309	12(4)	1137(22)
Lazarevac	69	53	19(4)	242(6)
Mladenovac	191	179	29(6)	894(17)
Novi Beograd	49	1	10(4)	707(12)
Obrenovac	185	292	9(4)	1511(11)
Palilula	190	308	16(4)	1385(12)
Rakovica	176	168	8(5)	686(9)
Savski venac	314	585	13(4)	3605(40)
Stari grad	99	178	8(4)	1040(19)
Voždovac	306	546	19(4)	2598(35)
Vračar	113	135	14(4)	691(17)
Zemun	137	302	17(7)	1859(33)
Zvezdara	160	383	12(5)	3382(26)

Srednja vrednost (aritmetička sredina) po opštinama, minimalna i maksimalna vrednost koncentracije radona u školama i vrtićima za ovaj period merenja prikazana je, u tabeli 3. Dakle, prosečna koncentracija radona u školama i vrtićima za ovo razdoblje merenja je  $171 \text{ Bq}/\text{m}^3$ , minimalna vrednost je  $8 \text{ Bq}/\text{m}^3$  (mereno u školi u opštini Rakovica i dr.) i maksimalna vrednost je  $3382 \text{ Bq}/\text{m}^3$  (mereno u školi u opštini Zvezdara-mala podrumaska prostorija, bez ventilacije).

**Table 4. Rezultati merenja koncentracije radona u školama i vrtićima Beograda u periodu 2010-2013**

Broj mernih mesta	Srednja koncentracija $^{222}\text{Rn}$ [ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Standardna devijacija SD	Minimalna koncentracija $^{222}\text{Rn}$ [ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Maksimalna koncentracija $^{222}\text{Rn}$ [ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ]
902	171	337	8(4)	3605(40)

Vidimo da su, u većini mernih mesta (79 %) njih, rezultati ispod  $200 \text{ Bq}/\text{m}^3$ , 11 % su rezultati u rasponu  $200\text{-}400 \text{ Bq}/\text{m}^3$  i 9 % iznad  $400 \text{ Bq}/\text{m}^3$ . Ova distribucija je prikazana na slici 3.



**Slika 3. Procentualna raspodela koncentracije radona u školama i vrtićima Beograda u periodu 2010 - 2013**

#### 4. Zaključak

Pasivna metoda određivanja koncentracije radona pomoću detektora sa aktivnim ugljem, pokazala se kao vrlo dobra za preliminarna merenja i brzo detektovanje područja sa potencijalno visokom koncentracijom radona. Dosadašnja merenja i javnih prostorija i boravišnih prostorija koje je izvršila Laboratorija za ispitivanje radioaktivnosti Instituta za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“ na teritoriji Republike Srbije, u velikom procentu-80% ili više, pokazuju vrednosti ispod 200 Bq/m<sup>3</sup>. Takođe su otkrivena mesta sa višim koncentracijama radona na kojima će biti ponovljena dugotrajna merenja (u okviru kampanje merenja koncentracije radona koja nam predstoji i koja je dogovorena tokom posete EM, a čiji je cilj određivanje nacionalnog referentnog nivoa), čime će biti omogućena neophodna reakcija: smanjivanje koncentracije radona u datom prostoru na neki od predviđenih načina.

#### 5. Literatura

- [1] D.J. Gray, S.T. Windham. EERF Standard Operating Procedures for Radon-222 Measurement Using Charcoal Canisters, *EPA 520/5-87-005*, 1987. United States Environmental protection Agency, Montgomery.
- [2] I. Petrović, G.Pantelić, R.Maksić. Study of concentration in homes of the Republic of Serbia. *1<sup>st</sup> Southeaster- European Regional Radon Workshop*, A.E.C., Athens, April (1997)
- [3] I. Petrović. Koncentracija radona-222 u stanovima u Republici Srbiji. *Magistarski rad*, 1998. Fakultet za fizičku hemiju. Beograd.
- [4] В. Вулетић, Г. Пантелић, М. Еремић-Савковић М, И. Танасковић, Љ. Јаворина. Радон у радним просторијама у Београду. *Свет рада, Часопис за питања безбедности здравља на раду, медицине рада и заштите животне средине за југоисточну Европу. Зборник радова I конгреса медицине рада и заштите на раду Србије и Црне Горе са међународним учешћем, Копаоник*, 2(4) (2005) 852-853.
- [5] М. Еремић-Савковић, Г. Пантелић, И. Танасковић, В. Вулетић, Љ. Јаворина. Concentration of radon in apartments on the territory of Belgrade in period 1997-2001. *Archives of toxicology, kinetics and xenobiotic metabolism*. Vol.10, No. 1-2, Belgrade, (2002) 195-197.
- [6]. G. Pantelić, M. Eremić-Savković, I. Tanasković, V. Vuletić. Indoor Radon Concentration Levels in Belgrade., *Book of Abstracts IM 2005, European workshop on individual monitoring of ionising radiation*, Vienna, Austria, April 11-15 (2005) C5/107,187.

[7]. И. Петровић, Г. Пантелић. Методе мерења радона у затвореним просторијама. *XXVI Саветовање са међународним учешћем Заштита ваздуха 98*, Београд (1998) 100-102.

[8]. И. Петровић, Г. Пантелић. Анализа резултата мерења радона у Републици Србији. *Зборник радова XX Југословенског симпозијума за заштиту од зрачења*, Тара, (1999) 139-139.

## **AN OVERVIEW OF RADON CONCENTRATION MEASUREMENT PERFORMED BY SERBIAN INSTITUTE OF OCCUPATIONAL HEALTH “ DR DRAGOMIR KARAJOVIĆ”**

**Vesna ARSIĆ, Jovana ILIĆ, Suzana BOGOJEVIĆ<sup>1</sup> and Irena TANASKOVIĆ**  
*Serbian Institute of Occupational Health “ Dr Dragomir Karajović”*

### **ABSTRACT**

Laboratory of Radioecology department has been monitoring radon concentration in homes, schools and kindergartens for years. Active charcoal detectors are used for radon concentration measurement in accordance with „EERF Standard Operating Procedures for Radon-222 Measurement Using Charcoal Canisters“, (EPA 520/5-87-005).

Radon measurement has been performed by this Laboratory since 1991. From 1991-1997 in 568 locations in Serbia average value of radon concentration was 87 Bq/m<sup>3</sup>. In the most of measurement places (88 %), results are below 200 Bq/m<sup>3</sup>, 10 % results are in range 200-400 Bq/m<sup>3</sup> and 2 % above 400 Bq/m<sup>3</sup>.

Measurement results of radon concentration in dwellings in period from 1998-2013 show that average value of radon concentration was 111 Bq/m<sup>3</sup>. Results are below 200 Bq/m<sup>3</sup> in 83 % cases, in range 200-400 Bq/m<sup>3</sup> in 13 % cases and above 400 Bq/m<sup>3</sup> for 4% cases.

In 2010, Laboratory has begun a project of massive measurements of Rn-222 concentration in schools and kindergartens in Belgrade. Until this moment, Laboratory has performed measurements in 112 schools and 78 kindergartens. The average radon concentration in the schools and kindergartens for this period of measurements is 171 Bq/m<sup>3</sup>. Minimal value is 8 Bq/m<sup>3</sup>. Maximal value is 3382 Bq/m<sup>3</sup>.

In most of measurement places (79 %), results are below 200 Bq/m<sup>3</sup>, 11 % results are in range 200-400 Bq/m<sup>3</sup> and 9 % above 400 Bq/m<sup>3</sup>.

Radon concentration measurement method, performed by Serbian Institute of Occupational Health “ Dr Dragomir Karajović”, is based on random sampling, so the picture that we get from these results, is not complete, but give us information about condition in schools and kindergartens, which was aim at the start.

## ISTRAŽIVANJE KONCENTRACIJE RADONA I TORONA U PRIVATNIM KUĆAMA NA TERITORIJI GRADA KRUŠEVCA

**Biljana VUČKOVIĆ<sup>1</sup>, Ljiljana GULAN<sup>1</sup>, Biljana MILENKOVIĆ<sup>2</sup>, Jelena STAJIĆ<sup>2</sup>, Gordana MILIĆ<sup>1</sup>**

1) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Prištini, Kosovska Mitrovica, Srbija, biljanavuck@gmail.com*

2) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Kragujevcu, Kragujevac, Srbija*

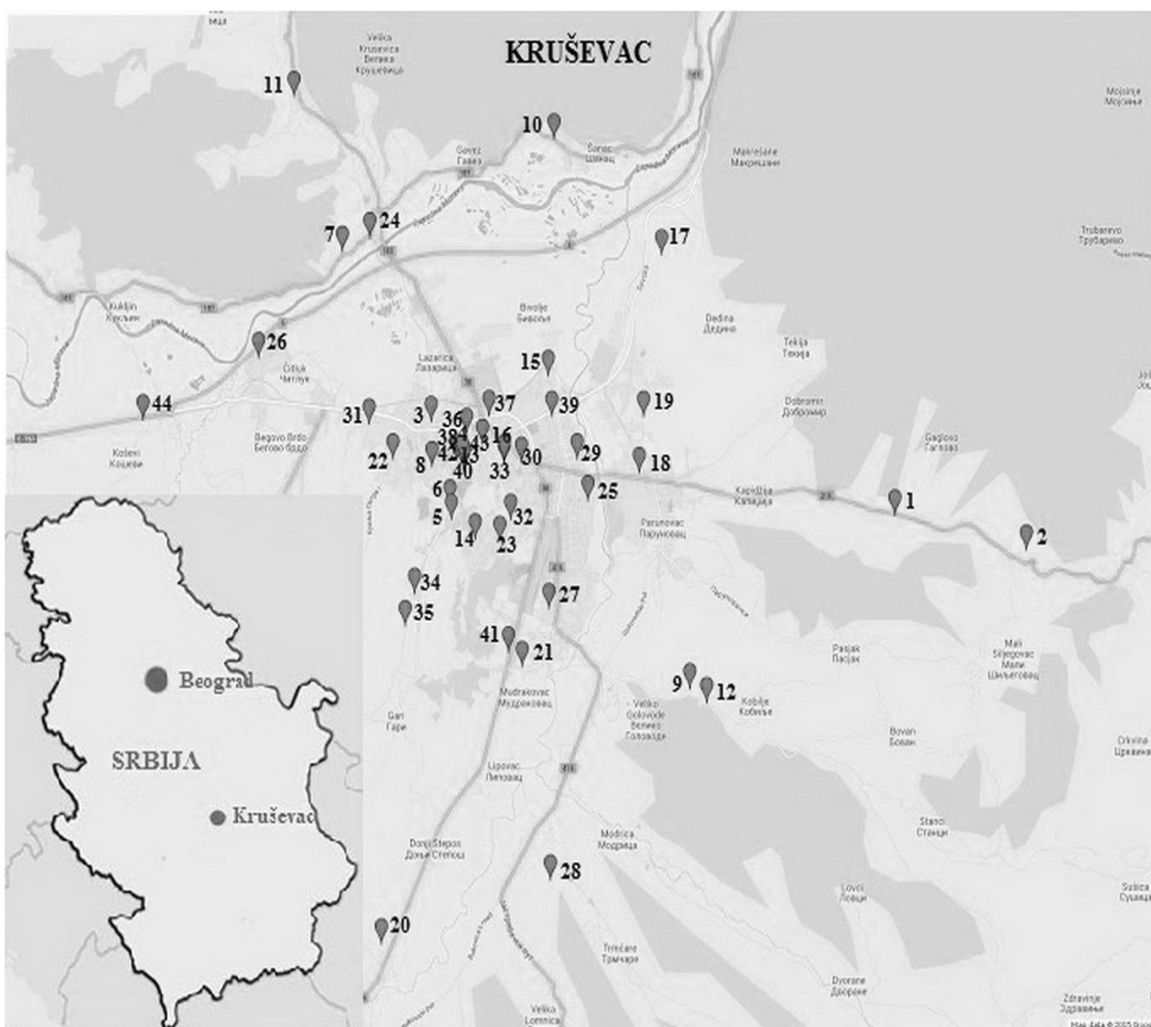
### **Sažetak**

U ovom radu prikazani su rezultati istraživanja koncentracije aktivnosti radona i torona u porodičnim kućama na teritoriji grada Kruševca. Merenja su vršena pomoću pasivnih radonsko-toronskih diskriminativnih trag detektora – UFO detektora, u zimskom periodu na 44 merna mesta. Vremenski interval izlaganja bio je 90 dana. Srednja vrednost izmerenih koncentracija aktivnosti radona je  $75.3 \text{ Bqm}^{-3}$ , a srednja vrednost izmerenih koncentracija aktivnosti torona je  $29.4 \text{ Bqm}^{-3}$ . Imajući na umu izrazito kancerogeno delovanje ovih radionuklida na ljudski organizam određena je i efektivna ekvivalentna doza inhaliranog radona i torona, pre svega njegovih potomaka, na godišnjem nivou, čije su srednje vrednosti  $1.89 \text{ mSv y}^{-1}$  i  $0.2 \text{ mSv y}^{-1}$ , respektivno. Na teritoriji grada Kruševca ovom metodom do sada nisu vršena istraživanja, tako da rezultati ovog rada predstavljaju osnov za dalja istraživanja, kao i izradu radonske mape Srbije.

### **1.Uvod**

Želja autora bila je da se istraži i odredi koncentracija radona i torona u porodičnim kućama na široj teritoriji grada Kruševca. Porodične kuće u kojima se vršilo istraživanje bile su sagrađene uglavnom 70-tih godina prošlog veka, sa podrumskim prostorijama ili bez njih. Detektori su postavljeni u prizemnim delovima kuća, i to u sobama u kojima ljudi borave veći deo dana, dnevne sobe ili kuhinje. Istraživanja su obavljena na 44 merna mesta ( slika 1.), i sprovedena su u zimskom periodu. Vremenski interval izlaganja bio je 90 dana. Tada je akumulacija radionuklida u prostorijama pojačana, a njihovo provetravanje redukovano. Mehanizmi prodiranja radona i torona u zatvorene prostorije su mnogobrojni, ali svakako najznačajniji su difuzija i razlika u pritiscima [4]. Što je veća razlika u pritiscima van i u kućama, veća količina radionuklida prodire u unutrašnjost i menja svoju zastupljenost u prostoriji. Faktori koji još u velikoj meri utiču na koncentracije radionuklida su i građevinski materijali od kojih je kuća napravljena, ventilacija i klimatske promene. Vreme poluraspada radona Rn-222 je 3.92 dana i zajedno sa svojim produktima raspada ravnomerno se distribuira po prostoriji. Sa druge strane toron, Rn-220 sa vremenom poluraspada od svega 55.6s najzastupljeniji je u neposrednoj blizini zida. Njegovi potomci ipak dovoljno dugo žive da bi se moglo govoriti o njihovoj ipak homogenoj rasprostranjenosti po prostoriji, sa jako izraženom zavisnošću na promenu vazduha u njoj [5].

Velike koncentracije ne samo radona i torona, već i njihovih radioaktivnih potomaka daju značajan doprinos izloženosti čoveka prirodnoj radijaciji [1-6]. U organizam u prvom redu unose inhalacijom pa tako predstavljaju glavne uzročnike karcinoma pluća. Kako čovek provede oko 80% svog vremena u zatvorenim prostorijama, na osnovu dobijenih vrednosti procenjene su i efektivne ekvivalentne doze inhaliranog radona i torona, zapravo toronovih potomaka na godišnjem nivou.



**Slika 1. Mapa izabranih lokacija na široj teritoriji grada Kruševca**

## **2. Eksperimentalna merenja**

Merenja koncentracija aktivnosti radona i torona, i njihovih potomaka, vršena su u porodičnim kućama, na ukupno 44 merna mesta, na široj teritoriji grada Kruševca. Poznato je da je koncentracija torona jako visoka u neposrednoj blizini zida, a da sa povećanjem rastojanja opada. Tako da je ta velika varijabilnost koncentracije torona sa povećanjem rastojanja od zida uslovlila dobro planiranu i definisanu udaljenost detektora od zida [6]. Pošto se merenje koncentracija radona i torona vršilo istovremeno, detektori su postavljeni na optimalnom rastojanju od zida od 20 cm. Istraživanje je sprovedeno korišćenjem pasivnih radonsko-toronskih diskriminativnih trag dozimetara-UFO detektora, razvijenih na NIRS Institutu, Čiba, Japan [7,8]. Njihova osnovna karakteristika je odvojeno detektovanje radona i torona. Detektor čine dve hemisferske komore. Vazduh (ispunjen radonom i toronom) prodire kroz veću komoru, prečnika 120 mm a zatim kroz filter od fiberglasa prelazi u drugu komoru prečnika 75 mm. U svakoj od komora nalazi se detektorski polukarbonatni disk (Iupilon®), prečnika 50 mm i debljine 300 μm. Na prelazu iz veće u manju komoru nalazi se barijera nepropusna za toron [8], tako da se koncentracija prisutnog radona dobija očitavanjem tragova na detektorskom disku manje komore. Tragovi radona postaju vidljivi na disku nakon



tridesetominutnog hemijskog nagrizanja u rastvoru 8 N KOH i etanola (zapreminskog odnosa 80% - 20%) na temperaturi od 30° C, i tročasovnog elektrohemijskog nagrizanja pod naponom od 800 V i frekvencom od 2 kHz. Na detektorskom disku veće komore očitavaju se tragovi torona koji postaju vidljivi nakon tročasovnog hemijskog nagrizanja i tročasovnog elektrohemijskog nagrizanja [9]. Nakon nagrizanja polikarbonatni detektori ispirani su rastvorom HCl i destilovanom vodom. Na osnovu očitanih tragova izračunate su koncentracije radona ( $C_{Rn}$ ) i torona ( $C_{Tn}$ ) prema obrascima [10]:

$$C_{Rn} = \frac{\rho_l}{cT} \quad (1)$$

$$C_{Tn} = \frac{\rho_u - \frac{a}{c}\rho_l}{bT} \quad (2)$$

gde  $T$  predstavlja vreme izlaganja od 90 dana, a  $\rho_u$  i  $\rho_l$  su gustine tragova u gornjoj i donjoj detektorskoj hemisferi, dok su kalibracioni koeficijenti  $a$ ,  $b$  i  $c$  definisani na sledeći način [11]:

$$a = (0.0231 \pm 0.00058) (\text{tr}/\text{cm}^2)/(\text{Bqm}^{-3}\text{d}), \quad (3)$$

$$b = (0.0104 \pm 0.00017) (\text{tr}/\text{cm}^2)/(\text{Bqm}^{-3}\text{d}), \quad (4)$$

$$c = (0.0281 \pm 0.000545) (\text{tr}/\text{cm}^2)/(\text{Bqm}^{-3}\text{d}). \quad (5)$$

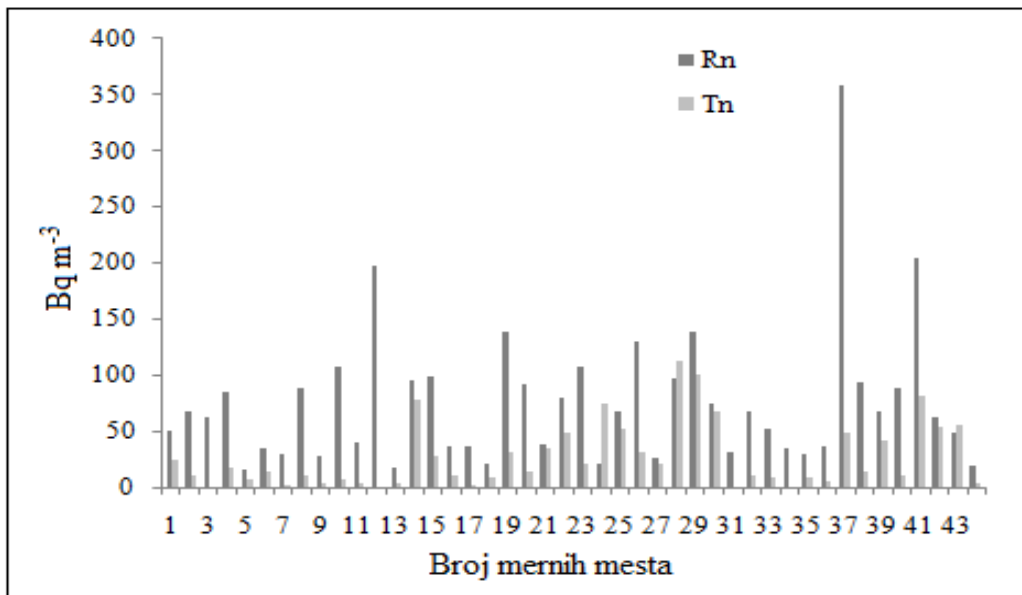
### 3. Rezultati merenja i diskusija

Statistički obrađeni rezultati merenja na izabrana 44 merna mesta, predstavljeni su u tabeli 1. Procenti govore da je koncentracija radona u najvećem broju kuća ispod “referentnog nivoa” od 100 Bqm<sup>-3</sup> [11]. Samo na jednom mernom mestu zabeležena je visoka koncentracija radona od 358 Bqm<sup>-3</sup>, dok na četiri merna mesta toron nije bio detektovan. Raspon koncentracija radona i torona grafički je prikazan na slici 2., a na slikama 3. i 4. njihove frekventne distribucije.

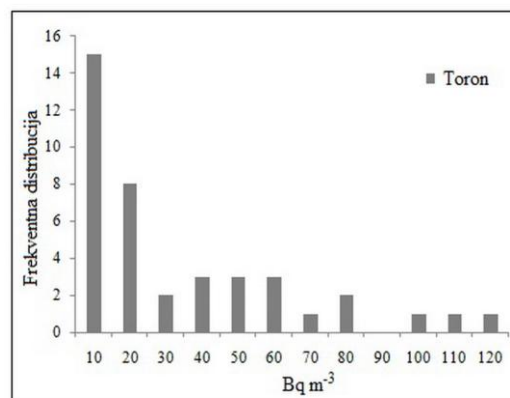
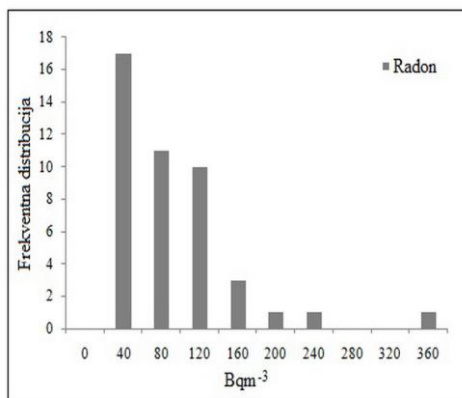
**Tabela 1. Statistička obrada dobijenih rezultata na mestima istraživanja**

	<b>Radon (Rn-222)</b>	<b>Toron (Rn-220)</b>
<b>Br. lokacija</b>	44	40
<b>Min (Bqm<sup>-3</sup>)</b>	15	2
<b>Max (Bqm<sup>-3</sup>)</b>	358	112
<b>SD</b>	62.3	29
<b>AS (Bqm<sup>-3</sup>)</b>	75.3	29.4
<b>GS (Bqm<sup>-3</sup>)</b>	60.8	16.8
<b>GSD</b>	2.13	3.09
<b>&gt;100 Bqm<sup>-3</sup> (%)</b>	18.18	4.54
<b>&gt;200 Bqm<sup>-3</sup> (%)</b>	4.54	--
<b>&gt;300 Bqm<sup>-3</sup> (%)</b>	2.27	--

SD-standardna devijacija, AS-aritmetička sredina, GS-geometrijska sredina, GSD-geometrijska standardna devijacija



**Slika 2. Grafički prikaz odnosa koncentracija radona i torona na izabranim mernim mestima**



**Slika 3. Frekventna distribucija radona Slika 4. Frekventna distribucija torona**

Zastupljenost potomaka radona i torona u prostorijama određena je efektivnim ekvivalentnim koncentracijama radona EERC i torona EETC, uz vrednosti ekvivalentnih faktora od 0.4 za radon i 0.025 za toron [2,12]. Na osnovu dobijenih vrednosti koncentracija radona i torona, toronovih potomaka, mogu odrediti efektivne ekvivalentne doze, HRn i HTn, na godišnjem nivou i definisane u mSv y<sup>-1</sup>.

Za radon [2,6]:

$$HRn = EERC \cdot DCFRn \cdot O \quad (5)$$

i toron:

$$HTn = EETC \cdot DCFTn \cdot O \quad (6)$$

gde veličine EERC i EETC izražene u Bq m<sup>-3</sup>, dok su DCFRn=9 nSv h<sup>-1</sup> Bq<sup>-1</sup> m<sup>3</sup> i DCFTn=40 nSv h<sup>-1</sup> Bq<sup>-1</sup> m<sup>3</sup> konverzioni faktori doze za radon i toron, a O=7000 h definiše prosečno vreme koje čovek provode u zatvorenom prostoru. Izračunate

vrednosti EERC i EETC definišu zastupljenost radonovih i toronovih potomaka. Vrednosti doza predstavljene su u tabeli 2.

**Tabela 2. Efektivne ekvivalentne doze radona i torona na mestima istraživanja**

	<b>Br.lokacija</b>	<b>Min(mSv y<sup>-1</sup>)</b>	<b>Max(mSv y<sup>-1</sup>)</b>	<b>AS(mSv y<sup>-1</sup>)</b>
<b>Radon (Rn-222)</b>	44	0.38	9.02	1.89
<b>Toron (Rn-220)</b>	40	0.01	0.78	0.2

#### **4. Zaključak**

Na osnovu dobijenih rezultata može se uočiti da istraživanu oblast karakterišu prosečne koncentracije radona od 75.3 Bqm<sup>-3</sup> i torona od 29.4 Bqm<sup>-3</sup>. To je u saglasnosti sa preporukom Svetske zdravstvene organizacije za nivoe aktivnosti radona u stambenim objektima[5]. Istraživanje u zimskom periodu omogućilo je dobijanje realne slike o prisutnim radionuklidima pošto je tada pojačana njihova koncentracija u prostorijama a redukovano provetravanje. Analizom podataka zaključeno je i da su koncentracije radona veće u prizemnim prostorijama kuća bez podruma. Postojanje podrumskih prostorija sprečava prodor radona direktno iz zemlje u kuće. Na osnovu dobijenih vrednosti procenjene su i efektivne ekvivalentne doze inhalacije na godišnjem nivou. Ovi prvi koraci u merenju koncentracija radona i torona na široj teritoriji grada Kruševca mogu biti osnov za definisanje i izradu radonske mape Centralne Srbije.

Zahvalnost : Autori se zahvaljuju na saradnji vlasnicima kuća u kojima su bili raspoređeni detektori.

Finansiranje: Rad je podržan od strane projekata P 41028 i P 43002 koje finansira Ministarstvo prosvete i nauke Republike Srbije.

#### **Literatura**

- [1]ICRP, Lung cancer risk from indoor exposures to radon daughters, ICRP Publication 50, Annals of the ICRP 17(1), 1987.
- [2]UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), Sources and effects of ionizing radiation, Report to General Assembly, Vol.II 2-9, 2000.
- [3]Radon: An Overview of Health Effects, Encyclopidia of Environmental Health, 745-753, 2011.
- [4]Međunarodna komisija za radiološku zaštitu, Preporuke međunarodne komisije za radiološku zaštitu, (ICRP), 37 (2-4) 1-332, 2007.
- [5]World Health Organization. WHO Handbook on Indoor Radon: A Public Health Perspective. WHO, ISBN 97892 4 1547673, [http://www.who.int/ionizing\\_radiation/env/radon/en/index1.html](http://www.who.int/ionizing_radiation/env/radon/en/index1.html), 2009.
- [6]Mishra R., Zunic Z.S., Venoso G., Bochicchio F., Stojanovska Z., Carpentieri C., Prajith P., Sapra B.K., Mayya Y.S., Ishikawa T., Omori Y., Veselinovic N., Tollefsen T., Ujic P., BossewP., An evaluation of Thoron (and Radon) equilibrium factor close towalls based on long-term measurements in dwellings, *Radiat. Prot. Dosim.* 160(4) (2014) 1–5.
- [7]Žunić Z. S. et al., Collaborative investigations on Thoron and Radon in same rural communities of Balkans, *Radiat. Prot. Dosim.* 141(4) (2010) 346–350.

- [8]Doi M., Fujimoto, K., Kobayashi, S. and Yonehara, H. Spatial distribution of thoron and radon concentrations in the indoor air of a traditional Japanese wooden house, *Health Phys.* 66 (1994) 43–49.
- [9]Žunić Z. S., Ujić P., Čeliković I., Fujimoto K., ECE Laboratory in the Vinča Institute—its basic characteristics and fundamentals of electrochemical etching on polycarbonate, *Nucl. Technol. Radiat. Prot.* 18 (2003) 57–60.
- [10]Stajic J. M., Milenkovic B., Nikezic D., Radon concentrations in schools and kindergartens in Kragujevac city, Central Serbia, *CLEAN – Soil, Air, Water.* (2015) DOI: 10.1002/clen.201400830
- [11]Ujić P., Kinematika ekshalacije radona kroz različite materijale, magistarska teza, 2007. Fizički fakultet Univerzitet u Beogradu
- [12]Gulan Lj., Milic G., Bossew, P., Omori Y., Ishikawa T., Mishra R., Mayya Y. S., Stojanovska Z., Vuckovic B. and Zunic, Z. S., Field experience on indoor radon, thoron and their progenies with solid state detectors in a survey of Kosovo and Metohija, *Radiat. Prot. Dosim.* 152(1–3) (2012) 189–197.

## REASERCHES OF RADON AND THORON CONCENTRATIONS IN RESIDENTAL HOMES IN CITY OF KRUSEVAC

**Biljana VUCKOVIC<sup>1</sup>, Ljiljana GULAN<sup>1</sup>, Biljana MILENKOVIC<sup>2</sup>, Jelena STAJIC<sup>2</sup>, Gordana MILIC<sup>1</sup>**

*1) Faculty of Natural Sciences, University of Pristina, Kosovska Mitrovica, Serbia  
biljanavuck@gmail.com*

*2) Faculty of Sciences, University of Kragujevac, Kragujevac, Serbia*

### **Abstract**

This study presents the results of the activity concentration of radon and thoron in residential homes in the city of Krusevac. Measurements were taken using detectors known as UFO passive discriminative radon-thoron detectors on 44 measuring points in the winter season. The time interval of exposure was 90 days. The mean value of the measured activity concentration of radon was  $75.3 \text{ Bqm}^{-3}$ , and the mean value of the measured activity concentration of thoron was  $29.4 \text{ Bqm}^{-3}$ . Bearing in mind the extremely carcinogenic effect of these radionuclides in the human body we determined effective equivalent dose of inhaled radon and thoron-thoron progenies annually, with mean values of  $1.89 \text{ mSv y}^{-1}$  and  $0.2 \text{ mSv y}^{-1}$ , respectively. Since this type of research has been conducted in Krusevac, the results of sustainable operation are important clues for further research, and be grounds for the definition and development of radon maps of Serbia.

# SEZONSKE VARIJACIJE KONCENTRACIJA RADONA U RURALNIM DELOVIMA SRBIJE

**Igor ČELIKOVIĆ, Predrag UJIĆ i Zora S. ŽUNIĆ**

*Institut za nuklearne nauke "Vinča", Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija,  
icelikovic@vinca.rs*

## SADRŽAJ

*U radu se razmatraju sezonske varijacije koncentracije radona u zatvorenim prostorijama u pojedinim ruralnim predelima Srbije sa razlicitim geolskim podlogama. Za svaki period izmerene koncentracije radona izracunat je sezonski faktor, na osnovu koga je procenjeno relativno odstupanje pojedinačnog merenja, korigovano odgovarajućim sezonskim faktorom od izmerene srednje godišnje koncentracije radona. Ukoliko merenje koncentracija radona u toku cele godine nije bilo dostupno i sprovedeno, procenjeno je koje bi vreme izlaganja detektora, korigovano sezonskim faktorom, dalo najpouzdanije predviđanje srednje godišnje koncentracije radona. Ispitano je do koje mere je moguće dobijene sezonske faktore u jednoj regiji sa odredjenom geoloskom podlogom, primeniti za sezonsku korekciju u drugoj regiji sa različitim geološkom podlogom.*

## 1. Uvod

Iako radon (sa potomcima) doprinosi oko 50% ukupnoj efektivnoj dozi koju stanovništvo prima usled izlaganja prirodnoj radioaktivnosti [1], njegovo prisustvo, čak i pri visokim koncentracijama, nije moguće detektovati čulima. Nedavno su objedinjene epidemiološke studije sprovedene u Evropi [2], Americi [3] i Aziji [4] pokazale postojanje veze između koncentracije radona u zatvorenim prostorijama i kancera pluća. Na osnovu ovih istraživanja, Svetska Zdravstvena Organizacija, (SZO) je procenila da između 3% - 14% kancera pluća potiče od radona, što ga svrstava u vodećeg uzročnika kancera pluća posle konzumiranja duvana [5]. Savet Evropske Unije je stoga usvojio direktive u cilju obnavljanja evropskog zakonodavstva u vezi sa zaštitom od zračenja u kojima se zemlje članice EU obavezuju, između ostalog, da definišu referentni nacionalni nivo koncentracije radona u zatvorenim prostorijama koja ne treba da prelazi  $300 \text{ Bq/m}^3$ ; vrše identifikaciju objekata (stambeni i radni prostor) u kojima srednja godišnja koncentracija radona prelazi referentni nivo i podstiču smanjenje koncentracije radona u tim objektima; pružaju informacije na lokalnom i nacionalnom nivou o izloženosti radonu i odgovarajućem zdravstvenom riziku [6].

Objedinjeni istraživački centar (Joint Research Centre) Evropske komisije je pokrenuo izradu Evropskog atlasa prirodnog zračenja u cilju upoznavanja javnosti sa "radioaktivnim okruženjem" i usklađivanjem podataka za naučnu zajednicu [7]. U okviru ovog Atlasu predviđena je i izrada Evropske mape radona u zatvorenim prostorijama koja je počela 2006. godine. Republika Srbija, kao zemlja kandidat za članstvo u Evropskoj uniji je u obavezi da uskladi svoje sa evropskim zakonodavstvom u vezi sa zaštitom od zračenja [6] i shodno tome definiše referentni nivo za radon i identifikuje regije sa visokim koncentracijama radona. Iako je prvi nacionalni program za radon u SR Jugoslaviji (Srbiji) definisan još pre 20 godina [8], iz finansijskih i logističkih razloga detaljna izrada radonske mape tada nije bila izvodljiva, merenje koncentracije radona pasivnom metodom se konstantno sprovodilo aktivnim učešćem Instituta za nuklearne nauke „Vinča“ kroz istraživačke projekte u tri ciklusa projektnih

aktivnosti Ministarstva za nauku (Projekti: 1965, 141019B, 171018, 41028 i 43002), dva EU FP6 međunarodna projekta (INTAILRISK i INDUWASTE) kao i dva bilateralna projekta sa Slovenijom. Međunarodni istraživački timovi su svojim različitim učešćem (od savetodavnog do praktičnog: doniranjem detektora i laboratorije za elektrohemijsko razvijanje trag detektora, učešćem u zajedničkim terenskim aktivnostima i prikazivanju rezultata) značajno doprineli u dobijanju rezultata izmerenih koncentracija radona i proceni radonskog rizika. U periodu od 1997/98 kada je Institut za nuklearne nauke „Vinča“ organizovao i započeo prvi terenski rad raspoređivanja CR39 detektora tipa SSI/NRPB (National Radiological Protection Board, England) do sada je koncentracija radona u zatvorenim prostorijama izvršena u oko 600 kuća i 340 škola na teritoriji Srbije bez Vojvodine, i urađene su mape radonskog rizika za područja Kalne, Gornje Stuble i 13 opština Južne Srbije (Jablanički, Počinjski i Zaječarski okrug) [9].

Trenutno je aktuelan projekat izrade radonske mape u Srbiji, finansiran od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju i Agencije za zaštitu od jonizujućih zračenja i nuklearnu sigurnost Srbije, kojim se predviđa postavljanje 6000 CR39 detektora na teritoriji Republike Srbije u periodu jesen/zima 2015-2016 u trajanju od 6 meseci [10].

S obzirom na potrebu da se obuhvati što veći broj mernih lokacija u cilju dobijanja što detaljnije mape radonskog rizika, nije uvek moguće (odnosno praktično) meriti koncentraciju radona u zatvorenim prostorijama tokom cele godine, već je srednju godišnju koncentraciju radona potrebno proceniti na osnovu izmerene koncentracije radona u određenom vremenskom intervalu. Postoje oprečne tvrdnje da li je moguće primeniti jednostavne korekzione faktore kako bi se dobila dobra procena srednje godišnje koncentracije radona. Dok su Pinel i koautori tvrdili da su promene koncentracije radona u zatvorenim prostorijama posledica sezonskih varijacija, tako da je srednju godišnju dozu moguće proceniti uvođenjem sezonskih korekcionih faktora [11], Gillmore i koautori su pokazali da postoji značajan broj slučajeva u kojima primena sezonskog faktora može da dovede do podcenjene ili precenjene procene srednje godišnje koncentracije [12]. Utvrđeno je da sezonska varijacija koncentracije radona u zatvorenim prostorijama zavisi od nekoliko parametara: tip kuće, izvor radona, životne navike ukućana, ventilacionog sistema kuće, tipa grejanja i vrste podneblja [13]. Cilj ovog rada je da se ispituju sezonske varijacije koncentracije radona u određenim delovima R. Srbije i proceniti primenljivost dobijenih faktora u različitim regionima.

## 2. Materijal i metod

Koncentracija radona u zatvorenim prostorijama je merena ( $1 \times 1 \text{ cm}^2$ ) CR-39 detektorima postavljenim u RADOPOT cilindričnim difuzionim komorama (visina: 5 cm i poluprečnik: 1.5 cm) proizvedenim u Radosys Ltd(Madžarska). Po ozračivanju, detektori su hemijski razvijani 4.5 h, u 6.2 molarnom rastvoru NaOH pri temperaturi od 90 °C, a potom očitavani u sistemu sa automatskim brojanjem tragova.

Detektori su postavljeni u spavaćim sobama i dnevnim boravcima u odabranim ruralnim sredinama Republike Srbije. S obzirom na nepristupačnost pojedinih lokacija, nepovoljne meteorološke uslove ili ograničenost u finansijskim sredstvima nije uvek bilo moguće sprovesti terenska merenja u ravnomernim vremenskim intervalima, (na svaka tri meseca u toku godinu dana), kako bi se dobila sezonska varijacija koncentracije radona. U tabeli 1 je prikazan broj mernih mesta za datu regiju i odgovarajuću geološku podogu kao i period u kojem su detektori ozračivani.

**Tabela 1. Pregled merenja radona u zatvorenim prostorijama: broj mernih mesta po dataj regiji i geološkoj podlozi kao i period ozračivanja detektora**

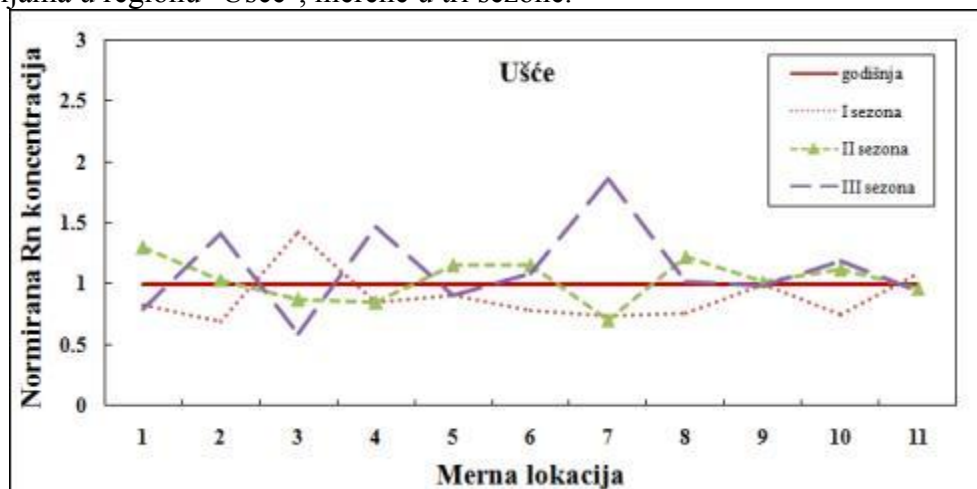
Region	Broj mernih mesta	Geološka podloga	Period ozračivanja detektora			
			I sezona	II sezona	III sezona	IV sezona
Ušće	19	aluvijalni sedimenti	jul-nov	nov-apr	apr-jul	
Zlatibor	12	serpentinske stene	apr-jul	jul-nov	nov-apr	
Niška Banja I	19	aluvijalni sedimenti i travertin (bigar)	mar-maj	maj-okt	okt-jan okt-mar	jan-mar
Niška Banja II	23		nov-mar	mar-jun	jun-nov	

Svaka od regija je izabrana na osnovu neke specifičnosti: "Niška Banja" je region sa povišenom prirodnom radioaktivnošću [14,15] u kojem je zastupljen travertin bogat radijumom; "Zlatibor" sa serpentinski stenama, dok je "Ušće" region u okolini Termo elektrane "Nikola Tesla B" i deponije pepela što odgovara oblasti sa tehnološki povećanim prirodnim zračenjem [16]. Na određenom broju mernih mesta unutar lokacije "Niška Banja I" u toku jedne godine bilo je 4 izmene, ali da bi se dobila veća statistika, III i IV sezona su objedinjenu u jednu sezonu. Iako "Niška Banja I" i "Niška Banja II" odgovaraju istoj oblasti i geološkoj podlozi, ove dve grupe su razdvojene jer su detektori postavljeni u dve različite kalendarske godine.

U ovom radu, sezonski korekcionni faktor je definisan kao odnos srednje godišnje koncentracije za dati region i srednje koncentracije radona za datu sezonu i region. Na taj način definisano, sezonski faktor veći od 1, govori koliko je puta koncentracija radona za datu sezonu manja od srednje godišnje koncentracije radona.

### 3. Rezultati i diskusija

Na slici 1. su prikazane korigovane i normirane koncentracije radona po mernim lokacijama u regionu "Ušće", merene u tri sezone.



**Slika 1. Normirane koncentracije radona merene u regionu "Ušće" u tri sezone korigovane za odgovarajući sezonski faktor. Tako dobijene koncentracije radona su normirane na srednju godišnju koncentraciju date merne lokacije.**

Dobijeni sezonski faktori u regionu "Ušće" se razlikuju unutar 10 % što ukazuje na vrlo malu sezonsku varijaciju koncentracije radona. Unatoč tome, pojedinačno relativno odstupanje srednje godišnje koncentracije radona od procenjene srednje godišnje koncentracije radona dobijene korekcijom merene koncentracije radona pomoću odgovarajućeg sezonskog faktora ide i do 86 %. Ukupno relativno i apsolutno odstupanje između izmerenih i procenjenih srednjih godišnjih koncentracija radona svih mernih mesta u regionu "Ušće" je najmanje za zimsku, odnosno grejnu sezonu merenja (novembar-april). U tabeli 2. su pored srednje godišnje koncentracije radona za dati region izražene preko aritmetičke, geometrijske sredine, i geometrijske standardne devijacije, prikazani sezonski korekcionni faktori i maksimalno relativno precenjivanje i potcenjivanje procenjene koncentracije radona za datu sezonu u odnosu na izmerenu godišnju koncentraciju.

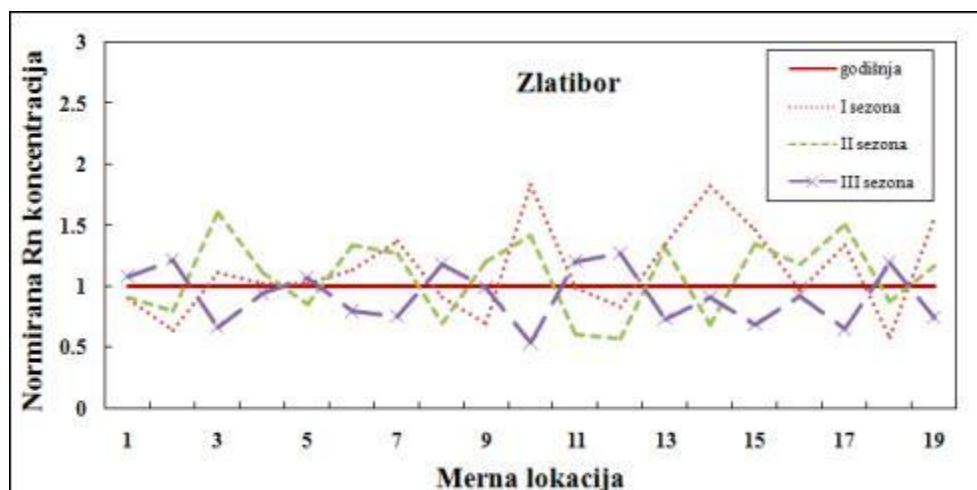
**Tabela 2. Srednja godišnja koncentracija za dati region, sezonski faktori i max relativno odstupanje između izmerene i procenjene godišnje koncentracije radona**

Region	Srednja godišnja koncentracija radona			Sezonski faktor		
	Aritm. sredina (Bq/m <sup>3</sup> )	Geom. sredina (Bq/m <sup>3</sup> )	Geom. stand. devijacija	max. relativno precenjivanje max. relativno potcenjivanje		
				I sezona	II sezona	III sezona
Ušće	48	42	1.74	0.96 42 % 45 %	1.07 30 % 43 %	0.95 86 % 70 %
Zlatibor	69	55	1.99	1.76 84 % 72 %	1.26 61 % 76 %	0.63 26 % 87%
Niška Banja I	808	457	3.23	2.04 118 % 202 %	3.1 183 % 95 %	0.57 9 % 40 %
Niška Banja II	243	143	2.82	0.59 33 % 113 %	1.48 170 % 125 %	1.68 81 % 77 %

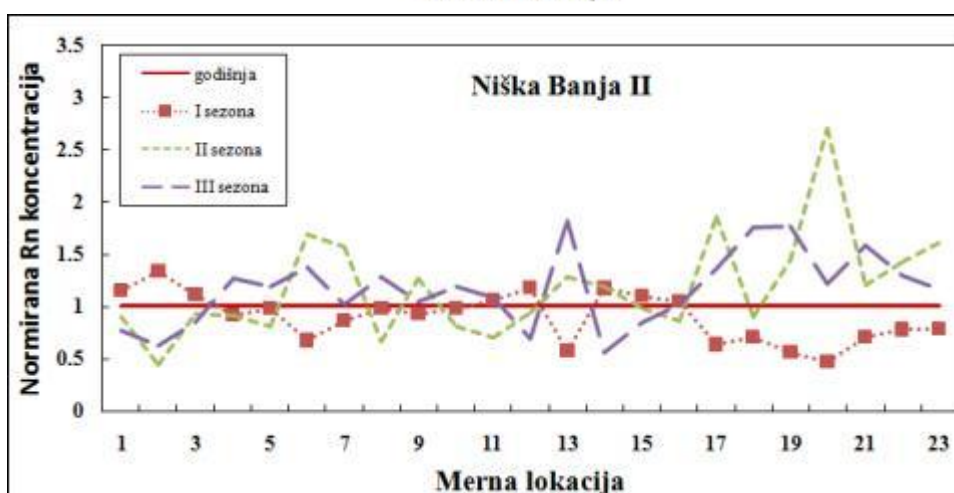
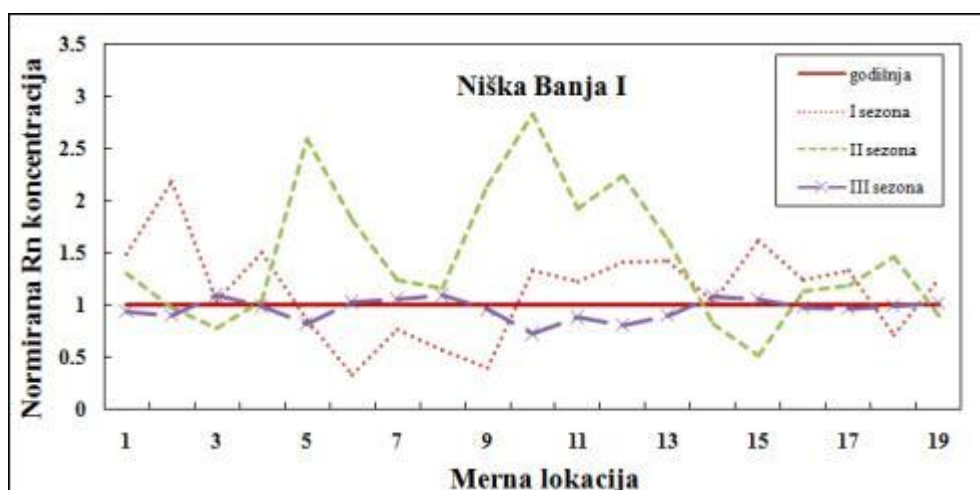
Na slici 2. su prikazane korigovane i normirane koncentracije radona po mernim lokacijama u regionu "Zlatibor", merene u tri sezone, proračunate gore-opisanim metodom. Dobijeni sezonski faktori se u ovom slučaju značajnije razlikuju. Prolećno-letnja sezona u proseku ima 76 % nižu koncentraciju, dok zimsku (grejnu) sezonu u proseku ima 59 % višu koncentraciju od srednje godišnje koncentracije radona. Najmanje odstupanje između izmerenih srednjih godišnjih koncentracija i procenjenih godišnjih koncentracija uvođenjem sezonskog faktora je u zimskoj sezoni merenja od novembra do aprila. Na slici 3. su prikazane korigovane i normirane koncentracije radona po mernim lokacijama u regionu "Niška Banja I" (gornji grafik) i "Niška Banja II" (donji grafik), merene u tri sezone.

U regionu Niške Banje, koja je identifikovana kao zona sa visokim nivoom prirodnog zračenja, uočena je znatna razlika između sezonskih korekcionnih faktora. Između grejne i negrejnih sezona, sezonski korekcionni faktori se razlikuju gotovo 6 puta.





Slika 2. Koncentracije radona merene u regionu "Zlatibor" u tri sezone, korigovane za odgovarajući sezonski faktor i normirane srednju godišnju koncentraciju za datu mernu lokaciju.



Slika 3. Koncentracije radona merene u regionu "Niška Banja I" (gornji grafik) i "Niška Banja II" (donji grafik) u tri sezone, korigovane za odgovarajući sezonski faktor i normirane srednju godišnju koncentraciju za datu mernu lokaciju.

I dok se sezonski korekcionni faktori procenjeni za dve konsektivne zimske (grejne) sezone, praktično ne razlikuju, sezonski faktori za odgovarajuće prolećne, odnosno letnjo-jesenje sezone (iz regiona "Niška Banja I" i "Niška Banja II") se razlikuju i za faktor 2. U slučaju oba regiona "Niška Banja I" i "Niška Banja II", najmanja suma svih apsolutnih i relativnih odstupanja između izmerenih srednjih godišnjih koncentracije i procenjenih godišnjih koncentracija dobijeno je korigovanjem rezultata merenja radona u zimskoj sezoni sa odgovarajućim sezonskim korekcionim faktorom. Maksimalno pojedinačno odstupanje procenjenih koncentracija radona za zimsku sezonu u oblasti "Niška Banja I" ne prelazi 9 % sa gornje strane, odnosno 40 % sa donje strane u odnosu na srednju vrednost, što i dalje zimsku sezonu čini najpovoljnijom za kratkoročno merenje. S druge strane, pojedinačne korigovane koncentracije radona za prolećni i letnje-jeseni period daju i do tri puta veće (odnosno manje) vrednosti od izmerene srednje godišnje koncentracije radona. Primećeno odstupanje između korekcionih faktora za negrejne sezone za dve različite godine izlaganja detektora, mogu da potiču od različitih vremenskih prilika, pa bi tako za topliju/suvlju sezonu bilo učestalije provetravanje prostorija, što bi dovelo do povećanih korekcionih faktora za tu sezonu.

#### **4. Zaključak**

U radu su analizirane sezonske varijacije koncentracije radona u zatvorenim prostorijama u pojedinim ruralnim delovima Srbije definisane kao odnos srednje godišnje koncentracije radona za dati region i srednje koncentracije radona za datu sezonu. Za sva 4 razmatrana regiona (region Niške Banje je podeljen na 2 regiona, jer iako je na istom geografskom području, razlikuju se godine izlaganja detektora) suma svih odstupanja (kako apsolutnih, tako relativnih) između izmerenih srednjih godišnjih koncentracija radona i procenjenih korišćenjem sezonskih faktora je najmanja za zimsku, odnosno grejnu sezonu. Takođe, za isti geografski region, a različitu godinu izlaganja detektora, korekcionni faktor za zimsku sezonu se nije menjao, dok se za negrejne sezone korekcionni faktor menjao i za faktor 2. Sezonski faktor za zimski period ide od praktično 1 za oblast sa vrlo niskom koncentracijom radona u zatvorenim prostorijama, do faktora oko 0.6 za region sa visokim prirodnim zračenjem. Stoga bi se korišćenjem usrednjenog "zimskog" sezonskog faktora za analizirane regione dobilo, u proseku odstupanje do 20 % između procenjene i stvarne godišnje koncentracije radona dok bi u slučaju izlaganja detektora van grejne sezone to odstupanje bili i do 150 %. Dakle, ukoliko ne bi bilo moguće meriti koncentraciju radona tokom cele godine, najbolje bi bilo izlagati detektore tokom grejne sezone, odnosno u periodu oktobar/novembar - mart/april.

#### **5. Zahvalnica**

Autori se zahvaljuju F. Bokikiju (F. Bochicchio) iz Nacionalnog italijanskog instituta za zdravlje u Rimu, Italija i A. Birovljevu iz RadonLab Ltd. iz Osla, Norveška na poklonjenim detektorima. Autori takođe zahvalnost duguju Minisrstvu prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije na finansijskoj pomoći u okviru projekta OI171018 i P 41028.

#### **6. Literatura**

[1] UNSCEAR (United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation Report), Annex B: Exposure due to Natural Radiation Sources. Vol. 1, 2000. United Nation, New York.

- [2] S. Darby et al. Residential radon and lung cancer: detailed results of a collaborative analysis of individual data on 7148 subjects with lung cancer and 14208 subjects without lung cancer from 13 epidemiologic studies in Europe. *Scand. J. Work Environ. Health*. 32 (2006) Suppl1 1-83.
- [3] D. Krewski et al. A combined analysis of North American case-control studies of residential radon and lung cancer. *J. Toxicol. Environ. Health A*, 69 (2006) 533-597.
- [4] J.H. Lubin et al. Risk of lung cancer and residential radon in China: pooled results of two studies. *Int J Cancer*. 109 (2004) 132-137.
- [5] World Health Organisation, *WHO Handbook on Indoor Radon*. 2009. WHO, Geneva.
- [6] European Council. Council Directive 2013/59/Euratom of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing Directives 89/618/ Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom. *Official J. Eur. Union*. 57(L13) (2014) 1–73.
- [7] M. De Cort, V. Gruber, T. Tollefsen, P. Bossew and A. Janssens. Towards a European Atlas of natural radiation: goal, status and future perspectives. *Radioprotection*. 46 (2011) 737–743.
- [8] Z.S. Zunic et al. Research Proposal for National Radon Programme in Yugoslavia, *Vinca Bulletin*. 2 (1) (1997) 521-530.
- [9] P. Bossew et al. Geographical distribution of the annual mean radon concentrations in primary schools of Southern Serbia - application of geostatistical methods. *J. Environ. Radioact*. 127 (2014) 141.
- [10] V. Udovičić et al. National programme for the control of public exposure to radon in Serbia. *Proceedings of V International Congress Biomedicine and Geosciences - Influence of Environment on Human Health*. pp. 32-39, Belgrade, Serbia, 3-4 March 2015.
- [11] J. Pinel, T. Fearn, S.C. Darby, J.C.H. Miles. Seasonal correction factors for indoor radon measurements in the United Kingdom. *Radiat. Prot. Dosim*. 58 (2) (1995) 127-132.
- [12] G.K. Gillmore, P.S. Phillips, A.R. Denman. The effects of geology and the impact of seasonal correction factors on indoor radon levels: a case study approach. *J. Environ. Radioact*. 84 (2005) 469–479.
- [13] G. Jönsson. Indoor radon surveys. In *"Radon measurements by etched track detectors: Applications in radiation protection, earth science, and the environment."* (editors: S.A. Durrani, R. Ilic), pp. 157-177 (1997). Singapore: World Scientific.
- [14] Z.S. Zunic et al. Radon survey in the high natural radiation region of Niska Banja, Serbia. *J. Environ. Radioact*. 92 (2007) 165-174.
- [15] Z.S. Zunic et al. High natural radiation exposure in radon spa areas: a detailed field investigation in Niska Banja (Balkan region). *J. Environ. Radioact*. 89 (2006) 249-260.
- [16] Z.S. Zunic et al. Collaborative investigations on thoron and radon in some rural communities of Balkan. *Radiat. Prot. Dosim*. 141 (4) (2010) 346-350.

## SEASONAL VARIATIONS OF INDOOR RADON CONCENTRATIONS IN SELECTED RURAL REGIONS OF SERBIA

**Igor ČELIKOVIĆ, Predrag UJIĆ and Zora S. ŽUNIĆ**

*"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Belgrade, Serbia,  
icelikovic@vinca.rs*

### ABSTRACT

Radon and its progenies has been recognized as the second leading cause of lung cancer after cigarette smoking. Therefore, it is of the utmost importance to investigate radon in homes and schools and to identify with a high precision radon prone areas. It is thus necessary to cover a lot of measurements locations and in order to obtain average annual indoor radon concentrations, several measurements (at least two) should be performed for each measurement locations. Since detailed survey is very time consuming and expensive, the aim of this contribution is to investigate seasonal variations of indoor radon concentrations in order to conclude to which extent a reliable estimation of annual indoor radon concentration can be obtained by applying seasonal corrections to indoor radon concentration measured in only one season.

Indoor radon concentrations were measured using CR-39 detectors that were deployed mainly in bedrooms and living-room of dwellings in rural parts of R. of Serbia. For each exposure periods, seasonal correction factors have been calculated and used to estimate relative uncertainty between single radon measurements corrected by seasonal factors and measured annual radon concentrations. It is estimated for which exposure period, a seasonally corrected indoor radon concentration will provide the most reliable estimation of annual indoor radon concentration. It is further investigated whether it is possible to apply seasonal factors, obtained from dwellings in one type to dwellings with another type of underlying bedrock.

## MERENJE KONCENTRACIJE RADONA I PROCENA IZLOŽENOSTI U BOGOVINSKOJ PEĆINI

**Vladimir UDOVIČIĆ<sup>1</sup>, Mihailo SAVIĆ<sup>1</sup>, Dejan JOKOVIĆ<sup>1</sup>, Dimitrije MALETIĆ<sup>1</sup>, Radomir BANJANAC<sup>1</sup>, Nikola VESELINOVIĆ<sup>1</sup>, Marina ŽIKIĆ<sup>2</sup>**

1) *Institut za fiziku, Univerzitet u Beogradu, Srbija, udovicic@ipb.ac.rs*

2) *Turistička organizacija Boljevac, Boljevac, Srbija*

### SADRŽAJ

*Merenja koncentracije radona urađena su u Bogovinskoj pećini u istočnoj Srbiji. Dobijeni rezultati su analizirani i na osnovu njih je procenjena efektivna doza za zaposlene radnike i turiste, koja potiče od radona iz vazduha. Srednja vrednost koncentracije radona je  $\sim 3000 \text{ Bqm}^{-3}$ , što je približno srednjoj svetskoj vrednosti koncentracije radona u pećinama. Procenjene efektivne doze su  $9.45 \text{ mSv}$  za zaposlene, odnosno  $9.45 \mu\text{Sv}$  za posetioce, što je oko dva puta manje od granične vrednosti za zaposlene i znatno ispod preporučenih vrednosti za posetioce.*

### 1. Uvod

Merenja koncentracije radona na mestima kao što su podzemni rudnici ili pećine su važna zbog procene radiološke opasnosti prouzrokovane izloženosti radnika i posetilaca. Sa jedne strane, nivo radona u kraškim sistemima zavisi od velikog broja faktora, i spoljašnjih i unutrašnjih, kao što su razlika spoljašnje i unutrašnje temperature, brzina vetra, varijacija atmosferskog pritiska i vlažnosti, zatim osobine stena (karsta), geomorfologija, poroznost i sadržaj radijuma u sedimentima i stenama. Šta više, geološke i morfološke karakteristike pećine igraju važnu ulogu u identifikovanju koncentracije radona. Kompleksna dinamika radona u prirodnim podzemnim prostorima čini da je kontinuirano praćenje koncentracije radona korisno, pa čak i neophodno u pećinama sa stanovišta zaštite od zračenja. Nivo radona u pećinama najviše zavisi od pravca i intenziteta vazдушnih struja. Neka opšta predviđanja koncentracije radona i njene varijacije su moguća ukoliko je poznato kako promene temperature utiču na prirodno provetranje. Ipak, bilo kakav pokušaj preciznijeg predviđanja koncentracije radona na osnovu poznavanja konkretnih uslova je veoma komplikovano i rezultat neminovno prati značajna greška. Posledica je da je za dobijanje pouzdanijih rezultata i procenu nivoa i apsorbovane doze neophodno vršiti neposredna merenja.

Ovu potencijalnu radiološku opasnost prepoznale su Međunarodna komisija za zaštitu od zračenja (ICRP) i Međunarodna agencija za atomsku energiju (IAEA), koje su dale preporuku i sigurnosni standard za radon i njegove potomke. Prema ovim preporukama, godišnja efektivna doza za posetioce u pećinama ne treba prelaziti  $3 \text{ mSv}$ , a za zaposlene (radnike na održavanju, turističke vodiče)  $20 \text{ mSv}$ , usrednjeno u petogodišnjem razdoblju [1].

Merenja vršena u Velikoj Britaniji u većem broju pećina i rudnika pokazala su da postoje velike varijacije koncentracije u zavisnosti od tipa i topologije pećina, odnosno rudnika. Srednja koncentracija u uređenim pećinama je iznosila i do  $22500 \text{ Bqm}^{-3}$ , sa maksimalnim koncentracijama do  $30000 \text{ Bqm}^{-3}$ . U nekim pećinskim sistemima te vrednosti su iznosile  $30000 \text{ Bqm}^{-3}$  i  $35000 \text{ Bqm}^{-3}$  [2].

Hakl i saradnici su sistematizovali izmerene koncentracije radona u pećinama širom sveta te su zaključili da im je distribucija približno log-normalna, sa aritmetičkom sredinom  $2800 \text{ Bqm}^{-3}$ , a vrednosti su bile u rasponu od 100 do  $20000 \text{ Bqm}^{-3}$  [3].

## 2. Metod i merenja

Merenja koncentracije radona vršena su u Bogovinskoj pećini, koja se nalazi u selu Bogovina, 1,5 km od centra sela, na teritoriji opštine Boljevac, u istočnoj Srbiji. Ulaz, na visini od 268 m n.m, je na jugoistočnom obodu masiva Malinika, koji je deo velikog karstnog masiva Južni Kučaj. Pećina je udaljena 6 km od magistralnog puta Paraćin – Zaječar i 14 km od Boljevca.

Vremenske serije merenih koncentracija radona, temperature i relativne vlažnosti u Bogovinskoj pećini dobijene su pomoću uređaja SN1029 (proizvođača Sun Nuclear Corporation). To je merni uređaj jednostavne konstrukcije i primene u praksi. U suštini, radi se o brojaču sa dodatkom senzora za merenje meteoroloških parametara. Nedostatak uređaja je nemogućnost merenja koncentracije radona u zemljištu i vodi. Operater može podesiti vremenske sekvence od 0.5 sati do 24 sati. Jedan ciklus merenja može trajati 1000 sati ili ukupno 720 vremenskih sekvenci (broj sukcesivnih merenja, odnosno tačaka u vremenskoj seriji). S obzirom na očekivane visoke koncentracije radona, uređaj je podešen da radi u vremenskoj sekvenci od 0.5 sati. Jedan ciklus merenja po mernom mestu trajao je 24 sata, kako bi se snimila jednodnevna periodika u varijaciji koncentracije radona. Simultano su mereni temperatura, vazdušni pritisak i vlažnost. Prednost uređaja SN1029 je u velikoj osetljivosti i mogućnošću merenja u uslovima velike vlažnosti vazduha.

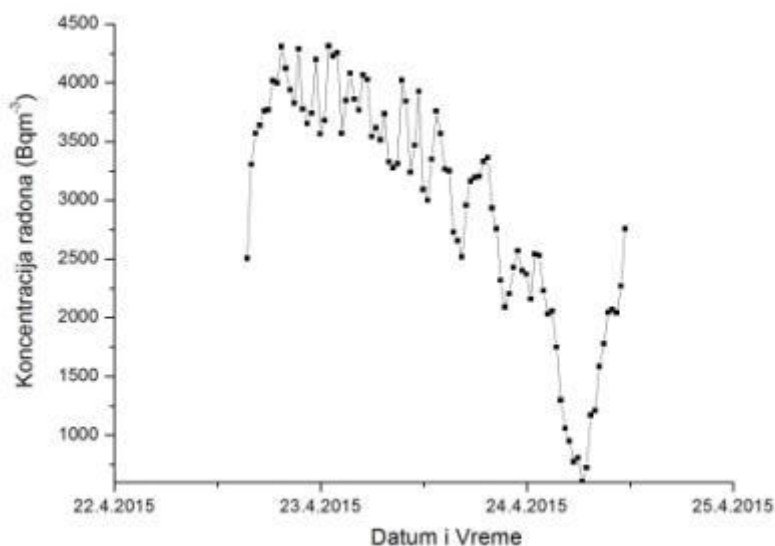
Izboru mernih pozicija prethodilo je merenje ambijentalnog doznog ekvivalenta u pećini. Tom prilikom je detaljno snimljena i topologija pećine. Na osnovu toga su izabrana dva merna mesta. Prvo se nalazilo dublje u pećini u jednom užem hodniku, na oko 350 metara od ulaza, dok je za drugo merno mesto izabrana pozicija u većoj dvorani, na oko 100 metara od ulaza (slika 1.).



**Slika 1. Jedno od dva merna mesta, na udaljenosti oko 350 od ulaza u pećinu**

### 3. Rezultati

Rezultati merenja koncentracije radona u Bogovinskoj pećini predstavljeni su grafički na slici 2. i u tabeli 1.



Slika 2. Vremenska serija koncentracije radona u Bogovinskoj pećini

Tabela 1. Statistika rezultata merenja koncentracije radona u Bogovinskoj pećini

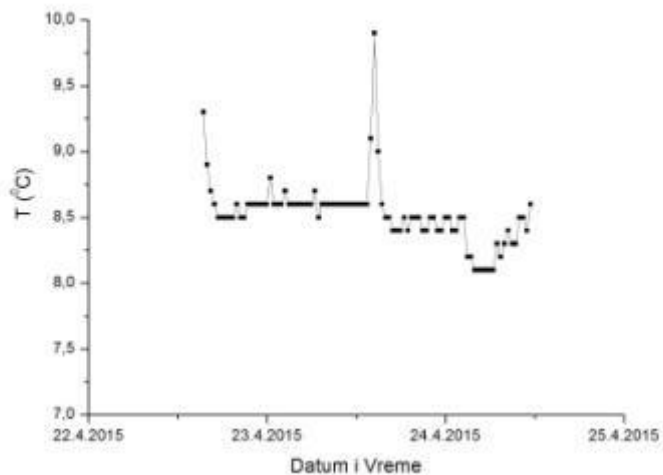
	Koncentracija radona [Bqm <sup>-3</sup> ]				
	Srednja vrednost	Standardna devijacija	Minimum	Medijana	Maksimum
Merno mesto 1	3723.9	377.6	2505.6	3761.4	4313.2
Merno mesto 2	2164.5	776.2	610.8	2250.0	3363.2

Izmerena srednja vrednost koncentracije radona za oba merna mesta iznosi 2982 Bqm<sup>-3</sup>. Na osnovu dobijenih rezultata, korišćenjem formule za računanje efektivne doze  $E$ :

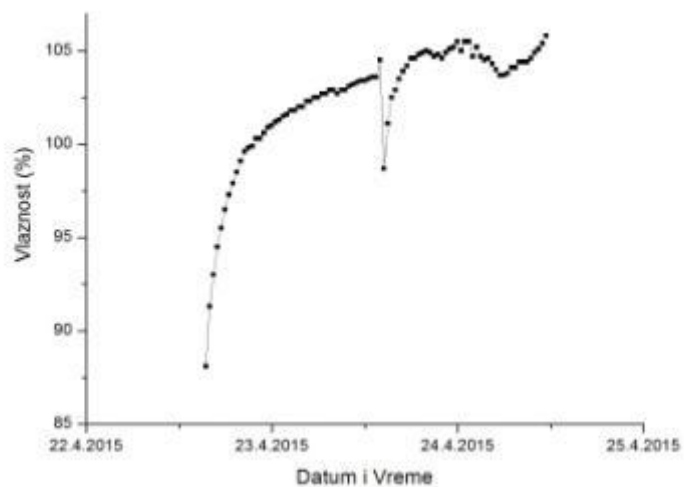
$$E [\text{mSv}] = 7,923 \cdot 10^{-6} \cdot F \cdot c [\text{Bqm}^{-3}] \cdot t [\text{h}],$$

gde su  $F$  ravnotežni faktor ( $F=0.4$ ),  $c$  koncentracija radona i  $t$  vreme ekspozicije. Uz pretpostavku da radna sezona u Bogovinskoj pećini traje šest meseci (sa osmočasovnim radnim danom), a da je vreme posete pećini jedan sat, procenjena efektivna doza za zaposlene iznosi 9.45 mSv na godišnjem nivou, odnosno efektivna doza za posetioce iznosi 9.45  $\mu$ Sv na godišnjem nivou.

Takođe, izmerene su temperatura i vlažnost vazduha u pećini. Rezultati su predstavljeni na slikama 3. i 4., kao i u tabeli 2.



Slika 3. Temperatura vazduha u Bogovinskoj pećini.



Slika 4. Vlažnost vazduha u Bogovinskoj pećini.

Tabela 2. Statistika rezultata merenja temperature i vlažnosti vazduha

	Srednja vrednost	Standardna devijacija	Minimum	Medijana	Maksimum
Temperatura [°C]	8.5	0.2	8.1	8.5	9.9
Vlažnost vazduha [%]	102.4	3.2	88.1	103.4	105.8



#### 4. Zaključak

Merenja koncentracije radona u Bogovinskoj pećini pokazala su da je izmereni nivo radona, 2982 Bqm<sup>-3</sup>, gotovo jednak srednjoj svetskoj koncentraciji radona u pećinama. Takođe, primetna je razlika u koncentracijama radona na dva merena mesta, što je očekivano obzirom na izbor njihovih lokacija. Veća koncentracija izmerena je na mernom mestu koje je udaljenije od ulaza u pećinu, u odnosu na merno mesto bliže ulazu. Temperatura i vlažnost u Bogovinskoj pećini su skoro konstantni i iznose 8.5 °C i 102.4 %, respektivno.

Na osnovu izmerene koncentracije radona, izračunata je i efektivna doza, uz pretpostavljenu radnu sezonu u Bogovinskoj pećini od šest meseci, sa osmočasovnim radnim danom, i pretpostavljeno vreme turističke posete pećini od jednog sata. Ove vrednosti su 9.45 mSv na godišnjem nivou za zaposlene, odnosno 9.45 µSv na godišnjem nivou za posetioce. Dobijene vrednosti su oko dva puta manje od granične vrednosti za zaposlene i znatno ispod preporučenih vrednosti za posetioce, a na osnovu granica koje su propisale međunarodne organizacije koje se bave zaštitom od zračenja.

#### 5. Literatura

- [1] International Commission on Radiological Protection (ICRP). Protection against Radon-222 at Home and at Work. ICRP Publication 65. (1994). Pergamon Press.
- [2] Hakl, J., Csige, I., Hunyadi, I., Várhegyi, A., and Géczy, G.: Radon transport in fractured porous media – Experimental study in caves, *Environ. Int.* 22 (1996) 433–437.
- [3] J. Hakl, I. Hunyadi, I. Csige, G. Géczy, L. Lénárt, A. Várhegyi. Radon transport phenomena studied in karst caves – International experiences on radon level and exposures. *Radiat. Meas.* 28 (1997) 675-684.

### RADON MEASUREMENTS AND EXPOSURE ESTIMATES IN BOGOVINA CAVE

**Vladimir UDOVIČIĆ<sup>1</sup>, Mihailo SAVIĆ<sup>1</sup>, Dejan JOKOVIĆ<sup>1</sup>, Dimitrije MALETIĆ<sup>1</sup>, Radomir BANJANAC<sup>1</sup>, Nikola VESELINOVIĆ<sup>1</sup>, Marina ŽIKIĆ<sup>2</sup>**

1) *Institute of Physics, University of Belgrade, Serbia, udovicic@ipb.ac.rs*

2) *The Tourism Organization of Boljevac, Boljevac, Serbia*

#### ABSTRACT

Measurements of radon concentration were done in Bogovina cave in the region of eastern Serbia. The obtained results were analysed and effective dose, due to radon from the air, is estimated for employees and tourists. Mean value of radon concentration is ~3000 Bqm<sup>-3</sup>, approximately to world mean of radon concentration in caves. Estimated effective doses are 9.45 mSv for employees and 9.45 µSv for tourist visitors, which is well below the recommended values for caves.

## РЕЗУЛТАТИ НАЦИОНАЛНОГ МЕЋУЛАБОРАТОРИЈСКОГ ПОРЕЂЕЊА У МЕРЕЊУ КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНА У ВАЗДУХУ ЗАТВОРЕНИХ ПРОСТОРИЈА БЕОГРАД-НОВИ САД 2015.ГОДИНЕ

**Софија ФОРКАПИЋ<sup>1</sup>, Кристина БИКИТ<sup>1</sup>, Весна АРСИЋ<sup>2</sup>, Јована ИЛИЋ<sup>2</sup>,  
Гордана ПАНТЕЛИЋ<sup>3</sup>, Милош ЖИВАНОВИЋ<sup>3</sup>**

- 1) Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет, Нови Сад,  
Србија, sofija@df.uns.ac.rs
- 2) Институт за медицину рада Србије "Др Драгомир Карајовић", Центар за  
радиолошку заштиту, Београд, Србија, svesna.a@gmail.com
- 3) Универзитет у Београду, Институт за нуклеарне науке Винча, Београд,  
Србија, pantelic@vinca.rs

### САДРЖАЈ

У раду су представљени резултати и закључци са недавно одржане националне интеркомпарације у мерењу концентрације радона у ваздуху затворених просторија у Београду и Новом Саду у току 2015.године. Учесници ове интеркомпарације су три акредитоване лабораторије за ову врсту испитивања у Србији: Институт за медицину рада Србије "Др Драгомир Карајовић", Центар за радиолошку заштиту, Београд; Лабораторија за испитивање радиоактивности узорака и дозе јонизујућег и нејонизујућег зрачења, ПМФ, Нови Сад и Институт за нуклеарне науке Винча Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине, Лабораторија за радијациона мерења, Београд. Све лабораторије у својој пракси користе исту стандардну методу за мерење концентрације радона помоћу адсорпције на активном угљу према US EPA протоколу 520/5-87-005 [1]. Радон се адсорпује на зрнцима спрашеног активног угља и распада на краткоживеће потомке гама-емитере:  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Po}$  и  $^{210}\text{Pb}$ . Концентрација активности радона је одређена гама-спектрометријском методом на основу интензитета пост радонских гама линија потомака  $^{214}\text{Bi}$  и  $^{214}\text{Pb}$ . Калибрација ефикасности гама-спектрометарских система је извршена снимањем ЕРА референтног радиоактивног извора радијума. Свих 14 угљених канистера из сваке лабораторије је било излагано под истим условима један поред другог на 14 различитих локација, углавном учионицама и дневним собама на нивоу приземља. Концентрације активности радона су независно одређене гама-спектрометријски у свакој лабораторији помоћу полупроводничких HPGe или сцинтилационих NaI детектора респективно. Пре слања резултата лабораторије су извршиле корекције на принос влаге и време излагања на основу калибрационих кривих добијених од произвођача угљених канистера. Резултати међулабораторијског поређења су обрађени калкулацијом *u-test* параметра према ИАЕА критеријуму. Мерења са вредношћу *u-test* параметра мање или једнака од 2.58 су сматрана прихватљивим. Добро слагање добијених резултата доказује усклађеност са међународним стандардима и стабилност перформанси аналитичких система у овим лабораторијама. На крају су дискутована ограничења, али и предности, као и могућност примене ове методе адсорпције на угљеним канистрима за процену дозе од удисања радона.

## 1. Увод

Учесници међулабораторијског поређења у мерењу концентрације радона у ваздуху затворених просторија методом адсорпције на активном угљу и гама-спектрометријским одређивањем концентрације радона, која је спроведена у периоду фебруар – март 2015. године у 14 боравишних и радних просторија у Београду и Новом Саду, су три акредитоване лабораторије за ову врсту испитивања. Подаци о лабораторијама и одговорним лицима који су учествовали у реализацији ових мерења дати су у Табели бр.1.

**Табела 1. Подаци о лабораторијама учесницама међулабораторијског поређења**

Ознака лабораторије	Назив лабораторије	адреса	Одговорна лица	Акредитациони број Подаци о методи из Обима акредитације лабораторије
1	Институт за медицину рада Србије "Др Драгомир Карајовић", Центар за радиолошку заштиту	Београд, Делиградска 29	Весна Арсић Јована Илић	01-273 Мерење концентрације радона у ваздуху (гамаспектрометријска метода) ЕПА 520/5-005: 1987
2	Институт за нуклеарне науке Винча, Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине, Лабораторија за радијациона мерења	Београд, Винча Мике Петровића Аласа 12-14	др Гордана Пантелић Милош Живановић	01-327 Испитивање концентрације радона у ваздуху ЕПА 520/5-87-005: 1987
3	Природно-математички факултет у Новом Саду, Лабораторија за испитивање радиоактивности узорака и дозе јонизујућег и нејонизујућег зрачења	Нови Сад, Трг Доситеја Обрадовића 4	др Софија Форкапић МСц Кристина Бикит	01-167 Гама-спектрометријско одређивање концентрације радона у ваздуху ЕПА 520/5-87-005– 1987 одељак 3.4

Све лабораторије примењују исту методу за испитивање концентрације радона и циљ овог међулабораторијског поређења је био проверити слагање резултата мерења на истим локацијама под истим условима излагања угљених канистера. Одабрано је 14 различитих локација (дневне и спаваће собе боравишних просторија или школске учионице) и све просторије су биле у приземљу без подрума (Слика 1).

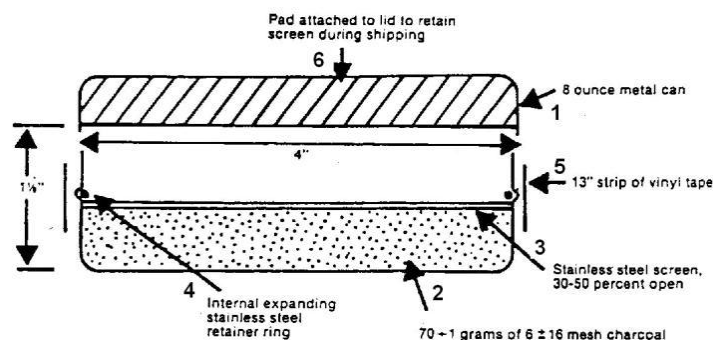
Свака лабораторија је самостално извршила гама-спектрометријско одређивање концентрације радона и доставила резултате мерења заједно са комбинованом мерном несигурношћу (Табела 2).



Слика 1. Излагање угљених канистера у току интеркомпарације

#### 4. Метода мерења

Активни угаљ се налази у канистру, слика 2, који се приликом мерења отвара и поставља на жељену локацију. Радон из ваздуха дифузијом доспева у канистер и адсорбује се на зрнима активног угља чије димензије приближно одговарају максималној ефикасности адсорпције радона  $^{222}\text{Rn}$ . Радон адсорбован на гранулама активног угља се даље распада на краткоживеће потомке:  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Po}$  и  $^{210}\text{Pb}$ . Релативно велик интензитет гама линија радонових потомака  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  ( $^{214}\text{Pb}$  – 295 и 352 keV;  $^{214}\text{Bi}$  – 609 keV) омогућава одређивање концентрације радона гама спектрометријски преко наведених прелаза, јер се већ након три часа успостави равнотежа између радона и потомака у активном угљу.



Слика 2. Пресек канистра са активним угљем: 1 - метална кутија са поклопцем; 2 -  $70 \pm 1$  г уситњеног 6 ц 16 активног угља; 3 - метална решетка, пропустљивости 30 до 50 %; 4 - унутрашњи ширећи прстен; 5 - лепљива винил трака за херметичко затварање и 6 - мекани уметак (стиропор или сунђер) причвршћен за унутрашњу површину поклопца

Након истека предвиђеног времена експонирања, канистри се херметички затварају лепљењем траке уз бележење времена затварања. Тако затворени стоје најмање 3 сата да би се успоставила равнотежа између потомака и радона. Пре мерења измери се маса канистера и одреди промена масе у односу на масу канистера пре отварања.

Гама-спектрометријско мерење затворених угљених канистера након експозиције врши се помоћу полупроводничких или сцинтилационих гама-спектрометријских система. Ефикасност спектрометарског система се пре сваког мерења одређује помоћу стандардног канистера познате активности радијума  $^{226}\text{Ra}$  и фонског канистера, истих димензија као и канистери који служе за мерење. Ако се од брзине бројања стандардног канистера одузме брзина бројања фонског канистера за исто време мерења и разлика подели са познатом активношћу стандарда, добија се ефикасност спектрометарског система за дати дан мерења.

Поступци руковања угљеним канистрима при узорковању радона из ваздуха затворених просторија, као и састав и димензије угљених канистера прописани су стандардним процедурама међународних агенција (нпр. Стандардни Протокол ЕРА 520/5-87-005:1987.) [1]

Пре пуштања у промет сваке произведене серије угљених канистера изврши се калибрација канистера. Према ЕРА стандарду свака серија се обележава различитом бојом винил траке којом се затвара канистер. Сваки канистер се измери, одреди се влажност активног угља и подаци бележе са шифром утиснутом на поклопцу канистера. Калибрација канистера се врши у специјализованој комори која је стабилисана на одговарајућим условима (температура, влажност) и у којој се одржава константна концентрација радона. Концентрација радона  $RN$  [ $\text{Bq/m}^3$ ] се одређује на основу формуле:

$$RN = \frac{I - I_F}{T_s E CF DF} \quad (1)$$

где су

$I$  - укупан спектрални интензитет радонских линија у ( $\text{C/ks}$ ),

$I_F$  спектрални интензитет фона у ( $\text{C/ks}$ ),

$T_s$  – време експозиције канистра у ( $\text{ks}$ ),

$E$  - ефикасност детекције у ( $\text{C/(ks Bq)}$ ),

$CF$  – калибрациони фактор, тј. брзина адсорпције радона у ( $\text{m}^3/\text{ks}$ ) и

$DF$  – фактор распада од полу-времена експозиције до почетка бројања, који се израчунава по формули:

$$DF = e^{-\frac{0.693 t}{T_{1/2}(Rn)}} \quad (2)$$

где су:

$t$  – време протекло од средине експонирања до почетка мерења на детектору и

$T_{1/2}(Rn)$  – период полураспада радона (3.824 дана).

Калибрациони фактори за корекцију на адсорбовану влагу током времена експонирања одређују се на основу калибрационе криве која даје зависност калибрационих фактора од приноса масе канистера након времена експонирања од 48h. Уколико је период експозиције дужи од 48 h, иницијални калибрациони фактор  $CF$  мора бити коригован помоћу друге криве која представља зависност брзине адсорпције радона од времена излагања за константну влажност угља. Влажност угља одређује се на основу приноса воде (Табела 2).

За дато време експозиције са одговарајуће криве влажности очита се фактор подешавања  $AF$ . Корекција иницијалног калибрационог фактора се тада изврши на основу формуле:

$$\text{Krajnji CF} = \text{Inicijalni CF} \frac{\text{AF za dato vreme ekspozicije}}{\text{AF za dva dana (48h) ekspozicije}} \quad (3)$$

**Табела 2. Критеријуми за одабир криве влажности**

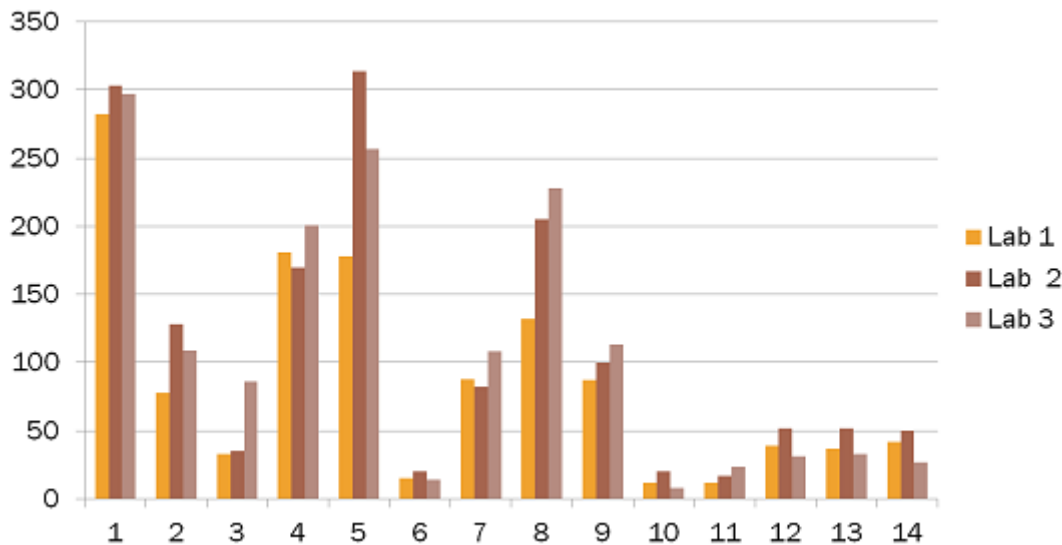
Принос влаге	Релативна влажност
мањи од 1.0 g	20%
1.0 - 4.0 g	50%
већи од 4.0 g	80%

### 6. Резултати међулабораторијског поређења

Резултати одређивања концентрације радона у ваздуху затворених боравишних и радних просторија приказани су и упоређени у Табели 3 и на Слици 3. Изражене мерне несигурности представљају комбиноване мерне несигурности које узимају у обзир грешку одброја у мереним и фонским спектрима, грешку одређивања ефикасности детекторских система и грешку читавања калибрационих фактора. Пошто референтне вредности за концентрацију радона у датим просторијама нису познате, одређене су средње вредности измерених концентрација  $RN_{AV}$  [ $Bq/m^3$ ] са стандардном девијацијом  $\sigma$  [ $Bq/m^3$ ].

**Табела 3. Резултати које су доставиле лабораторије са проценама средњих вредности и стандардних девијација**

Број локације	Ознаке детектора	Лаб 1 $RN_1$ [ $Bq/m^3$ ]	Лаб 2 $RN_2$ [ $Bq/m^3$ ]	Лаб 3 $RN_3$ [ $Bq/m^3$ ]	$RN_{AV}$ [ $Bq/m^3$ ]	$\sigma$ [ $Bq/m^3$ ]
1	175, 65, B16	282±51	303±37	297±32	294	11
2	176, 66, B17	76±14	128±16	109±12	104	26
3	178, 67, B18	33±6	35±11	86±4	51	30
4	188, 68, B19	161±29	170±22	201±6	177	21
5	194, 69, B20	176±32	314±36	257±28	249	70
6	197, 70, B21	< 15	<20	14.3±1.1	-	-
7	163,88, B10	86±15	62±10	108±4	85	23
8	145, 63, B09	132±24	205±24	228±7	188	50
9	165, 89, B08	67±12	100±13	113±4	93	24
10	173, 63, B07	<12	<20	<8	-	-
11	162, 72, B06	<12	<17	23.5±1.5	-	-
12	137, 45, B11	<39	<52	31±4	-	-
13	105, 74, B12	<37	<52	33±4	-	-
14	128, 79, B13	42±8	<50	27±3	-	-



Слика 3. Поређење достављених резултата концентracија радона

### 9. Статистичка обрада резултата

Пошто је за референтну вредност узета средња вредност мерења све три лабораторије које су учествовале у интеркомпарацији, неопходно је одбацити вредности које значајно одступају и на тај начин утичу на истинитост средње вредности. У ту сврху је коришћен тест по Grubb-у за један екстрем који подразумева нормалну расподелу измерених резултата. Израчунате су вредности  $G$  параметра који одређује одступање максималних и минималних вредности према формули:

$$G = \frac{|RN_{\min/\max} - RN_{AV}|}{\sigma} \quad (4)$$

Овако израчуната вредност  $G$  параметра се упоређује са табличним вредностима одређених на основу критичне вредности Студентове  $t_{n-2}$ -расподеле за различите нивое значајности ( $\alpha=5\%$  и  $1\%$ ):

$$G_{crit} = \frac{(n-1)t_{crit}}{\sqrt{n(n-2+t_{crit}^2)}} \quad (5)$$

За коректне резултате прихватају се они резултати који задовољавају услов да је вредност  $G$  параметра:  $G \leq G_{tabl. (5\%)}$ :

Табела 4. Табличне вредности  $G$  параметара

Grubb критичне вредности				
p	Један екстрем		Два екстрема	
	1%	5%	1%	5%
3	1.155	1.155	-	-

Након одбацивања некоректних резултата (оначене црвеном бојом), поново су израчунате средње вредности и стандардне девијације (Табела 5.):

Табела 5. Кориговани резултати након одстрањивања outlier-а

Број локације	Ознаке детектора	Лаб 1 RN <sub>1</sub> [Bq/m <sup>3</sup> ]	Лаб 2 RN <sub>2</sub> [Bq/m <sup>3</sup> ]	Лаб 3 RN <sub>3</sub> [Bq/m <sup>3</sup> ]	RN <sub>AV</sub> [Bq/m <sup>3</sup> ]	σ [Bq/m <sup>3</sup> ]
1	175, 65, B16	282±51	303±37	297±32	294	11
2	176, 66, B17	76±14	128±16	109±12	104	26
3	178, 67, B18	33±6	35±11	86±4	34	1.4
4	188, 68, B19	161±29	170±22	201±6	177	21
5	194, 69, B20	176±32	314±36	257±28	249	70
6	197, 70, B21	< 15	<20	14.3±1.1	-	-
7	163,88, B10	86±15	62±10	108±4	85	23
8	145, 63, B09	132±24	205±24	228±7	188	50
9	165, 89, B08	67±12	100±13	113±4	93	24
10	173, 63, B07	<12	<20	<8	-	-
11	162, 72, B06	<12	<17	23.5±1.5	-	-
12	137, 45, B11	<39	<52	31±4	-	-
13	105, 74, B12	<37	<52	33±4	-	-
14	128, 79, B13	42±8	<50	27±3	-	-

Поређење измерених вредности са референтном средњом вредности може се извршити преко следећих статистичких прорачуна перформанси:

Релативно одступање (Bias) резултата:

$$\text{Relative bias} = \frac{\text{Value}_{lab} - \text{Value}_{ref}}{\text{Value}_{ref}} \times 100\% \quad (6)$$

Z-score вредност:

$$z_{score} = \frac{\text{Value}_{lab} - \text{Value}_{ref}}{\sigma} \quad (7)$$

u-test вредност:

$$u_{test} = \frac{|\text{Value}_{ref} - \text{Value}_{lab}|}{\sqrt{\text{Unc}_{ref}^2 + \text{Unc}_{lab}^2}} \quad (8)$$

Уколико желимо да одбацимо само сигурна одступања од референтне вредности, у овој интеркомпарацији гранична вредност за u-test параметар (тачност) се поставља на 2.58 [3]. Уколико је  $u \leq 2.58$ , резултату се придружује знак А ("Acceptable" – прихватљив), а ако овај услов није испуњен онда се резултату придружује знак N ("Not Acceptable" – неприхватљив).

У Табелама 6, 7 и 8 су приказана поређења резултата лабораторија учесника са референтном средњом вредношћу преко горе описаних перформанси:



**Табела 6. Евалуација резултата за лабораторију 1**

	Референтне вредности		Достављени резултати		Relative bias [%]	z-Score	u-test score
	RN <sub>AV</sub> [Bq/m <sup>3</sup> ]	σ [Bq/m <sup>3</sup> ]	RN [Bq/m <sup>3</sup> ]	σ [Bq/m <sup>3</sup> ]			
1	294	11	282	51	4.1	1.09	0.23
2	104	26	76	14	26.9	1.08	1.32
3	34	1.4	33	6	2.9	0.71	0.16
4	177	21	161	29	9.0	0.76	0.45
5	249	70	176	32	29.3	1.04	0.95
6	85	23	86	15	-1.2	-0.04	0.04
7	188	50	132	24	29.8	1.12	1.01
8	93	24	67	12	30.0	1.08	0.97

**Табела 7. Евалуација резултата за лабораторију 2**

	Референтне вредности		Достављени резултати		Relative bias [%]	z-Score	u-test score
	RN <sub>AV</sub> [Bq/m <sup>3</sup> ]	σ [Bq/m <sup>3</sup> ]	RN [Bq/m <sup>3</sup> ]	σ [Bq/m <sup>3</sup> ]			
1	294	11	303	37	- 3.1	- 0.82	0.23
2	104	26	128	16	- 23	- 0.92	0.79
3	34	1.4	35	11	- 2.9	- 0.71	0.09
4	177	21	170	22	4.0	0.33	0.23
5	249	70	314	36	- 26.1	- 0.93	0.83
6	85	23	62	10	27.1	-1.00	0.92
7	188	50	205	24	- 9.0	- 0.34	0.31
8	93	24	100	13	- 7.5	- 0.29	0.26

**Табела 8. Евалуација резултата за лабораторију 3**

	Референтне вредности		Достављени резултати		Relative bias [%]	z-Score	u-test score
	RN <sub>AV</sub> [Bq/m <sup>3</sup> ]	σ [Bq/m <sup>3</sup> ]	RN [Bq/m <sup>3</sup> ]	σ [Bq/m <sup>3</sup> ]			
1	294	11	297	32	- 1.0	- 0.27	0.09
2	104	26	109	12	- 4.8	- 0.19	0.17
3	34	1.4	86	4	- 153	- 37.14	12.27
4	177	21	201	6	- 13.6	- 1.14	1.10
5	249	70	257	28	- 3.2	- 0.11	0.11
6	85	23	108	4	- 27.1	- 1	0.99
7	188	50	228	7	- 53.2	- 0.8	0.79
8	93	24	113	4	- 21.5	- 0.83	0.82

### 10. Закључак

Резултати националне интеркомпарације у мерењу концентрације радона у 2015. години показују добро слагање резултата на 13 од укупно 14 мерних локација. Гранична вредност за у-тест параметар (тачност) у свим лабораторијама и свим испитивањима задовољава критеријум "Acceptable" – прихватљив, осим у једном мерењу. Ова вредност је одбачена као "outlier", мада не постоји објашњење зашто је дошло до овог одступања. Да се овакви проблеми у статистичкој обради резултата не би понављали, за следећу интеркомпарацију предлажемо да се упоредо са излагањем угљених канистера користи и активна метода за одређивање концентрације радона – где би се тако измерена вредност могла прогласити референтном вредношћу. Такође ради боље статистичке обраде неопходно је излагати неколико угљених канистера из сваке лабораторије.

### 11. Literatura

- [1] David J. Grey, Sam T. Windham, 1987. EERF Standard Operating Procedures for Radon-222 Measurement Using Charcoal Canisters, EPA 520/5-87-005
- [2] SRPS ISO/IEC 17043:2011: Ocenjivanje usaglašenosti – Opšti zahtevi za ispitivanje osposobljenosti
- [3] IAEA, 2007. Report on the IAEA-CU-2006-03 World-Wide Open Proficiency Test on the Determination of Gamma Emitting Radionuclides. International Atomic Energy Agency, Vienna

## RESULTS OF THE 2015 NATIONAL INDOOR RADON INTERCOMPARISON MEASUREMENTS

**Sofija FORKAPIĆ<sup>1</sup>, Kristina BIKIT<sup>1</sup>, Vesna ARSIĆ<sup>2</sup>, Jovana ILIĆ<sup>2</sup>, Gordana PANTELIĆ<sup>3</sup>, Miloš ŽIVANOVIĆ<sup>3</sup>**

- 1) *Laboratory for Radioactivity and Dose Measurements, Department of Physics, Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Novi Sad, Serbia*
- 2) *Serbian Institute of Occupational Health "Dr Dragomir Karajović", Belgrade, Serbia*
- 3) *Radiation and Environmental Protection Department, Vinča Institute of Nuclear Science, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

### ABSTRACT

Results and conclusions of indoor radon interlaboratory comparison 2015 in Serbia are presented. The participants three accredited laboratories from Serbia: Serbian Institute of Occupational Health "Dr Dragomir Karajović", Laboratory for Radioactivity and Dose Measurements at the Faculty of Sciences, University of Novi Sad and Radiation and Environmental Protection Department, Vinča Institute of Nuclear Science. The laboratories are practicing the same method for radon measurement using charcoal canisters according to US EPA protocol 520/5-87-005 [1]. Radon is adsorbed onto the charcoal grains and decays to radon short-lived progenies:  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$ . Calibration of detection efficiency was performed using EPA radium standard. Concentrations of radon activity were determined on the basis of the intensity of short-living radon daughters  $^{214}\text{Bi}$  and  $^{214}\text{Pb}$  gamma-lines. All 14 charcoal canisters from each laboratory were exposed under the same conditions next to each other in 14 different places in rooms or classrooms on the ground floor. The activities of radon concentrations were measured in all three participating laboratories on HPGe and NaI detectors independently. Each laboratory corrects the results with calibration factor and with adjustment factor obtained from canisters manufacturer. The results of intercomparison were evaluated by using the u-test which was calculated according to the IAEA criteria. Measurements with u-score lower than, or equal to 2.58, are considered acceptable. Good agreement of results proves conformity assessment with standards and also the stability of the performance of the analytical systems in these laboratories. Limitations, but also advantages and possibilities of application of this method for human exposure to radon estimation are discussed in this paper.

# КОНТРОЛА КВАЛИТЕТА У ОБЛАСТИ ИСПИТИВАЊА РАДОНА У АКРЕДИТОВАНИМ ЛАБОРАТОРИЈАМА

**Софија ФОРКАПИЋ, Душан МРЂА, Кристина БИКИТ, Бранислава ТЕЊОВИЋ, Иштван БИКИТ, Јан ХАНСМАН**

*Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет, Нови Сад, Србија, sofija@df.uns.ac.rs*

## САДРЖАЈ

*Лабораторија за испитивање радиоактивности узорака и дозе јонизујућег и нејонизујућег зрачења на Природно-математичком факултету у Новом Саду има дугу традицију у области испитивања радона са неколико различитих мерних техника. Као акредитована лабораторија она је развила процедуре за контролу квалитета како би стално проверавала валидност резултата мерења у циљу испуњавања захтева међународног стандарда за лабораторије за испитивање ISO/IEC 17025:2006. Ове процедуре подразумевају понављање поступка мерења коришћењем истих или различитих метода, интерну контролу квалитета са сертификованим референтним изворима, учеиће у међулабораторијским поређењима и међународним тестовима оспособљености и међупровере еталониране опреме [1]. У овом раду су представљени и анализирани резултати интерне контроле квалитета резултата мерења концентрације радона због тога што су аутори сматрали да то може имати велике користи за друге лабораторије укључене у процес акредитације, као и за постизање високе прецизности ових мерења.*

### 1. Увод

Приликом одабира методе мерења концентрације активности радона треба размотрити следеће захтеве: временски период трајања узорковања и мерења, тачност и факторе који утичу на тачност дате методе, сезонске и дневне варијације концентрације радона.

Концентрација радона у ваздуху затворених простора на датој локацији константно варира у току времена. Варијације концентрације радона у највећој мери су условљене променом метеоролошких фактора: притиска, температуре, влажности и вентилације ваздуха.

Дуже време мерења утиче на бољу статистику резултата и прецизније усредњавање концентрације активности радона. Међутим, време мерења се не може теоријски продужавати до у бесконачност и ограничено је горе набројаним факторима који утичу на тачност резултата мерења. Процена оптималног времена мерења се може извршити на основу зависности релативне грешке мерења од времена експонирања (узорковања или мерења у зависности од методе).

### 5. Валидација перформанси метода мерења концентрације радона

Метода мерења концентрације радона помоћу адсорпције на активном угљу је пасивна, дуговременска метода као и траг детектори. Међутим ова метода има знатних предности: краће време мерења, већу осетљивост, нижу цену, нема хемијског развијања нити дуготрајног читавања трагова, узорци се могу користити више пута после одговарајућег температурног третмана и анализа података може бити аутоматизована (применом постојећих софтверских

програма) тако да захтева минимум људског напора. Због тога је ова метода чешће у пракси фаворизована у односу на остале методе мерења концентрације радона.

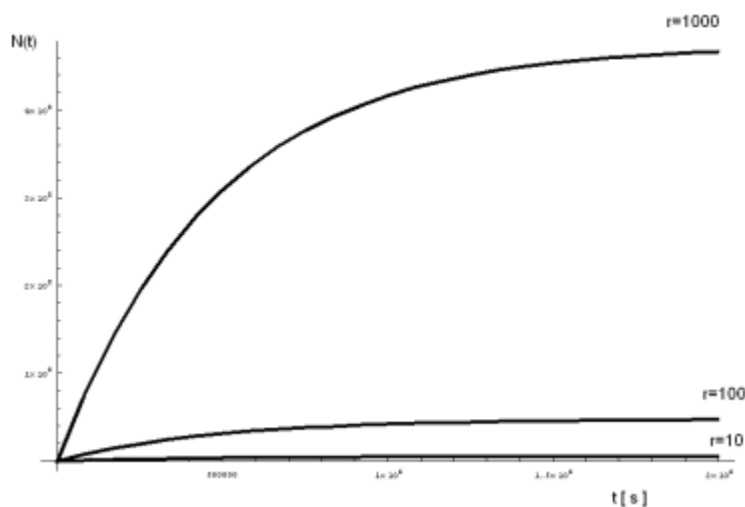
Резултат мерења концентрације активности радона методом угљених канистера мора бити коригован на распад због чињенице да се радон за време експонирања канистера адсорбовао на активном угљу и у исто време распадао са периодом полу-распада упоредивим са временом експонирања. Због тога ова метода узорковања радона захтева брзо гама-спектрометријско мерење концентрације радона са бележењем тачног времена почетка мерења на гама-спектрометру како би се одредио фактор распада (Decay Factor). Фактор распада је једноставна експоненцијална функција од времена која се израчунава за време протекло од половине излагања до почетка мерења на детектору.

Ова корекција је неопходна јер се после одређеног времена експонирања успоставља равнотежа у колектору када концентрација радона достиже максималну вредност. Након тога нема потребе за даљим експонирањем канистера, односно узорковањем радона. На време успостављања сатурације утичу и својства материјала колектора која зависе од мерљивих параметара (ефикасност адсорпције се значајно мења са променом температуре и влажности). Уколико претпоставимо да се температура и влажност активног угља за дати период експонирања не мењају (брзина адсорпције радона на активном угљу  $R = \text{const}$ ) тада ће време достизања сатурације зависити од концентрације радона у ваздуху  $r$  [ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ] и времена експозиције  $t$ :

$$\frac{dN}{dt} = R - \lambda N \quad (1)$$

где су:  $N$  – број атома радона у ваздуху,  $\lambda$  – константа распада радона. Решавањем ове диференцијалне једначине у програмском пакету Mathematica може се приказати временска зависност броја нераспаднутих језгара радона од времена (Слика 1):

$$N(t) \rightarrow (-4.73934 \times 10^9 + 4.73934 \times 10^9 e^{2.11 \times 10^{-6} t}) e^{-2.11 \times 10^{-6} t} \quad (2)$$



Слика 1. Брзина успостављања равнотежне концентрације радона на активном угљу

У реалним условима брзина адсорпције активног угља зависиће од времена експонирања канистера и мора бити коригована на влажност. За дату серију угљених канистера произвођач пре продаје изврши калибрацију на одређеном броју канистера (по 5 канистера за различита времена експонирања 1, 2, 3, 4, 5 и 6 дана) у комори са стабилисаним условима и константном концентрацијом радона. Након истека времена експонирања канистери се херметички затварају и гама-спектрометријском методом се мери концентрација активности адсорбованог радона. На основу измерених вредности неопходно је одредити зависности брзине адсорпције радона у ( $\text{m}^3/\text{ks}$ ) дате серије угљених канистера од приноса влаге (за константно време експонирања), као и од дужине трајања експонирања (за константну влажност угља која се процењује на основу приноса влаге). За дату серију угљених канистера, на основу података добијених од произвођача у програмским пакетима Table Curve и Mathematica нацртане су криве влажности и одређен је најбољи математички фит ових функција Слика бр. 2

$$CF(\Delta m) = a + b\Delta m + c\Delta m^{1.5}; \quad t = 48h = \text{const}$$

$$a = 0.10572463$$

$$b = -0.0052802909$$

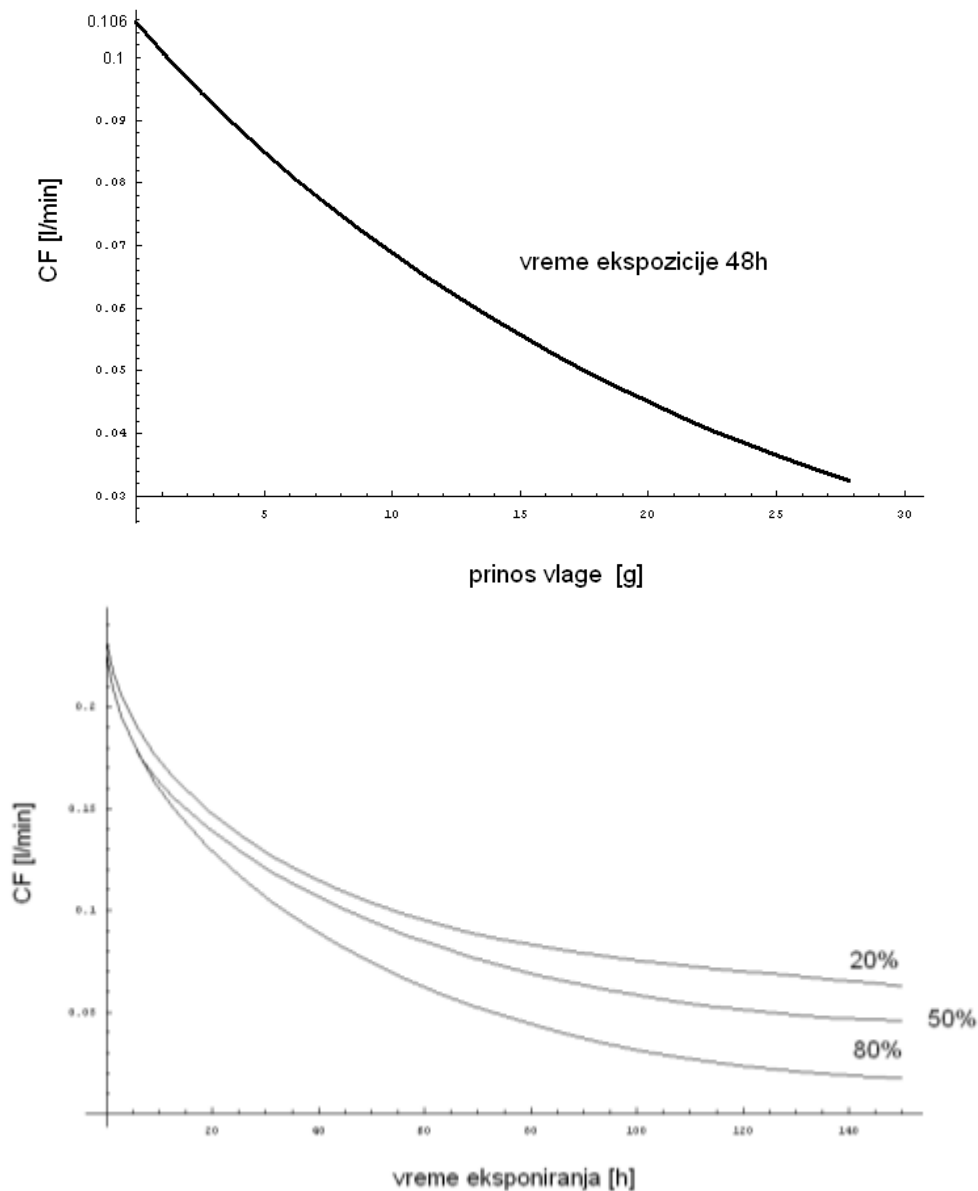
$$c = 0.0005023459 \quad (3)$$

$$CF(t) = a + bt^2 \ln t + ct^{2.5} + dt^{0.5}$$

где је CF – калибрациони фактор, тј. брзина адсорпције радона у ( $\text{m}^3/\text{ks}$ ).

**Табела 1. Вредности параметара фита а, b, c и d за различите приносе влажности**

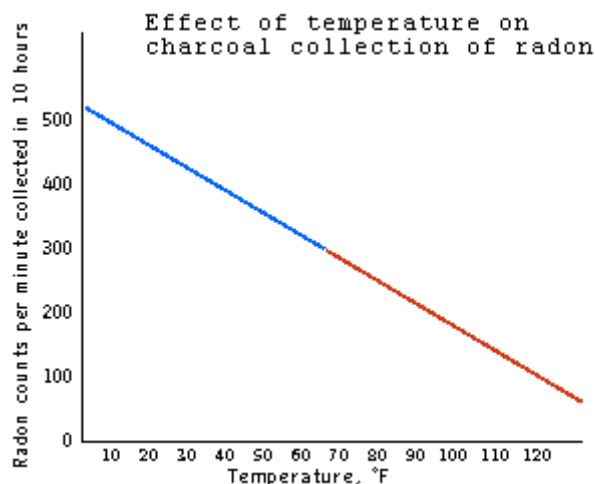
влажност	a	b	c	d
20%	0.24247145	$3.7585016 \times 10^{-6}$	$-1.2218998 \times 10^{-6}$	-0.021789708
50%	0.22358254	$1.0882972 \times 10^{-6}$	$-2.398559 \times 10^{-7}$	-0.019147268
80%	0.23722306	$2.0066105 \times 10^{-6}$	$-5.2890192 \times 10^{-7}$	-0.024515861



**Слика 2 Зависност калибрационог фактора од приноса влаге при константном времену излагања од 48h (горе) и за различите приносе влаге (доле) (Table Curve и Mathematica фит података добијених од произвођача за дату серију канистера)**

Утицај струјања ваздуха на процес адсорпције радона може се смањити посебним дизајном канистра или избегавањем постављања канистра на местима са појачаним струјним током. Употреба дифузионих филтера у великој мери смањује утицај и влажности на адсорпцију активног угља и утицај струјања ваздуха. На тај начин се снижава брзина адсорпције и радона и влаге, а самим тиме продужава време експонирања чиме се побољшава статистика резултата.

Недостатак ове методе је и значајан утицај температуре на адсорпцију активног угља (Слика 3) те због тога ова метода није погодна за употребу на отвореном простору.



Слика 3. Зависност брзине адсорпције радона од температуре [2]

Услед горе поменутих ограничења метода адсорпције радона на активном угљу најчешће се користи само за оцену концентрације радона на датој локацији. Како би се повећала тачност ове методе, спроводе се вишеструка мерења на различитим локацијама у истом временском периоду, као и понављање оваквих серија мерења неколико пута годишње при различитим метеоролошким условима (температура, ветровитост, влажност).

Граница детекције (Minimum Detectable Activity – MDA) концентрације радона за дати спектрометарски систем зависи од брзине одброја у фону за дато време мерења. MDA изражено у [C/ks] за ниво поверења  $3\sigma$  се може проценити на основу формуле:

$$MDA (C / ks) = 3 \times \frac{\sqrt{N_F}}{T_S} \quad (4)$$

где су:  $N_F$  – укупан одброј у фону за радонске линије и  $T_S$  – време мерења фона. Конкретн детекције концентрације радона износи:

$$MDA (C / ks) = 3 \times \frac{\sqrt{30.9 C}}{3ks} = 5.6 C / ks \quad (5)$$

Ако се релативна грешка код методе адсорпције на активном угљу изрази као однос апсолутне грешке мерења и укупног одброја у радонским гама линијама:

$$\frac{\sqrt{N}}{N} = \frac{1}{\sqrt{N}} = \frac{1}{\sqrt{RN \cdot t \cdot t_m \cdot E_F \cdot CF \cdot DF + N_F}}$$

$$\begin{aligned}
 &RN - \text{koncentracija aktivnosti radona} [Bq / m^3] \\
 &t - \text{vreme eksponiranja} [ks] \\
 &t_m - \text{vreme merenja na gama - spektrometru} = 3 ks = \text{const} \\
 &E_F - \text{efikasnost gama - spektrometarskog sistema, na dan procene } 22.4 Bq / m^3 \\
 &CF - \text{brzina adsorpcije radona} [m^3 / ks] \\
 &DF - \text{faktor raspada} \\
 &N_F - \text{odbroj u fonu}
 \end{aligned} \quad (6)$$



и ако се узму у обзир временске зависности брзине адсорпције радона и фактора распада уз претпоставку да је од завршетка експонирања до почетка мерења на гама-спектрометру протекло 3 h – време потребно за успостављање равнотеже између радона и потомака, тада се добија следећа временска зависност релативне грешке мерења:

$$\frac{1}{\sqrt{N}} = \frac{1}{\sqrt{K \cdot RN \cdot t \cdot AF(t) \cdot 2^{\frac{t+3}{91.8}} + N_F}};$$

$$K = \frac{t_m \cdot E_F \cdot CF_i}{AF_i} = const \quad (7)$$

$$CF_i = CF(48h) \text{ за } 50\% \text{ влажности}$$

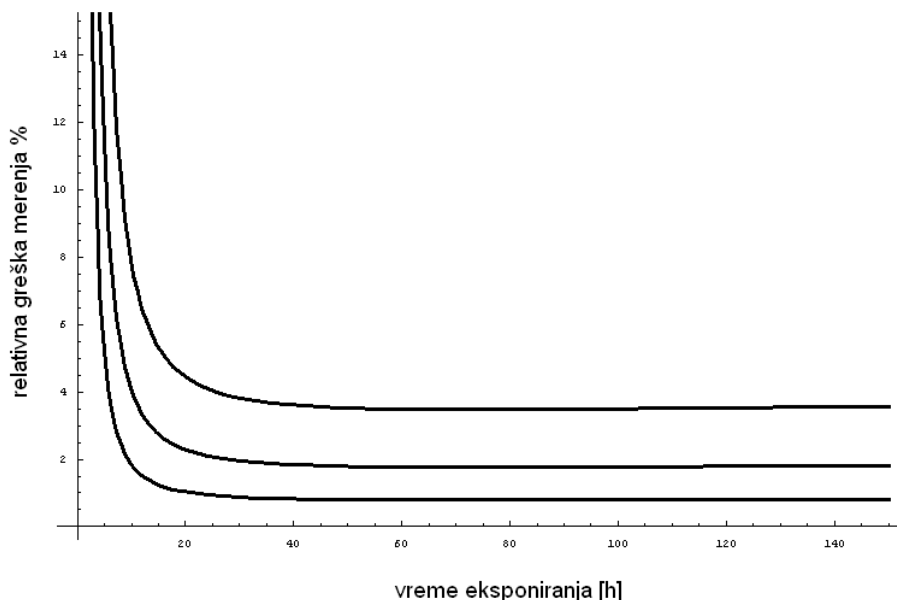
$$AF_i = CF_i$$

За одређене вредности концентрација активности радона као параметара и познате вредности одброја у фону могу се уз помоћ одговарајућих програмских пакета одредити и нацртати криве зависности релативне грешке мерења (изражене у процентима) са временом експонирања:

$$\delta(t) = a + b \cdot t^{2.5} + c \cdot t^3 + \frac{d}{t^2} \quad (8)$$

**Табела 2. Вредности параметара фита а, б, с и д за различите концентрације радона у ваздуху**

Концентрације радона [Bq/m <sup>3</sup> ]	a	b	c	d
50	3.2974637	4.4965585x10 <sup>-6</sup>	-2.9546713 x10 <sup>-7</sup>	451.88076
200	1.6732441	2.2206037 x10 <sup>-6</sup>	-1.4399262 x10 <sup>-7</sup>	237.76209
1000	0.74956006	9.2722727 x10 <sup>-7</sup>	-5.8787653 x10 <sup>-8</sup>	108.95672



**Слика 4. Зависност релативне грешке мерења од времена експонирања угљених канистера**

Мерна несигурност одређивања концентрације радона помоћу алфа спектрометра RAD7 добија се на основу оперативног софтвера инструмента CAPTURE и потиче од статистичке природе распада и оригиналне калибрације инструмента. При коришћењу детектора RAD7 по стандардној процедури из Упутства произвођача [3] главни допринос неодређености мерења има статистика одброја. Утицај параметара околине је занемарљив, док време мерења и одабир протокола доминантно утичу на мерну несигурност:

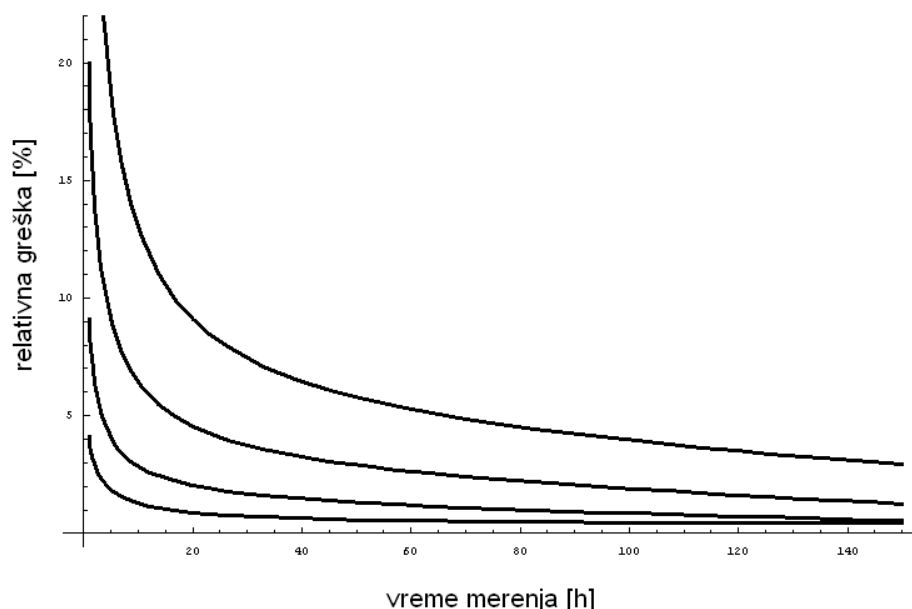
$$\sigma = \sqrt{N + 1} \quad (9)$$

где је N –одброј у алфа спектру радона и потомака. RAD7 даје проширену мерну несигурност  $2\sigma$ , односно на нивоу поверења од 95%. На основу података о калибрацији алфа-спектрометра које доставља произвођач, може се извршити процена утицаја времена мерења на прецизност добијених резултата у зависности од висине концентрације радона као параметра:

$$\delta(t) = a + bt + c \frac{\ln t}{t} + \frac{d}{t} + k \frac{\ln t}{t^2} \quad (10)$$

**Табела 3. Вредности параметара фита a, b, c, d и k за различите концентрације радона у ваздуху**

Концентрација радона [Bq/m <sup>3</sup> ]	a	b	c	d	k
37	3.5531868	-0.01187488	26.817874	37.458693	-14.733963
148	1.9914017	-0.0084540505	12.556097	18.017234	-7.7128906
740	1.0116286	-0.0045802895	4.81057	8.0930902	-1.255821
3700	0.25924651	0.00025488718	2.9653688	3.8404616	-1.7735661



**Слика 5. Зависност релативне грешке мерења од времена мерења за методу мерења са RAD7**

Релативна грешка мерења опада са продужавањем временског интервала мерења. Ефекат сатурације није толико изражен као код методе угљених канистера, осим

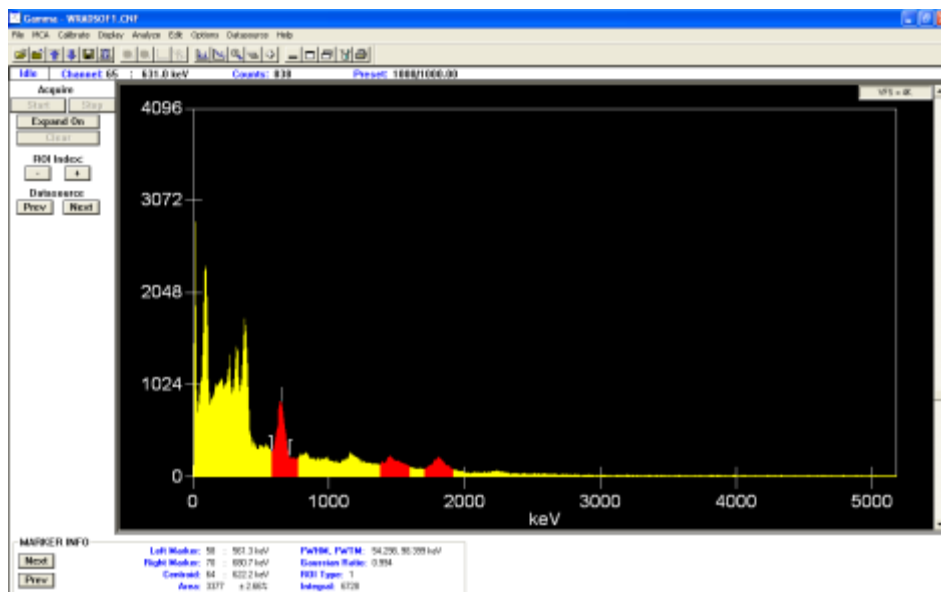
за високе концентрације радона у ваздуху. Дуго време мерења није неопходно код мерења високих концентрација (мерење концентрације радона у земљишту и води) да би се добило на тачности резултата. За таква мерења оптимално време мерења је у циклусима краћим од 1h. При нижим концентрацијама радона у ваздуху продужавањем времена мерења у великој мери се утиче на смањење грешке мерења (приближно око 30%).

### 7. Експеримент контроле квалитета мерења и међупровера опреме

Да би се извршила контрола квалитета мерења концентрације радона осмишљен је следећи експеримент: истовремено је излагано 19 угљених канистера који су прошли различит третман припреме у соби са повишеном концентрацијом радона под истоветним условима - температура, влажност и време излагања 48h (Слика 6). Како би та вредност концентрације била позната укључена су и два активна радонска детектора RAD7 који су на сваких сат времена одређивали концентрацију радона у ваздуху затворене просторије и на тај начин пратили дневне варијације радона. Да би се проверила крива влажности која се користи за одређивање калибрационих фактора, 17 канистера је пре експонирања осушено у сушници на 105°C до константне масе и након тога укупана одређена запремина воде у следећим корацима: 0 g, 0.5 g, 1 g, 1.5 g, 2g, 2.5 g, 3 g, 3.5 g, 4 g, 5 g, 6 g, 7 g, 8 g, 10 g, 15 g, 20 g и 30 g како би се симулирали различити приноси влаге. Поред тога експонирани је и канистер који није прошао претходну процедуру сушења (ознака канистера NN), затим канистери који су били излагани високој и ниској концентрацији радона у периоду пре 6 месеци (ознака канистера Z6 и B11 респективно) и који су били сушени до константне масе у сушници. Концентрација активности радона у угљеним канистрима одређена је гама-спектрометријски (Слика 7) на истом детектору (сцинтилациони детектор у облику јаме са пасивном заштитом од олова) за исто време мерења (600 s). Пошто су оба активна радонска детектора симултано мерила концентрацију радона извршена је и међупровера ове опреме према процедури лабораторије.



**Слика 6. Експериментална поставка за контролу квалитета резултата мерења концентрације радона**



Слика 7. Изглед гама спектра канистера са маркираним радонским линијама

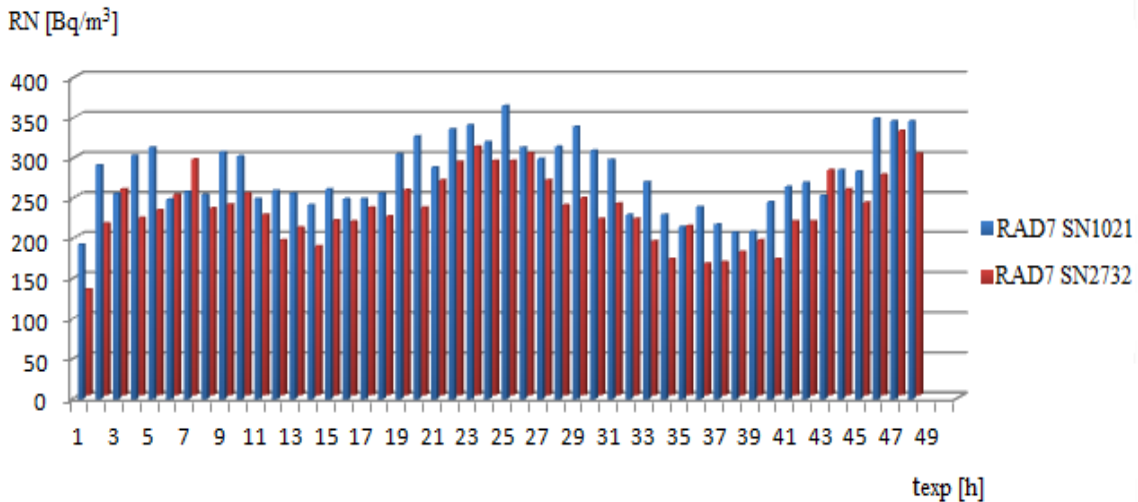
## 12. Резултати контроле квалитета и дискусија

На основу резултата мерења активног радонског детектора RAD7 sn:1021 процењена је средња вредност концентрације радона у просторији где су излагани канистри за дати период излагања у трајању од два дана (48h) на  $280 \text{ Bq/m}^3$ . Ова вредност се може упоредити са израчунатим вредностима на основу измерених гама спектра експонираних канистера и вредности калибрационих фактора са старих калибрационих кривих које се иначе користе у пракси лабораторије. Као принос влаге коришћена је разлика у масама канистера после експонирања и пре укапавања воде. Пошто је позната концентрација радона у ваздуху просторије могуће је обрнутим поступком одредити калибрационе факторе **CF процена** и упоредити их са вредностима са калибрационих кривих за дате приносе влаге и време експонирања канистера (Табела 4).

Резултати међупровере два радонска активна детектора RAD7 sn:1021 и RAD7 sn:2732 дати су на слици бр.8. Уочена су подбацивања резултата мерења новијег уређаја RAD7 sn:2732, што је било познато из претходних учешћа на међународним интеркомпарацијама. Због тога је овај уређај повучен из употребе до еталонирања које је заказано и спроведено у јуну ове године. Резултати корекције калибрационог фактора овог инструмента се још очекују.

**Табела 4. Резултати квалитета резултата мерења концентрације радона методом адсорције на активном угљу**

Ознака канистера	Укапана вода $\Delta m$ [g]	Концентрација радона према старој CF криви [Bq/m <sup>3</sup> ]	CF процена [l/min]	стара CF вредност [l/min]
1	0	278±4	0.086	0.087
2	0.5	264±4	0.081	0.086
3	1.0	274±4	0.083	0.085
4	1.5	306±4	0,092	0.084
5	2.0	320±4	0.095	0.083
6	2.5	298±4	0,088	0.083
7	3.0	336±4	0.096	0,080
8	3.5	338±4	0.096	0.079
9	4.0	334±4	0.093	0.078
10	5.0	324±4	0.085	0.074
11	6.0	334±4	0.087	0.073
12	7.0	390±5	0.096	0.069
13	8.0	310±5	0.077	0.069
14	10	271±4	0.060	0.060
15	15	275±4	0.050	0.050
16	20	413±7	0.069	0.047
17	30	1618C/ks count rate	0.034	-
NN	-	335±4		
B11	-	307±4		
Z6	-	320±4		



Слика 8. Резултати међупровере два активна радонска детектора

### 13. Закључак

У раду је приказан поступак контроле квалитета резултата мерења концентрације радона за две различите методе коришћене у акредитованој лабораторији од валидације перформанси метода до међупровера инструмената и провере утицаја влажности на брзину адсорпције активног угља. Анализом добијених функција може се уочити да релативна грешка мерења након извесног времена експонирања долази у сатурацију и да је оптимално време излагања угљених канистера приближно око 48h. Резултати интерне контроле квалитета показују да се највећа прецизност мерења радона постиже уколико се пре експонирања термички обради канистер који пре није експониран, али такође са задовољавајућом тачношћу се могу и поново користити експонирани канистри наравно уз обраду сушењем до константне масе. Пожељно је поновити експеримент како би се добила нова побољшана калибрациона крива али у радонској комори са контролисаним условима и могућношћу подешвања различите влажности, пошто се очигледно разликује начин адсорпције воде директно укапане у канистер и влаге из ваздуха у зависности од ваздушног притиска. Може се закључити да тек принос влаге од 20 g утиче на моћ адсорпције активног угља.

### 14. Literatura

- [1] SRPS ISO/IEC 17025:2006: Општи захтеви за компетентност лабораторија за испитивање и лабораторија за еталонирање
- [2] David J. Grey, Sam T. Windham, 1987. EERF Standard Operating Procedures for Radon-222 Measurement Using Charcoal ters, EPA 520/5-87-005
- [3] <http://www.durridge.com/documentation/RAD7Manual.pdf>

## QA/QC OF RADON MEASUREMENTS IN ACCREDITED LABORATORIES

**Sofija FORKAPIĆ, Dušan MRĐA, Kristina BIKIT, Branislava TENJOVIĆ,  
Ištvan BIKIT, Jan HANSMAN**

Laboratory for Radioactivity and Dose Measurements, Department of Physics, Faculty  
of Sciences, University of Novi Sad, Novi Sad, Serbia

[sofija@df.uns.ac.rs](mailto:sofija@df.uns.ac.rs)

### ABSTRACT

*Laboratory for Radioactivity and Dose Measurements at the Faculty of Sciences in Novi Sad has a long tradition in radon measurement with several different methods. As an accredited laboratory it has quality control procedures for monitoring the validity of measurements undertaken in order to meet the requirements specified in ISO/IEC 17025:2006 International Standard. These procedures include replicated tests using the same or different methods, internal QA/QC using certified reference materials, participation in interlaboratory comparison or proficiency-testing programmes and intermediate checks of calibrated equipment. The results of this monitoring for radon measurements performed in our laboratory are presented and analyzed in the paper and might have multiple benefit for other laboratories involved in the process of accreditation as well as to achieve higher precision of radon measurements.*

# OPRAVDANOST KORIŠĆENJA EPA KRIVIH ZA KOREKCIJU NA RELATIVNU VLAŽNOST VAZDUHA KOD MERENJA RADONA POMOĆU UGLJENIH FILTERA

**Miloš ŽIVANOVIĆ, Gordana PANTELIĆ, Milica RAJAČIĆ, Jelena NIKOLIĆ, Dragana TODORVIĆ**

*Institut za nuklearne nauke Vinča, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Univerzitet u Beogradu, Srbija, milosz@vinca.rs*

## SADRŽAJ

*Merenje radona  $^{222}\text{Rn}$  pomoću filtera sa aktivnim ugljem je često korišćena skrining metoda. S obzirom na to da se na aktivnom uglju sa radonom kompetitivno apsorbuje vodena para, korekcija na relativnu vlažnost vazduha je integralni deo metode. Korekcija se vrši na taj način što se odredi razlika mase pre i posle izlaganja ugljenih filtera, a zatim se promena mase dovodi u vezu sa određenom relativnom vlažnošću vazduha. Iako bi, u principu, za svaku seriju ugljenih filtera trebalo odrediti zavisnost promene mase od relativne vlažnosti vazduha, veliki broj laboratorija koristi krive koji se nalaze u metodi EPA 520. U ovom radu je ispitana opravdanost korišćenja tih krivih u uslovima srednje relativne vlažnosti vazduha i uz korišćenje recikliranih ugljenih filtera. Rezultati pokazuju da je za izlaganja u trajanju između dva i tri dana birana odgovarajuća kriva, osim u jednom slučaju, dok je za izlaganja duža od tri dana u skoro 50 % slučajeva odabrana kriva za veću relativnu vlažnost vazduha.*

## 1. Uvod

Jedna od često korišćenih skrining metoda za određivanje koncentracije radona je EPA metoda 520 [1]. Ova metoda je zasnovana na korišćenju filtera sa aktivnim ugljem. Naime, filteri se izlažu u periodu od 2 do 7 dana, a na lokalitetu se ne vrše merenja temperature, vlažnosti vazduha ili drugih parametara. Posle izlaganja se vrše merenja emisija radonovih potomaka na gama spektrometru. Uz odgovarajuću kalibraciju detektora, moguće je dovesti u vezu intenzitet emisija radonovih potomaka sa koncentracijom radona. Ova metoda je specifična za  $^{222}\text{Rn}$  [1].

U Laboratoriji za zaštitu od zračenja, organizovana je kampanja merenja radona u dve prostorije u zgradi baždarnice u trajanju od godinu dana. Kampanja je zamišljena tako da se u obe prostorije u svakom trenutku nalazi po jedan ugljeni filter i da izlaganje traje između 3 i 4 dana (moguća su odstupanja iz tehničkih razloga). Ova kampanja ima više ciljeva, među kojima su određivanje doze koju prime zaposleni u baždarnici kao posledicu izlaganja radonu i ispitivanje sezonskih varijacija koncentracije, ali i istraživanje eventualne korelacije između koncentracije radona i temperature i relativne vlažnosti vazduha (u daljem tekstu RH) u baždarnici kao i u spoljnoj sredini. Konačno, planirano je da se ispita korelacija između RH u prostoriji u kojoj se vrše merenja i promene mase ugljenog filtera, što je i predmet ovog rada.

U ovom radu su predstavljeni preliminarni rezultati posle 21 serije postavljanja ugljenih filtera (42 postavljanja ukupno) u cilju ispitivanja opravdanosti korišćenja EPA kalibracionih krivih za različite RH, odnosno EPA kriterijuma za odabir odgovarajuće krive. Takođe je ispitana korelacija između RH i promene mase ugljenih filtera.



## 2. Metoda

Metoda sa filterima sa aktivnim ugljem je vrlo brza u odnosu na druge pasivne metode merenja radona. Relativno je jednostavna kada je u pitanju izlaganje ugljenog filtera, ali i kada su u pitanju naknadna merenja u laboratoriji. Takođe, sami filteri su vrlo jeftini, pa je jedini značajan trošak nabavka gama spektrometra, koji poseduje veliki broj laboratorija u zemlji i regionu. Zbog svega navedenog, ova metoda je prisutna u velikom broju svetskih laboratorija, ali i u nekoliko laboratorija u našoj zemlji.

Pored navedenih prednosti, ova metoda ima i određeni broj mana. Na prvom mestu, metoda ima značajnu mernu nesigurnost. Pored toga, radon se na aktivnom uglju adsorbuje kompetitivno sa vodenom parom i drugim hemijskim vrstama prisutnim u vazduhu. Brzina adsorpcije će takođe zavisiti i od temperature, kretanja vazduha i geometrije prostorije [2].

Na adsorpciju radona (ali i vode) na aktivnom uglju u značajnoj meri utiče temperatura okoline [3]. Međutim, korekcije na temperaturu se ne vrše, s obzirom na to da bi merenje temperature na mestu izlaganja ugljenog filtera drastično povećalo troškove merenja i kada je u pitanju potrebna oprema, ali i kada je u pitanju broj potrebnih radnih sati.

EPA metoda predviđa korekciju samo na relativnu vlažnost vazduha, što je i predmet ovog rada. Korekcija se vrši tako što se obavljaju kalibracije u radonskim komorama sa RH koja je konstantna u toku izlaganja i prati se promena mase ugljenog filtera. Promena mase grubo odgovara količini adsorbovane vode, što se može dovesti u vezu sa RH [1, 2].

U principu, svaka laboratorija bi za svaku seriju ugljenih filtera trebalo da izvrši sopstvenu kalibraciju [4]. Međutim, s obzirom na to da u našoj zemlji ne postoji radonska komora, laboratorije koriste korekzione faktore koji se nalaze u EPA metodi. Ovi korekcioni faktori su dostupni samo za tri RH – 20 %, 50 % i 80 % i svrstani su na tri kalibracione krive. Kriterijum za odabir kalibracione krive je sledeći: ako je promena mase manja od 1 g, koristi se kriva za 20 % RH. Ako je promena mase veća od 4 g, koristi se kriva za 80 % RH. Za mase između dve navedene vrednosti, koristi se kriva za 50 % RH [1]. Ove krive se odnose na statičnu atmosferu, a u dodatku EPA metodi se nalaze kalibracione krive koje odgovaraju aktivnoj atmosferi [5].

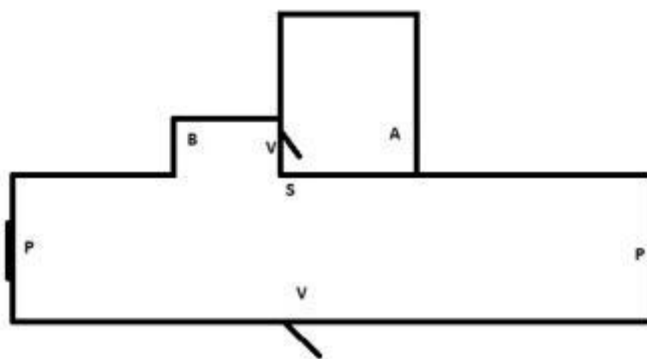
Glavni problem u primeni faktora iz EPA metode je to što se oni odnose na tek kupljene filtere sa aktivnim ugljem, koji sadrže određenu količinu vlage. Nasuprot tome, u laboratorijama u Srbiji se ugljeni filteri recikliraju (suše se posle upotebe 3 časa na 105<sup>0</sup>C). Drugi problem predstavlja činjenica da se RH u toku izlaganja ugljenih filtera menja, dok su korekcioni faktori određeni u uslovima konstantne RH [2].

U ovom radu je poređena RH na mernom mestu sa promenom mase ugljenog filtera i ispitano je da li se na osnovu kriterijuma iz EPA metode bira odgovarajuća kalibraciona kriva.

## 3. Eksperimentalna postavka

Na slici 1 je prikazan raspored prostorija sa bitnim detaljima. Slika nije u razmeri. Pozicije na kojima su postavljeni radonski filteri sa aktivnim ugljem su obeležene sa A i B. Vrata su obeležena sa V, a prozori sa P. Sonda za merenje temperature i RH je obeležena slovom S. Sa slike se vidi da se filter A nalazi u prostoriji bez prozora. Prostorija je zbog zaštite od zračenja okružena debelim zidovima i dobro dihtujućim vratima, koja su zatvorena najmanje 90 % vremena. Van radnog vremena, vrata se ne otvaraju.

Prostorija u kojoj se nalazi filter B ima dva velika prozora, kao i vrata koja vode ka spoljnoj sredini. Sonda za merenje temperature i RH se nalazi na približno dva metra od filtera B, u istoj prostoriji. Cela zgrada ima veštačku ventilaciju, preko koje su prostorije u vezi, ali koja nije u funkciji van radnog vremena. Zbog opisane eksperimentalne postavke, prvo je proverena pretpostavka da je vlažnost u obe prostorije približno ista, tj. da li odgovara merenjima sonde S. Filteri sa aktivnim ugljem su postavljeni u odnosu na zidove i pod u skladu sa preporukama navedenim u EPA metodi.



**Slika 1. Plan prostorija u kojima su izlagani radonski filteri sa aktivnim ugljem (nije u srazmeri)**

#### 4. Rezultati i diskusija

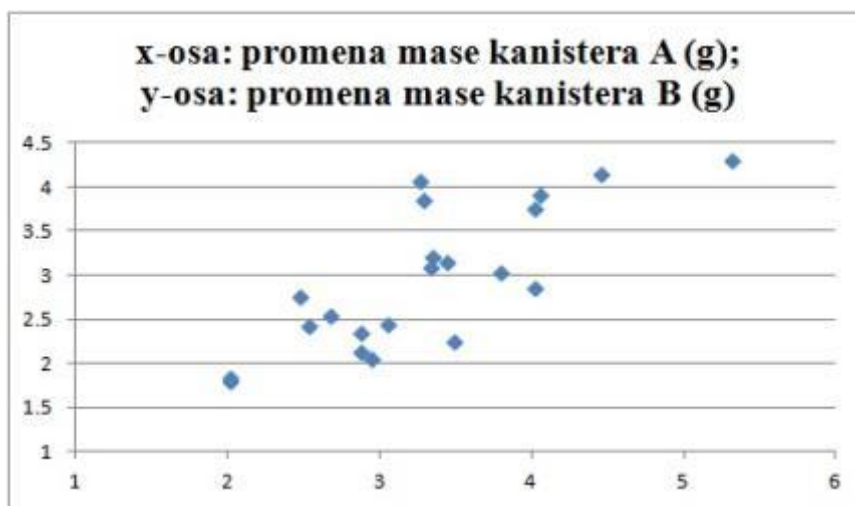
U tabeli 1 je prikazan RH u toku izlaganja i promena mase za oba ugljena filtera. Sonda korišćena za merenje relativne vlažnosti vazduha beleži po jednu vrednost na svaki minut. Zbog toga je izračunata srednja vrednost u toku celog izlaganja, ali i srednja vrednost poslednja 24 h pre zatvaranja i poslednjih 8 h pre zatvaranja ugljenih filtera.

Ugljeni filteri A i B se nalaze u različitim prostorijama, pa se postavlja pitanje da li je korektno porediti promenu mase ugljenog filtera A sa pokazivanjima sonde za merenje RH. Zbog toga su upoređene promene mase ugljenih filtera A i B. Na slici 2 je prikazana funkcija promene mase ugljenog filtera B u odnosu na promenu mase ugljenog filtera A (istovremeno izlaganje oba filtera). Srednja vrednost promene mase za ugljeni filter A je  $(3,3 \pm 0,8)$  g, a za filter B  $(3,0 \pm 0,8)$  g. Istovremeno, Pirsonov korelacioni koeficijent za ove dve vrednosti je 0,784, što označava snažnu pozitivnu korelaciju. Iz svega navedenog, procenjeno je da se vrednosti RH izmerene sondom mogu koristiti i za ugljeni filter A.

Iz tabele 1 se vidi da je RH u svim slučajevima bila između 39 % i 65 %, bez obzira na to da li se posmatra ceo period izlaganja ili samo deo izlaganja. S obzirom na to da tri kalibracione krive odgovaraju RH od 20 %, 50 % i 80 %, sledi da je u slučaju svih 42 izlaganja potrebno odabrati krivu koja odgovara 50 % RH. Međutim, poštujući kriterijum naveden u EPA metodi, odnosno da se za promene mase ugljenog filtera iznad 4 g bira kriva za 80 % RH, osam puta je potrebno odabrati krivu za 80 %. Dubljom analizom rezultata, pokazuje se da je u slučaju izlaganja koja traju dva do tri dana vrednost od 4 g prekoračena samo jednom od 24 puta. Nasuprot tome, za duža izlaganja je po EPA metodi izabrana pogrešna kriva 7 puta od 18 izlaganja. Na osnovu analize rezultata, zaključuje se da je korekciju na vlažnost vazduha moguće raditi po EPA metodi za izlaganja do tri dana, a da je za duža izlaganja potrebno izvršiti dodatne kalibracije.

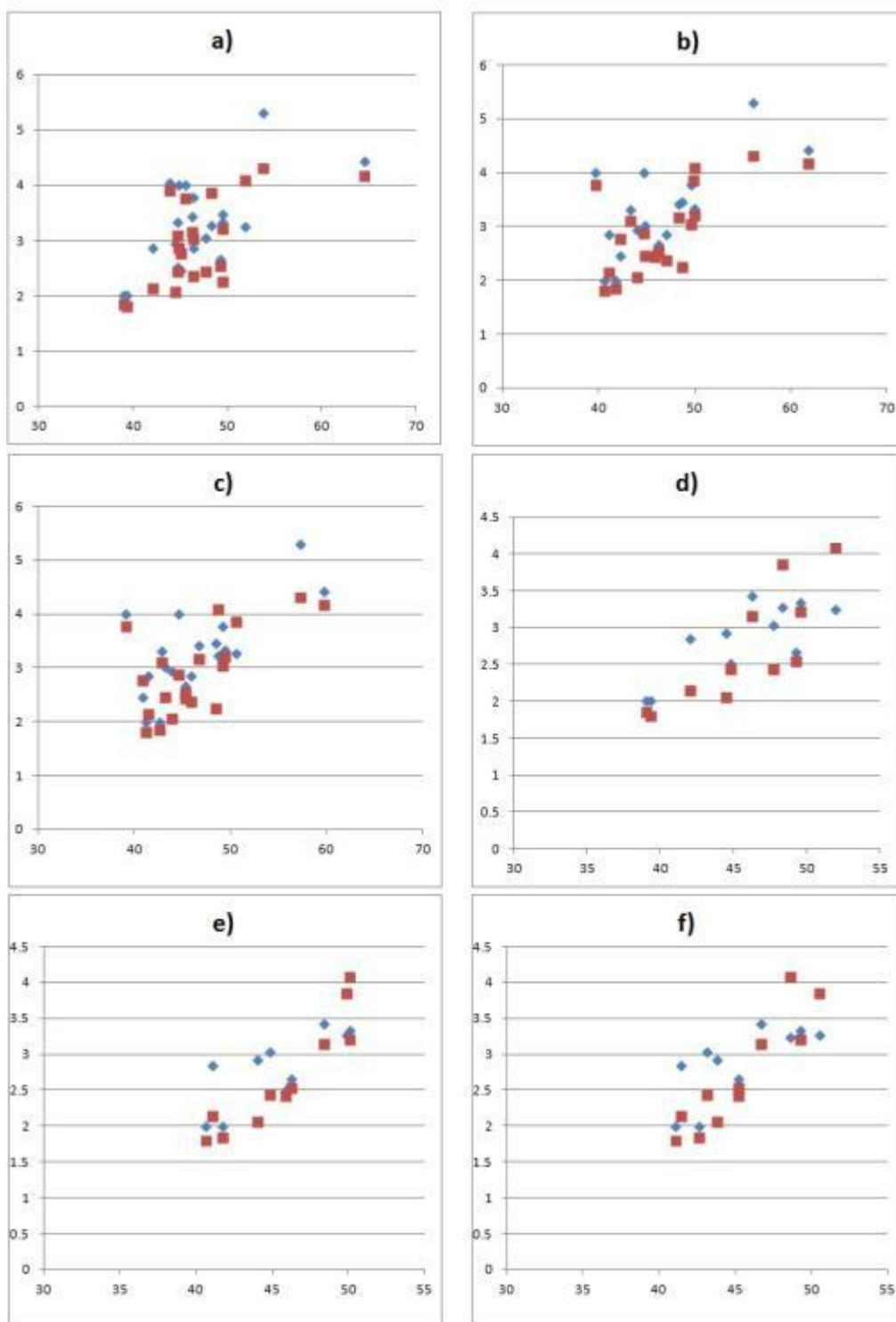
**Tabela 1. Promena mase tokom izlaganja ugljenog filtera i relativna vlažnost vazduha**

Datum i vreme postavljanja	Dužina izlaganja (min)	Promena mase ugljenog filtera (g)		Relativna vlažnost (%)		
		A	B	ceo interval	24 h	8 h
23.2.15. 9:06	3225	3,48	2,26	49,4	48,7	48,4
27.2.15. 14:52	4050	3,34	3,22	49,5	50,0	49,3
2.3.15. 10:22	5681	2,86	2,37	46,3	47,0	45,8
6.3.15. 9:03	4392	2,94	2,07	44,4	44,0	43,8
9.3.15. 10:15	5691	3,33	3,10	44,7	43,3	42,8
13.3.15. 9:016	4276	2,52	2,44	44,7	45,8	45,2
16.3.15. 8:22	5897	2,46	2,78	45,0	42,2	40,8
20.3.15. 10:39	4302	2,01	1,81	39,3	40,6	41,1
23.3.15. 10:21	5751	3,79	3,04	46,4	49,6	49,1
27.3.15. 10:12	4352	2,67	2,55	49,2	46,2	45,2
30.3.15. 10:44	5760	4,01	3,78	45,5	39,7	39,1
3.4.15. 10:44	4287	2,01	1,86	39,0	41,7	42,6
6.4.15. 10:11	4330	2,86	2,15	42,0	41,0	41,4
9.4.15. 10:21	7258	4,04	3,92	43,8	/	/
14.4.15. 11:19	4301	3,43	3,16	46,2	48,3	46,7
17.4.15. 11:00	4260	3,04	2,45	47,7	44,8	43,1
20.4.15. 10:00	5750	4,01	2,87	44,8	44,7	44,6
24.4.15. 10:00	4300	3,28	3,87	48,3	49,8	50,5
27.4.15 9:43	4267	3,25	4,09	51,9	50,0	48,6
30.4.15. 10:00	5746	5,30	4,31	53,7	56,0	57,2
4.5.15. 9:46	5930	4,44	4,17	64,5	61,8	59,7



**Slika 2. Korelacija između promene mase ugljenih filtera A i B**

Na slici 3 je prikazana zavisnost promene mase oba ugljena filtera od izmerene RH. Na graficima od a do c je prikazano svih 42 izlaganja, pri čemu dužina izlaganja varira od 2 do 5 dana. Na graficima od d do f su prikazana samo izlaganja koja su trajala tri dana. Pirsonovi korelacioni koeficijenti su računati posebno za ugljene filtere izlagane na pozicijama A i B za svih šest slučajeva, a rezultati su prikazani u tabeli 3.



**Slika 3. Promena mase ugljenih filtera u zavisnosti od izmerene RH.** Plavi romb označava promenu mase filtera na poziciji A, a crveni na poziciji B. Na x-osi se nalazi RH u procentima, a na y-osi promena mase u gramima. a) srednja RH za ceo interval, sva izlaganja; b) srednja RH za poslednja 24 h, sva izlaganja; c) srednja RH za poslednjih 8 h, sva izlaganja; d) srednja RH za ceo interval, samo izlaganja od tri dana; e) srednja RH za poslednja 24 h, samo izlaganja od tri dana; f) srednja RH za poslednjih 8 h, samo izlaganja od tri dana.

**Tabela 3. Korelacija između promene mase ugljenog filtera A, odnosno ugljenog filtera B sa jedne strane i izmerene RH sa druge strane**

R	Sva izlaganja		Izlaganja od tri dana	
	Ugljeni filter A	Ugljeni filter B	Ugljeni filter A	Ugljeni filter B
Ceo interval	0,623	0,652	0,787	0,825
Poslednjih 24 h	0,661	0,661	0,792	0,922
Poslednjih 8 h	0,677	0,649	0,719	0,918

Posmatranjem korelacionih faktora, primećuje se da svih 12 vrednosti indikuju jaku korelaciju. Međutim, ta korelacija je bolja kada se posmatraju samo kraća izlaganja nego kada se posmatraju sva izlaganja. Takođe, korelacija je bolja za ugljene filtere izlagane na mestu B. Iz navedenog se mogu izvesti dva zaključka. Prvo, bolje korelacije u slučaju kraćih izlaganja govore u prilog tezi da je korekcija u skladu sa EPA metodom adekvatnija u slučaju kraćih izlaganja. Drugo, kao što se može pretpostaviti iz postavke merenja, RH u prostoriji sa ugljenim filterom A nije ista kao RH u prostoriji sa ugljenim filterom B. Međutim, na osnovu do sada izloženog, a i relativno male razlike u korelacionim faktorima, razlike u RH su zanemarljive.

## 5. Zaključak

Prema predstavljenim rezultatima, korišćenje EPA kalibracionih krivih je adekvatno za izlaganja do tri dana. Međutim, za duža izlaganja je u skoro 50 % slučajeva po EPA kriterijumu odabrana pogrešna kalibraciona kriva, što govori da su EPA kalibracione krive neadekvatne za ovakva izlaganja. U tom slučaju bi bilo neophodno napraviti sopstvene kalibracione krive, ili eventualno dopuniti budžet merne nesigurnosti za sva merenja za koja promena mase sugeriše korišćenje krive za 80 %. Međutim, s obzirom na veliku razliku kalibracionih krivih za RH od 50 % i 80 %, posebno za duža izlaganja, ovaj doprinos bi mogao da bude i do 50 % ( $k = 1$ ).

## 6. Literatura

- [1] D.J. Grey, S.T. Windham. EERF Standard Operating Procedures for Radon-222 Measurement Using Charcoal Canisters, EPA 520/5-87-005, 1987. EPA, USA.
- [2] M. Ronca-Battista, D. Gray. The influence of changing exposure conditions on measurements of radon concentrations with the charcoal adsorption technique. *Radiat. Prot. Dosim.* 24 (1-4) (1988) 361-365.
- [3] A. Cooper, T. Ngoc Le, T. Imoto, T. Kosako. Temperature calibration formula for activated charcoal radon collectors. *J. Environ. Radioact.* 102 (2011) 60 - 63
- [4] P. H. Jenkins. A Critique of the "EPA Method" for Analyzing and Calibrating Charcoal Canisters for Radon Measurements, Proceedings of the 2002 International Radon Symposium, American Association of Radon Scientists and Technologists, Reno Nevada, October 27-30, (2002) 09 1-18
- [5] EERF 1989. Addendum to EERF Standard Operating Procedures for Rn-222 Measurement Using Charcoal Canisters, 1989. USA.

# VALIDITY OF USING EPA CALIBRATION CURVES FOR RELATIVE AIR HUMIDITY CORRECTION FOR RADON MEASUREMENTS BY CHARCOAL CANISTERS

**Miloš ŽIVANOVIĆ, Gordana PANTELIĆ, Milica RAJAČIĆ, Jelena NIKOLIĆ, Dragana TODORVIĆ**

*Vinca Institute of Nuclear Sciences, Radiation and Environmental Protection  
Department, Universty of Belgrade, Serbia, milosz@vinca.rs*

## ABSTRACT

Measurements of radon 222 by charcoal canisters are often used for screening purposes. Due to the fact that water vapor is competitively adsorbed on charcoal with radon, relative air humidity correction is an integral part of the method. Correction is performed by determining canister mass difference before and after exposure, and relating this difference with relative air humidity. Relation between these two quantities should in principle be determined for each batch of detectors. However, many laboratories use calibration curves provided by EPA. In this paper, this approach was tested in medium relative air humidity conditions and with the use of recycled canisters. The results show that the appropriate calibration curve was selected when the exposure was between 2 and 3 days, with one exception. For longer exposures, wrong curve was selected in almost 50 % cases.

# KORELACIJA IZMEĐU RADONA U ZATVORENIM PROSTORIJAMA I SADRŽAJA RADIJUMA U ZEMLJIŠTU NA KOSOVU I METOHIJI

**Ljiljana GULAN**<sup>1</sup>, **Gordana MILIĆ**<sup>1</sup>, **Carmela CARPENTIERI**<sup>2</sup>, **Dragoslav NIKEZIĆ**<sup>3</sup>, **Francesco BOCHICCHIO**<sup>2</sup> i **Zora S. ŽUNIĆ**<sup>4</sup>

1) Univerzitet u Prištini, Prirodno-matematički fakultet, Kosovska Mitrovica, Srbija, [ljgulan@gmail.com](mailto:ljgulan@gmail.com)

2) Nacionalni institut za zdravlje, Rim, Italija

3) Univerzitet u Kragujevcu, Prirodno-matematički fakultet, Kragujevac, Srbija

4) Institut za nuklearne nauke VINČA, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija

## SADRŽAJ

*U ovom radu predstavljeni su rezultati merenja koncentracije radona u zatvorenim prostorijama i specifičnih aktivnosti radijuma u tlu u neposrednoj blizini objekata. Koncentracija radona merena je CR-39 detektorima u dva šestomesečna perioda. Specifična aktivnost <sup>226</sup>Ra u određena je gamaspektrometrijskom metodom korišćenjem HPGe detektora. Srednja vrednost godišnje koncentracije radona je 127.5 Bq m<sup>-3</sup> (opseg 30-810 Bq m<sup>-3</sup>) za 63 objekta. Procenjena prosečna specifična aktivnost radijuma u zemljištu u blizini objekata iznosi 32.1 Bq kg<sup>-1</sup>. Opseg vrednosti varira za red veličine (9.3-91.1 Bq kg<sup>-1</sup>). Identifikovane su lokacije sa povišenim vrednostima koncentracije radona u zatvorenim prostorijama koje su posledica povećanog sadržaja <sup>226</sup>Ra u tlu. Za dati broj merenja između koncentracija <sup>222</sup>Rn i sadržaja <sup>226</sup>Ra ne postoji značajna korelacija ( $R^2=0.141$ ). Rezultati su diskutovani kroz slična istraživanja u svetu.*

### 1. Uvod

Radon je radioaktivan plemenit gas koji nastaje direktnom emanacijom iz radijuma. Najjači izvori radona su zemljište i stene duboko ispod objekta koje su bogate uranom i radijumom ili se nalaze u blizini rudnih ležišta. Zbog relativno dugog vremena poluraspada (3.825 dana), radon se može naći daleko od svog izvora. Fisure i rasedi u zemlji ispod objekata omogućavaju efikasan transport procesom difuzije i ulazak radona u zatvorene prostorije. Nagomilavanje dovodi do kontaminacije životnog prostora. Koncentracija radona u zemljištu uglavnom zavisi od vrste zemljišta i regiona. Doprinos radijuma iz zemljišta koncentraciji radona u blizini objekta zavisi od jačine emanacije, debljine i čvrstoće građevinskog objekta. Jedan od načina kojim radon dospeva u prostorije je putem vode i gasa koji se koristi u domaćinstvu [1].

### 2. Geološke karakteristike područja

Raznovrsnost geoloških struktura i građe Kosova i Metohije uslovljena je različitim periodima u njihovom nastanku od kambrijuma (era paleozoik) do holocena u kvartaru. To je jedinstveni prostor karakterističnog tektonskog i magmatskog zbivanja koje uključuje vertikalno i horizontalno rasedanje. Duž uske i duge tektonske zone senonskih depozita fliša protežu se dva raseda pravcem sever-severozapad i jug-jugoistok [2].

### 3. Cilj i metod istraživanja

Istraživanje je sprovedeno u cilju utvrđivanja korelacije, tj. procene stepena geogenog kauzaliteta između koncentracije radona u zatvorenim prostorijama i sadržaja radijuma

u neposrednoj blizini objekata. Merenja su izvedena u 33 ruralna i urbana naselja Kosova i Metohije (slika 1.) u jednogodišnjem periodu od decembra 2010-2011.



**Slika 1. Mapa Kosova i Metohije sa naseljima u kojima je sprovedeno istraživanje**

Koncentracije radona su merene CR-39 detektorima model TASTRAK koji se sastoji od difuzione komore od provodne plastike u obliku kupole dijametra 4.5 cm i 2 cm u čijem kućištu je na dnu smešten CR-39 detektor ( $2.5 \times 2.5 \text{ cm}^2$ , debljine 1mm). Detektori su postavljeni na ormanima u dnevnim i spavaćim sobama, na rastojanju oko 30 cm od zidova (da bi se umanjio doprinos torona) i na visini 1.5-2 m od poda prostorije. Merenja radona su izvršena u ukupno 63 stambena objekata različitih godina izgradnje, od kojih je 82.5% prizemnih. Kompletna merenja sprovedena su u 54 objekata uz polugodišnju zamenu detektora. U ostalih 5 objekata merenja su izvršena ili u jednom periodu i/ili u jednoj prostoriji.

Nakon perioda izlaganja detektori su nagrizeni hemijski u vodenom kupatilu 1 h u 6.25 M rastvoru NaOH na 98 °C. Da bi se prekinulo nagrizenje detektori su oprani vrelom destilovanom vodom, 30 minuta zadržani u 2% vodenom rastvoru sirćetne kiseline uz neprekidno mešanje, a zatim stavljeni u komoru za sušenje sa ventilatorom [3]. Nagrizenje i brojanje tragova, kao i procena koncentracije radona izvršena je od strane italijanskog Nacionalnog instituta za zdravlje. Kalibracija difuzionih komora je izvršena izlaganjem u komorama sa visokom koncentracijom radona; vrednosti kalibracionog izlaganja kretale su se od 300 do 65000 kBq h m<sup>-3</sup>.

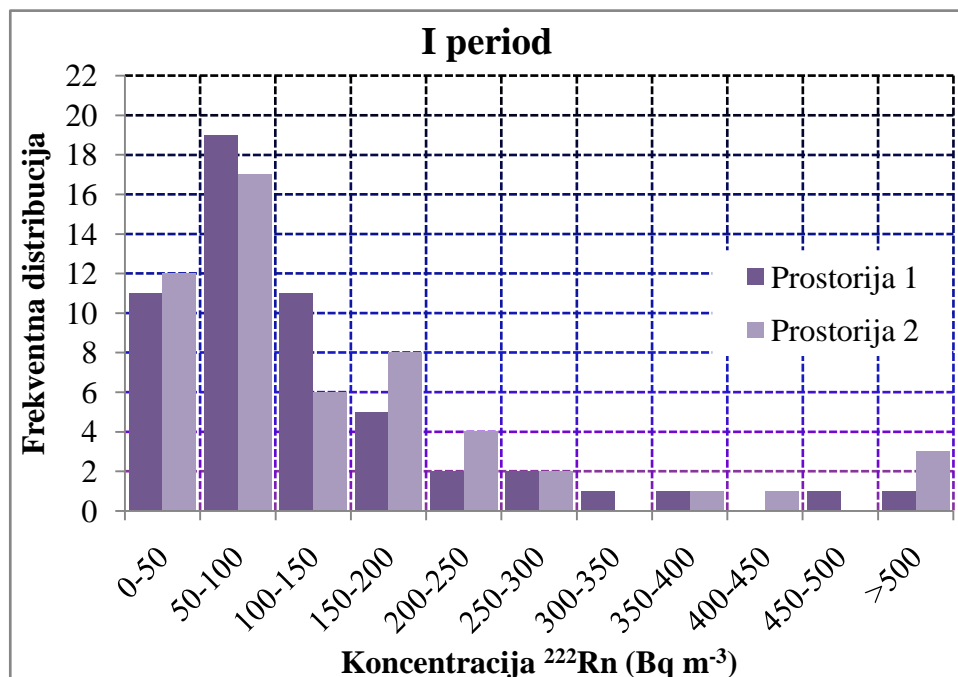
Površinski uzorci zemljišta (0-5 cm) prikupljeni su u neposrednoj blizini objekata (na rastojanju 2-3m) krajem aprila 2011. godine po standardnoj metodi koju je preporučila i propisala Međunarodna agencija za atomsku energiju, IAEA [4]. Za objekte u susedstvu (uglavnom različitih godina izgradnje) uzet je jedan uzorak zemljišta. Gama-spektrometrijska merenja su izvršena HPGe detektorom (model GEM30-70, ORTEC)



prema standardnoj metodi [5]. Kalibracija detektora je izvršena kalibracionim izvorom češkog metrološkog instituta (tip 2 MBSS). Detektor je zaštićen olovnom kućištem debljine 10 cm u cilju smanjenja prirodnog fona. Snimanje spektra za svaki uzorak i za fon je trajalo 10800 s. Specifična aktivnost  $^{226}\text{Ra}$  u uzorcima je određena kao prosečna aktivnost iz dve odvojene gama linije:  $^{214}\text{Pb}$  na 351.9 keV i  $^{214}\text{Bi}$  na 609.3 keV.

#### 4. Rezultati i diskusija

Frekventne raspodele koncentracije radona u prostorijama po periodima (I period (zima-proleće) i II period (leto-jesen)) predstavljene su na slikama 1. i 2., respektivno.

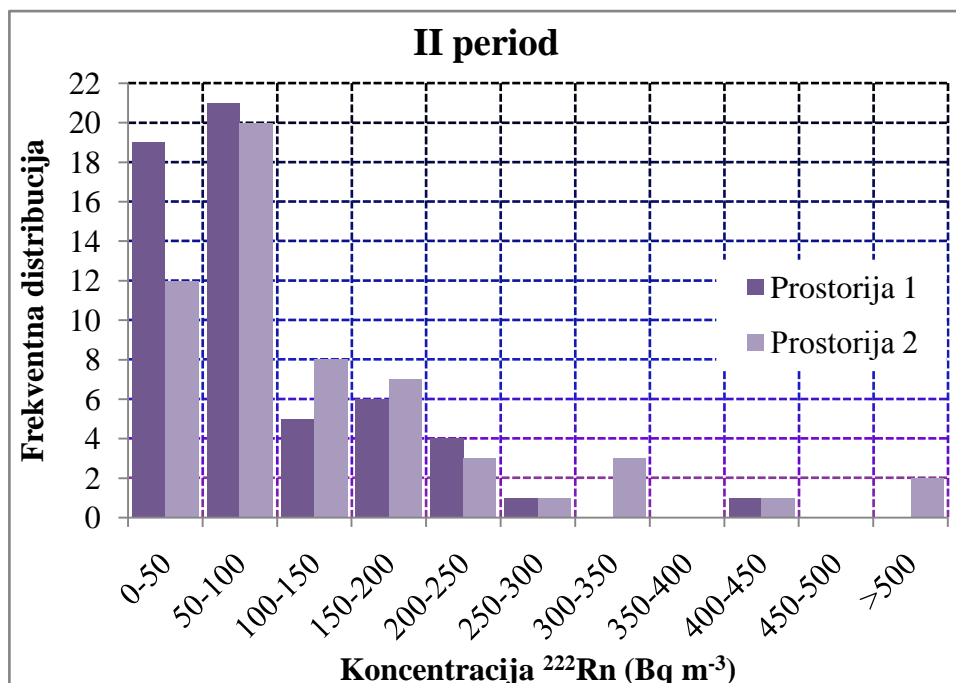


**Slika 2. Frekventna raspodela koncentracije radona u prostorijama u I period**

Koncentracije radona su približno jednake u obe prostorije u većini objekata. Međutim, na nekim lokacijama u jednoj prostoriji su izmerene relativno veće koncentracije radona ( $>100 \text{ Bq m}^{-3}$ ) u odnosu na drugu (u oba perioda), što ukazuje da postoji pojačan izvor radona u objektu. Uočava se pomeranje raspodele ulevo za vrednosti do  $150 \text{ Bq m}^{-3}$  za II period, tj. generalno u ovom periodu su izmerene manje koncentracije radona.

Prema tabeli 1. razlika u srednjim vrednostima po periodima je evidentna i manje-više očekivana, jer je I period hladniji i tada većina stanovnika koristi čvrsto gorivo za zagrevanje prostorija, uz slabo provetravanje. Srednja vrednost godišnje koncentracije radona za 63 objekta je  $127.5 \text{ Bq m}^{-3}$  (opseg  $30\text{-}810 \text{ Bq m}^{-3}$ ). Srednja vrednost greške merenja iznosi 10.5% (opseg 9-17%) od vrednosti izmerene koncentracije. Najmanje vrednosti prosečnih godišnjih koncentracija radona su na lokacijama Lešak ( $30 \text{ Bq m}^{-3}$ ) na prvom spratu objekta i Laplje Selo ( $33 \text{ Bq m}^{-3}$ ) u prizemlju objekta. Najveća prosečna godišnja koncentracija radona je u suterenu jednog objekta na lokaciji Grabovac ( $810 \text{ Bq m}^{-3}$ ). U neposrednoj blizini u drugom objektu za merno mesto na prvom spratu izmerena je relativno velika koncentracija radona ( $271 \text{ Bq m}^{-3}$ ), što govori o „anomaliji“ radona na ovim lokacijama. Visoke vrednosti radona odgovaraju lokacijama u blizini aktivnih raseda [6]. Analizom rezultata merenja srednje godišnje

koncentracije radona su  $>200 \text{ Bq m}^{-3}$  na još 6 lokacija (Goraždevac, Joševik, Lipljan, Radevo, Gojbulja i Brđani). To čini 14.3% merenja koje prevazilaze propisani akcioni nivo za radon. Upoređenja sa specifičnim aktivnostima radionuklida ukazuju da je na ovim lokacijama zemlja dominantan izvor radona u zatvorenim prostorijama.



Slika 3. Frekventna raspodela koncentracije radona u prostorijama u II periodu

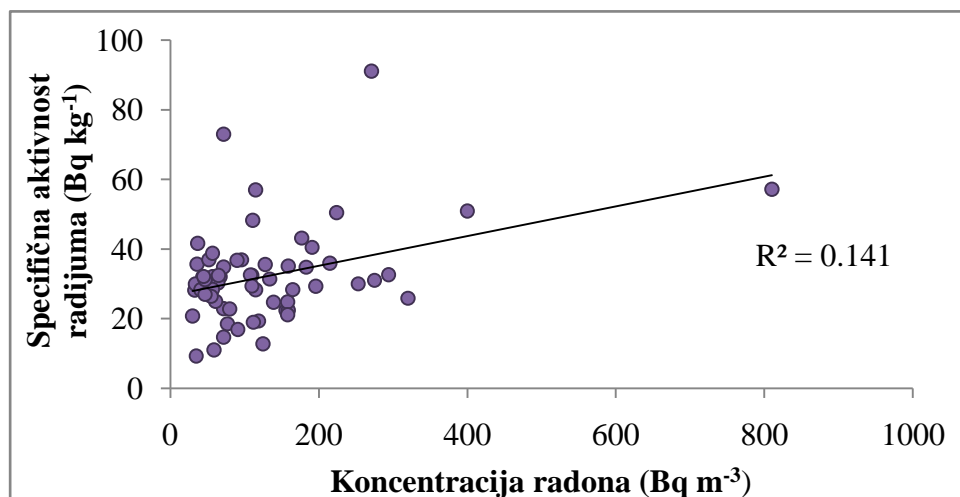
Tabela 1. Deskriptivne statistike aktivnosnih koncentracija radona i radijuma na 63 lokacije na Kosovu i Metohiji

Aktivnosna koncentracija	$^{222}\text{Rn}$ ( $\text{Bq m}^{-3}$ )			$^{226}\text{Ra}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )
	I period	II period	Godišnja koncentracija	
Broj objekata	59	58	63	63
Minimum	28	21	30	9.3
Maksimum	881	740	810	91.1
Medijana	102	71	96	30.2
Srednja vrednost	141.3	115.5	127.5	32.1
Standardna devijacija	139.7	113.5	118.4	13.4
Geometrijska sredina	104.9	85.3	97.3	29.7
Geometrijska standardna devijacija	2.1	2.1	2.0	1.6

Specifične aktivnosti  $^{226}\text{Ra}$  (Tabela 1.) varirale su od najnižih vrednosti u Jarinju ( $9.3 \text{ Bq kg}^{-1}$ ) do  $\approx 10$  puta većih vrednosti u Grabovcu ( $91.1 \text{ Bq kg}^{-1}$ ). Veliki opseg vrednosti govori o neravnomernoj raspodeli, koja je evidentno lokalnog karaktera. Izdvajaju se lokacije u okolini Kosovske Mitrovice (slika 1.) sa većim vrednostima specifičnih aktivnosti radijuma (Grabovac, Gojbulja i Brđani) u odnosu na severnije delove ovog regiona (Jarinje i Joševik). Srednja vrednost za  $^{226}\text{Ra}$  ( $32.1 \text{ Bq kg}^{-1}$ ) približno je jednaka prosečnoj svetskoj vrednosti

(32 Bq kg<sup>-1</sup>) [7]. Visoke koncentracije radijuma u zemljištu dovode se u vezu i sa gore pomenutom zonom dubokog raseda i zonom seizmogenog raseda [2]. Rasede je proizvela vulkanska aktivnost, karakteristična za ovo područje. Rased je izuzetno permeabilna sredina koja radionuklidima omogućava pokretljivost ka površini, uz relativnu mobilnost samih radionuklida i njihovih produkata raspada.

Slika 4. prikazuje korelaciju ( $R^2=0.141$ ) između koncentracija radona u zatvorenim prostorijama i radijuma u zemljištu u neposrednoj blizini 63 objekta. Pirsonov koeficijent korelacije između <sup>226</sup>Ra i <sup>222</sup>Rn iznosi  $r = 0.376$  i ukazuje na slabu pozitivnu korelaciju između parova promenljivih.



**Slika 4. Korelacija između koncentracije radona u zatvorenim prostorijama i koncentracije radijuma u zemljištu**

Slične studije su sprovedene u svetu. Istraživanje koncentracije radona u zatvorenim prostorijama i radijuma u tlu u blizini 97 objekata sprovedeno je u Trabzonu (Turska); Pirsonov koeficijent korelacije između <sup>226</sup>Ra i <sup>222</sup>Rn iznosi 0.682 [8]. Istraživanje u Giresunu (Turska) je obuhvatilo merenja radona u 71-nom objektu i određivanje sadržaja radionuklida u tlu (sloj 0-15 cm) u njihovoj neposrednoj blizini; zaključeno je da postoji pozitivna korelacija ( $R^2=0.54$ ), ali srednja vrednost radona pokazuje znatne razlike u odnosu na sadržaj radijuma. Koncentracije radona su znatno veće u objektima sagrađenim na zemljištu sa većim sadržajem radijuma, nego gde je sadržaj manji [9]. U istraživanju sprovedenom u Norveškoj [10] utvrđene korelacije između radona u zatvorenim prostorijama i geologije (sadržaja radijuma i permeabilnosti zemljišta u okolini objekta) ukazuju da su geološki podaci korisni u identifikaciji područja sklonim radonu, iako ne mogu obezbediti procenu nivoa radona u objektima. U centralnom delu Indije [11] u istraživanju radona i torona u zatvorenim prostorijama sa sadržajem urana i torijuma u tlu nije utvrđena pozitivna korelacija. Izveden je zaključak da difuzija radona iz tla u zatvorene prostorije velikim delom zavisi od vrste podnog materijala u prostoriji. Suprotno ovim, u drugoj oblasti u Indiji (Garhval Himalaji) statistička interpretacija pokazuje jaku korelaciju između radona u zatvorenim prostorijama i jačine ekshalacije, što ukazuje na lokalni doprinos zemljišta [12].

## 5. Zaključak

Nije utvrđena značajna korelacija ( $r = 0.376$ ) između koncentracija radona u zatvorenim prostorijama i sadržaja radijuma u tlu u neposrednoj blizini objekata na 63 lokacije na Kosovu i Metohiji. Međutim, na pojedinim lokacijama gde su izmerene veće koncentracije radona upoređenja sa specifičnim aktivnostima radijuma ukazuju da je zemlja dominantan izvor radona u zatvorenim prostorijama. Na drugim lokacijama se ne može utvrditi stepen geogenog kauzaliteta, jer uz geologiju, na nivo radona utiču lokalni varijabilni faktori: kao što su klimatski uslovi, dizajn i konstrukcija objekta, uslovi korišćenja, itd.

## Zahvalnica

Ovaj rad je urađen u okviru projekta III41028 Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije.

## 6. Literatura

- [1] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Report: Effects of ionizing radiation ANNEX E. Sources-to-effects assessment for radon in homes and workplaces. 2006. NY: UN.
- [2] Geološki Atlas Srbije, Ministarstvo za zaštitu prirodnih bogatstava i životne sredine Republike Srbije, Bareks, Beograd 2002.
- [3] Carpentieri C., Zunic Z.S., Carelli V., Cordedda C., Ferrigno G., Veselinovic N., Bossew P., Tollefsen T., Cuknic O., Vojinovic Z. and Bochicchio F., Assessment of long-term radon concentration measurement precision in field conditions (Serbian Schools) for a survey carried out by an international collaboration. *Radiat. Prot. Dosim.* (2011) 145: 305–311.
- [4] IAEA 295, International Atomic Energy Agency, Measurement of radionuclides in food and the Environment. A guide book, Technical report series, 1989. IAEA, Vienna.
- [5] ASTM C 1402 – 04 Standard Guide for High Resolution Gamma Ray Spectrometry of Soil Samples.
- [6] Catalano R., Imme G., Mangano G., Morelli D. and Rosselli T., Indoor radon survey in Eastern Sicily. *Radiat. Meas.* 47 (2012) 105–110.
- [7] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Annex B: Exposure of the public and workers from various sources of radiation, 2008. NY: UN
- [8] Kurnaz A., Kucukomeroglu B., Cevik U. and Celebi N., Radon level and indoor gamma doses in dwellings of Trabzon, Turkey. *Appl. Radiat. Isot.* (2011) 69: 1554–1559.
- [9] Celik N., Cevik U., Celik A., Kucukomeroglu B., Determination of indoor radon and soil radioactivity levels in Giresun, Turkey, *J. Environ. Radioact.* 99 (2008) 1349–1354.
- [10] Sundal A.V., Henriksen H., Soldal O., Strand T., The influence of geological factors on indoor radon concentrations in Norway. *Sci. Total Environ.* 328 (2004) 41–53.
- [11] Kher R.S., Khokhar M.S.K., Rathore V.B., Ramachandran T.V., Measurement of indoor radon and thoron levels in dwellings and estimation of uranium, thorium and potassium in soil samples from central part of India. *Radiat. Meas.* 43 (2008) S414–S417.

- [12] Gusain G.S., Prasad G., Prasad Y. and Ramola R.C., Comparison of indoor radon level with radon exhalation rate from soil in Garhwal Himalaya. *Radiat. Meas.* 44 (2009) 1032-1035.

## CORRELATION BETWEEN INDOOR RADON AND RADIUM CONTENT IN SOILS OF KOSOVO AND METOHIJA

**Ljiljana GULAN<sup>1</sup>, Gordana MILIĆ<sup>1</sup>, Carmela CARPENTIERI<sup>2</sup>, Dragoslav NIKEZIĆ<sup>3</sup>, Francesco BOCHICCHIO<sup>2</sup> and Zora S. ŽUNIĆ<sup>4</sup>**

- 1) *University of Pristina, Faculty of Natural Science, Kosovska Mitrovica, Serbia, [ljgulan@gmail.com](mailto:ljgulan@gmail.com)*
- 2) *Italian National Institute of Health, Rome, Italy*
- 3) *University of Kragujevac, Faculty of Science, Serbia*
- 4) *University of Belgrade, Institute of Nuclear Sciences "Vinca", Belgrade, Serbia*

### ABSTRACT

This paper presents the results of indoor radon measurements and the results of radium specific activity in the nearby soil. Indoor radon measurements were conducted in 33 rural and urban settlements of Kosovo and Metohija from December 2010-2011. Radon concentration was measured by CR-39 detectors in the two six-month period with exchange. Surface soil samples (0-5 cm depth) were collected near the houses (at a distance of 2-3m) at the end of April 2011, according to the standard method that is recommended by the International Atomic Energy Agency. The specific activity of <sup>226</sup>Ra was determined by gamma spectrometric method using HPGe detector. The average value of the annual indoor radon concentration for 63 houses was 127.5 Bq m<sup>-3</sup> (range 30-810 Bq m<sup>-3</sup>). The estimated average specific activity of radium in nearby soil was 32.1 Bq kg<sup>-1</sup>; the range of values varies by an order of magnitude (9.3-91.1 Bq kg<sup>-1</sup>). Some locations with elevated concentrations of indoor radon in houses were identified. That is a consequence of the higher <sup>226</sup>Ra content in soil. There is no significant correlation ( $R^2 = 0.141$ ) between indoor <sup>222</sup>Rn and <sup>226</sup>Ra content in soil for given number of measurements. Besides geology, some other factors influence the indoor radon concentration. The results were discussed through similar studies in the world.

## КОРЕЛАЦИЈА ВАРИЈАЦИЈА ФОНА ГАМА ЗРАЧЕЊА И РАДОНА У НИСКОФОНСКОЈ ПОДЗЕМНОЈ ЛАБОРАТОРИЈИ У БЕОГРАДУ

**Радомир БАЊАНАЦ<sup>1</sup>, Владимир УДОВИЧИЋ<sup>1</sup>, Јелена ФИЛИПОВИЋ<sup>1</sup>,  
Дејан ЈОКОВИЋ<sup>1</sup>, Димитрије МАЛЕТИЋ<sup>1</sup>, Гордан НИШЕВИЋ<sup>2</sup>**

1) *Институт за физику, Универзитет у Београду, Београд, Србија,*

[banjanac@ipb.ac.rs](mailto:banjanac@ipb.ac.rs)

2) *Orthoaid Д.О.О., Београд, Србија*

### САДРЖАЈ

*У реалним условима поређена је узрочно-последична повезаност дневне варијације концентрације радона и варијације интензитета пострадонских линија у фону гама зрачења. Мерења су реализована у нискофонској подземној лабораторији у Институту за физику у Београду, у режиму укључене и искључене вентилације употребом два пасивно незаштићена германијумска детектора и једног радон монитора. Резултати мерења потврђују очекивано јаку корелацију две мерене величине, али и откривају fine разлике у детекцији пострадонских линија између два германијумска детектора.*

### 1. Увод

У практичним рутинским мерењима малих активности радиоактивних извора, мерењу фона се не придаје посебно значајна улога. У пракси је мерење фона често кратко, реда трајања једног дана, и практикује се непосредно пре и на крају серије мерења узорака. Основни услов за реализацију мерења малих активности радиоактивних извора је довољно низак фон у области енергија од интереса, али и његова стабилност у времену. Време трајања мерења фона требало би да буде и дуже од времена мерења узорака у зависности од потребне статистичке тачности предвиђених мерења. Резултати мерења фона представљају само средње вредности фона што у принципу производи систематску грешку мерења узорака малих активности као и у случају значајне временске варијације фона током мерења. Варијација фона у опсегу времена од неколико дана последица је дневне варијације концентрације радона и апериодичних промена интензитета космичког зрачења. Варијација радона је у највећој мери последица дневне варијације метеоролошких параметара и са аспекта фона гама зрачења њено минимизовање је реално оствариво у коначној запремини у непосредној близини германијумских детектора. Изузетно, потребно је применити адекватан систем вентилирања свежим (радоном осиромашеним) ваздухом као што је пракса у подземним лабораторијама. Са друге стране, апериодичне промене космичког зрачења у времену су јасно изоловане, иако по интензитету могу надвисити утицај варијације радона, па их је могуће лако елиминисати (у смислу коинцидирања са мерењем фона) ако се интензитет космичког зрачења редовно мониторише.

Концентрација радона се у комори за узорке, чија је запремина дефинисана стандардно коришћеним пасивним оловним штитом од околног гама зрачења, најједноставније редукује гасовитим азотом који потискује радон одушком из Дјуарове посуде. Ефекат редукације често није довољан посебно ако је почетна средња концентрација радона у лабораторији реда  $100 \text{ Bq m}^{-3}$  и у ситуацији када се анализирају узорци са радијумом  $^{226}$  преко интензитета пострадонских линија.

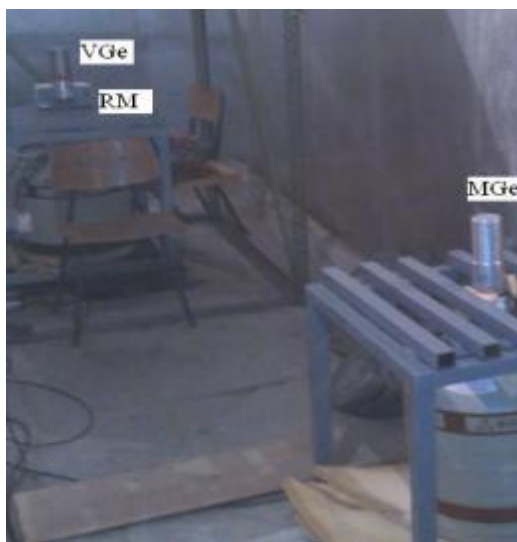
## 2. Опис експеримента

Надземна лабораторија (НЛ) и подземна (ПЛ, 25 метара воденог еквивалента) лабораторија Института за Физику описане су детаљно у [1], као и систем за дигиталну аквизицију података неопходан за анализу временских серија. Климатизована НЛ може се сматрати типичном надземном лабораторијом која испуњава нискофонске услове (мање од 3 одброја у секунди у енергијском интервалу амбијенталног гама зрачења од 40 keV до 3 MeV). Мониторинг радона током 3 месеца у НЛ показао је значајну варијацију,  $50 \pm 30 \text{ Bqm}^{-3}$ . Услови ниског фона су посебно испуњени у ПЛ (мање од 0.5 одброја у секунди) применом специјално пројектованог вентилационог система који обезбеђује ниску концентрацију радона,  $13 \pm 5 \text{ Bqm}^{-3}$  и у којој је површински флуks космичког зрачења редукован око 4 пута, [2].

Још су прелиминарна мерења радона, током изградње ПЛ, показала да се унутар запремине лабораторије акумулира радон концентрације веће од  $1000 \text{ Bqm}^{-3}$ , па се за мерење у динамичном режиму промене концентрације радона користила ПЛ, једноставним искључивањем вентилационог система.

За мерење фона гама зрачења у идентичним условима коришћена су два различита германијумска детектора. Непознати допринос евентуално наталожених потомака радона са унутрашње стране оловне заштите, искључен је уклањањем било какве пасивне заштите, посебно имајући у виду и немогућност оклапања оба детектора једнаким одливцима олова (врстом и дебљином). Већи (VGe, 35% релативне ефикасности) и мањи (MGe, 13%), били су међусобно удаљени 4 метра, MGe је био удаљен од најближег зида  $50 \text{ cm}$ , док је VGe био максимално удаљен од најближег зида,  $150 \text{ cm}$ . Оба детектора су са стандардном вертикалном конфигурацијом криостата, и били су позиционирани својом активном запремином (кристалом) на око  $80 \text{ cm}$  од пода, од кога су била заштићена (у смислу гама зрачења) самом својом Дјуаровом посудом (течним азотом).

Мониторинг радона реализован је радонмонитором РМ, две дифузионо спојене фото диоде као детектором алфа честица, који истовремено мери амбијенталне параметре температуру, релативну влажност и атмосферски притисак. Сам уређај РМ био је смештен у непосредну близину VGe детектора, слика 1.



Слика 1. Просторна конфигурација три детектора унутар ПЛ

Амплитуде дневне варијације концентрације радона у зависности од промена атмосферских параметара могу бити веома велике, а сам радон се у фону гама зрачења идентификује преко многобројних и јасно издвојених пострадонских линија.

За анализу спектра из Ге детектора коришћена су два брза ADC-а (С.А.Е.Н, тип N1728В) који узоркују на 10ns у  $2^{14}$  канала. Посебно је развијен програм за анализу С.А.Е.Н података са могућношћу избора времена интеграције у анализи временских серија мерења фона која су сагласна времену мерења радон монитора.

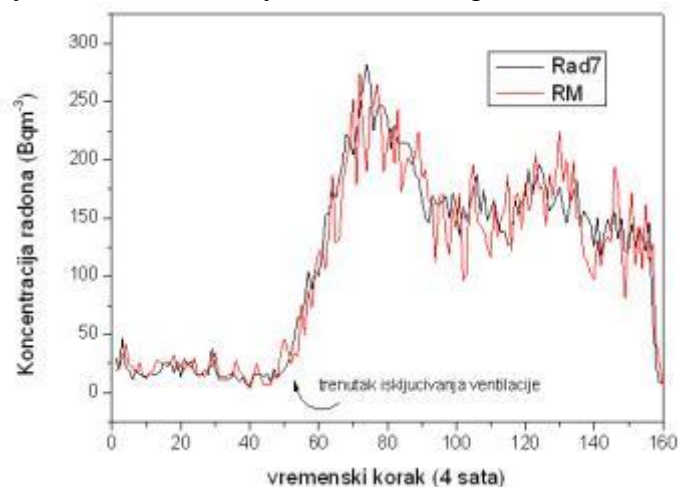
### 3. Прелиминарна мерења

У припреми горе описане конфигурације експеримента главна мотивација су била извесна сазнања из прелиминарних мерења.

Најпре су извршена мерења радона у ПЛ, детекторима трагова, на већем броју позиција истовремено у току укључене вентилације. Присутна је значајна нехомогеност у просторној дистрибуцији по средњим концентрацијама током 6 месеци мерења. У толико дугом периоду мерења утицај дневне варијације је занемарив, док су очекиване амплитуде сезонске варијације мање неколико пута од добијених варијација. Резултати нису публиковани јер за извесне врсте детектора трагова недостају грешке мерења.

У току последњих 6 или 7 година, концентрација радона унутар ПЛ мерена је више пута у прелазном режиму вентилације. Од најнижих вредности, које се постижу када је вентилација укључена (реда  $10 \text{ Bqm}^{-3}$ ), концентрација радона расте линеарно, након што је вентилација искључена, до сатурационе вредности. Време пораста увек траје између 3 и 4 дана, док је је сатурациона вредност концентрације радона варијала од 300 до преко  $900 \text{ Bqm}^{-3}$ , што је јако зависило од амбијенталних параметара и сезоне. Очигледно, брзина дифузије радона из 4л окружујућег извора (тла и зидова) требало би да се измери прецизно. Са друге стране, за просторну дистрибуцију радонових потомака важни су и параметри брзине депозиције потомака на зидовима оловне заштите (која је стандардно присутна) и самог германијумског детектора.

Додатна прелиминарна мерења обављена су радон монитором смештеним непосредно испред једног од улазних отвора свежег ваздуха у ПЛ, током 10 дана. Измерене вредности радона су често биле испод прага детекције инструмента, што потврђује да у ПЛ доспева ваздух очишћен од радона.



Слика 2. Мерење радона унутар и изван оловне заштите ВГе детектора у ПЛ

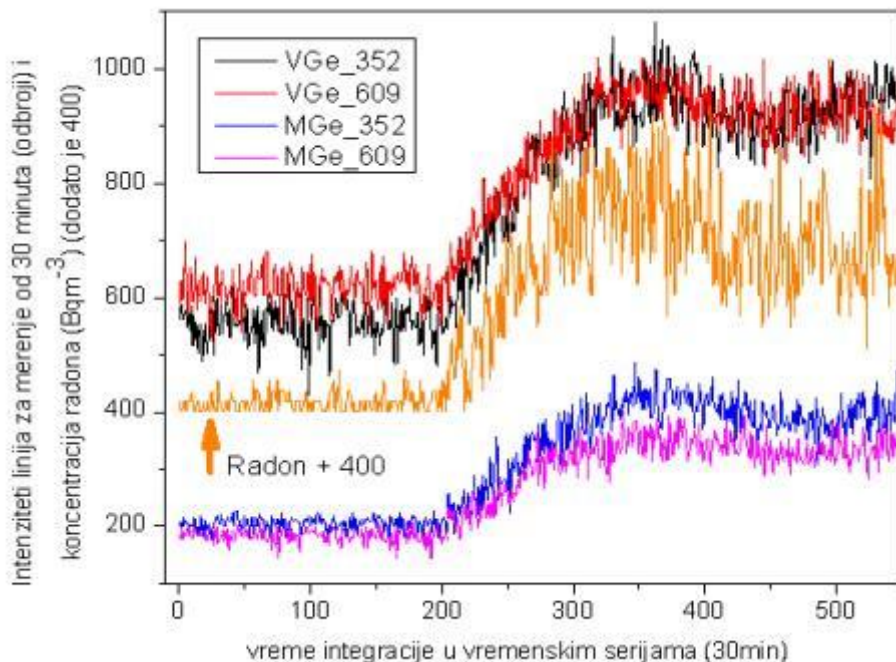


И коначно, радон је мерен у ПЛ истовремено са Рад 7 детектором и РМ, где је први мониторишао унутрашњост, а други спољашњост оловне заштите ВГе детектора. Мерено је и са укљученом и са искљученом вентилацијом, и разлике у резултатима практично нема после месец дана мерења, слика 2. Време узорковања радона оба детектора било је подешено на 12 сати када је вентилација радила и на 2 сата када вентилација није радила у циљу смањења статистичке грешке мерења.

#### 4. Резултати мерења

Имајући у виду очекивану разлику у концентрацији радона у простору ПЛ, за мерење фона гама зрачења коришћена су два различита детектора, при чему је ”контролни” детектор, МГе, био у близини бочног зида.

Радон монитор је узорковао радон сваких 30 минута и за исто време су анализирани временске серије две најинтензивније пострадонске линије на 352 и 609 keV. Анализирана је корелација између концентрације радона и интензитета пострадонских линија у режиму укључене и искључене вентилације. Резултати за један циклус два режима приказани су на слици 3.



Слика 3. Радон и пострадонске линије у ПЛ са и без вентилације

Због јаснијег представљања на линеарној скали, измереним вредностима концентрације радона додано је  $400 \text{ Bqm}^{-3}$ .

Када је вентилација укључена (вредност на апсциси до око 200, слика 3), све вредности на ординати су скоро константне, и како је концентрација радона мала, мала детекциона осетљивост РМ има за последицу мањи број регистрованих ненултих вредности током 30 минута мерења. У режиму укључене вентилације, који је неопходан у циљу редукције радона, варијације радона и пострадонских линија су немерљиве.

Када се вентилација искључи настаје линеарни пораст вредности радона и његових потомака и након тога сатурације (вредности на апсциси мало преко 200, односно 300, респективно, слика 3). Боље (визуелно) слагање промене радона и

пострадонских линија код ВГе детектора вероватно је последица њихове близине у простору, као и мање детекционе ефикасности мањег Ге детектора. Одлично слагање у растућем делу посебно је изражено за пострадонске линије мерене истим Ге детектором. За детаљнију анализу користили смо растући део у режиму искључене вентилације израчунавањем Пирсонових корелационих коефицијената, табела 1.

**Табела 1. Пирсонови корелациони коефицијенти за све комбинације варијабли у растућем делу режима искључене вентилације**

Pcc	Radon	VGe 352keV	VGe 609keV	MGe 352keV	MGe 609keV
Radon	1	0.78	0.77	0.70	0.69
VGe-352keV	0.78	1	0.88	0.76	0.79
VGe-609keV	0.77	0.88	1	0.78	0.80
MGe-352keV	0.70	0.76	0.78	1	0.76
MGe-609keV	0.69	0.79	0.80	0.76	1

Бројеви у табели су коефицијенти добијени корелисањем растућих вредности (слика 3, на апсиси од око 200 до 300) интензитета пострадонских линија измерених са два детектора, као и измерене вредности радона. Мање вредности корелационих коефицијената за комбинацију радон-МГе у односу на комбинацију варијабли радон-ВГе, последица је евентуално различите концентрације радона на две позиције Ге детектора. Са друге стране, постоји јака корелација за исту пострадонску линију мерену са два Ге детектора која је ипак мања у односу на коефицијент између две линије ВГе детектора, али не и МГе детектора. Мање вредности коефицијената за комбинацију две линије код МГе у односу на ВГе детектор такође су последица већег расипања података (слабије статистике због мање ефикасности), па је потребно детаљније истражити ове повезаности, идеално применом радонске коморе.

Након завршеног мерења у сатурационом делу режима искључене вентилације, након њеног укључења, и брзог ресетовања концентрације радона на минималну вредност, поновљен је поступак. Површине оба Ге детектора обрисане су алкохолем у циљу уклањања наталожених потомака радона, али се разлике у вредностима пострадонских линија нису уочиле у новом циклусу промене вентилационог режима. Како су оба Ге детектора непосредно пре описаних мерења дуго времена била оклопљена оловом, ВГе у ПЛ, а МГе у НЛ, индиректно закључујемо да су вредности за брзине захвата честица аеросола (које су носиоци потомака радона) на површину Ге детектора, довољно мале. Детаљнија анализа је неопходна како би се утврдила веза брзине захвата и брзине депозиције аеросола и применом Јакобијевог модела собе на примеру ПЛ, [3], у циљу објашњења просторне дистрибуције радонових потомака унутар подземне лабораторије.

## 5. Закључак

Један од покушаја мерења просторне дистрибуције радона и његових потомака унутар подземне лабораторије Института за физику реализован је истовременим мерењем радона и фона гама зрачења са 2 германијумска детектора. За детаљнију анализу користили смо растући део у режиму искључене вентилације

израчунавањем Пирсонових корелационих коефицијената који потврђују разлике у просторној расподели радона и потомака. Са друге стране, дуговремена стабилност концентрације радона у подземној лабораторији на вредностима које су блиске прагу детекције већине комерцијалних радон детектора, изгледа подесна као нека врста радонске коморе за тестирања осетљивости радон детектора.

## 6. Захвалница

*Овај рад је реализован уз подршку Министарства просвете, науке и технолошког развоја Републике Србије у оквиру пројекта под бројем III43002.*

## 7. Литература

- [1] А. Драгић *et al.*, The new set-up in the Belgrade low-level and cosmic-ray laboratory. *Nucl. Techn. Radiat. Protect.* 26 (3) (2011) 181-192.
- [2] А. Драгић *et al.*, Measurement of cosmic ray muon flux in the Belgrade ground level and underground laboratories. *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Reas. A.* 591 (2008) 470-475.
- [3] Н. Стевановић, В.М. Марковић, Д. Никезић, "Relationship between deposition and attachment rates in Jacobi room model", *J. Environ. Radioact.* 101 (2010) 349-352.

## CORRELATION OF GAMMA-RAY BACKGROUND AND RADON VARIABILITY IN THE UNDERGROUND LOW-LEVEL LABORATORY IN BELGRADE

**Radomir BANJANAC<sup>1</sup>, Vladimir UDOVIČIĆ<sup>1</sup>, Jelena FILIPOVIĆ<sup>1</sup>,  
Dejan JOKOVIĆ<sup>1</sup>, Dimitrije MALETIĆ<sup>1</sup>, Gordan NIŠEVIĆ<sup>2</sup>**

1) *Institute of Physics, University of Belgrade, Belgrade, Serbia,*  
[banjanac@ipb.ac.rs](mailto:banjanac@ipb.ac.rs)

2) *Orthoaid D.O.O., Belgrade, Serbia*

## ABSTRACT

The most important background source in low-level gamma-ray spectrometry is radon which additionally causes background variability. Intensive daily radon variation at the same time with daily variation of gamma-ray background was already measured in our ground level laboratory. The new simultaneously measurements of radon concentration and gamma-ray background performed in the underground low-background level laboratory in Belgrade (UL) and correlation between them in a wide range of radon concentration was analyzed. A lot of preliminary measurements of radon inside the UL were done including spatial distribution testing of radon concentration after 6 months of track detectors exposition as well as simultaneously radon and its progenies measurements inside and outside of lead shielding of the germanium detector. Finally, correlation between gamma-ray background and radon variability was tested in the UL using two unshielded germanium detectors and single radon monitor. The testing was done during transition of ventilation on/off regime and correlation coefficients between radon concentration and intensities of 352keV and 609keV post-radon lines were calculated for a rising part of ventilation off regime. As the majority of commercial available active radon detectors have sensitivity threshold of radon detection of about 10 Bqm<sup>-3</sup> hence that radon atmosphere inside the underground laboratory with long-term low radon concentration seems to be suitable for some kind of radon chamber.

# KORELACIONA I REGRESIONA ANALIZA VARIJABILNOSTI RADONA PRIMENOM MULTIVARIJANTNIH METODA

**Jelena FILIPOVIĆ, Vladimir UDOVIČIĆ, Dimitrije MALETIĆ, Radomir  
BANJANAC, Dejan JOKOVIĆ, Mihailo SAVIĆ, Nikola VESELINOVIĆ**  
*Institut za fiziku Beograd, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija, [jecafi@gmail.com](mailto:jecafi@gmail.com)*

## SADRŽAJ

*Multivarijantni metodi omogućavaju ispitivanje korelacija velikog broja meteoroloških parametara i koncentracije radona. Pokazano je da multivarijantne metode za klasifikaciju i regresiju daju dobre rezultate koji su značajni pri proučavanju varijacije radona u zatvorenim prostorijama. Od 12 različitih metoda BDT se pokazao kao najefikasniji. U okviru ovog rada biće više reči o toj metodi.*

### 1. Uvod

Radioaktivne emanacije, radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) i toron ( $^{220}\text{Rn}$ ) predstavljaju predmet intenzivnih istraživanja, od otkrića 1900. godine sve do današnjih dana. U širem smislu, ova istraživanja spadaju u domen radijacione fizike, međutim od pre nekoliko decenija predmet istraživanja radioaktivnih emanacija obuhvata veći broj naučnih disciplina (geofizika, seizmologija, medicinska fizika, dozimetrija, zaštita od zračenja) što celoj problematici daje jedan multidisciplinarni karakter. Istraživanja dinamike radona u različitim sredinama, naročito u zatvorenim prostorijama, imaju veliki značaj kako sa aspekta zaštite od jonizujućih zračenja tako i sa projektovanjem mera za njegovu redukciju. To predstavlja dosta složen zadatak. Dosadašnji rezultati i mnogobrojni modeli ponašanja radona u zatvorenim prostorijama ukazuju na svu kompleksnost, pre svega u predviđanju varijabilnosti radona, iz prostog razloga što u toj zavisnosti učestvuje veliki broj parametara. Koncentracija radona unutar zatvorenih prostorija zavisi od velikog broja faktora koji pored meteoroloških parametara uključuje lokalnu geologiju, permeabilnost zemljišta, građevinski materijal od koga je izgrađen objekat kao i same životne navike ljudi. Svi ovi faktori utiču na varijaciju koncentracije radona, pa je s toga važno proučiti njihovu korelaciju. Do danas je razvijeno nekoliko modela koji opisuju ponašanje radona u zatvorenim prostorijama [1], [2], [3]. Varijacija koncentracije radona zavisi od varijacije više meteoroloških parametara. U ovom radu biće reči o najefikasnijem metodu u okviru TMVA (Toolkit for Multi Variate Analysis) koji na najbolji način određuje korelaciju koncentracije radona unutar zatvorenih prostorija i različitih klimatskih varijabli. U prethodnim radovima prikazan je način na koji je odredjen najefikasniji metod [4]. Primenom regresione analize u okviru istog TMVA paketa, moguće je sa prihvatljivom tačnošću predviđanje varijabilnosti koncentracije radona, a na osnovu varijacije meteoroloških parametara.

### 2. Kratkotrajna merenja koncentracije radona u laboratorijskim i realnim uslovima

Postoji veliki broj metoda za određivanje koncentracije radona u vazduhu, vodi i zemljištu. Metode merenja se mogu klasifikovati na različite načine u zavisnosti od primenjenih kriterijuma. Pogodno je uzeti podelu u zavisnosti od načina i dužine trajanja merenja koncentracije radona.

1. Trenutno uzorkovanje izvodi se u kratkom vremenskom periodu (nekoliko minuta) u poređenju sa vremenskim rasponom fluktuacije koncentracije radona.

2. Kontinualno i aktivno uzorkovanje vrši se automatski u kratkim vremenskim intervalima tokom jednog dužeg vremenskog perioda.

3. Integralno uzorkovanje bazira se na prikupljanju svih događaja koji su se desili tokom dužeg vremenskog perioda koji može biti između nekoliko dana i nekoliko meseci.

Za potrebe određivanja najboljeg metoda iskorišćeni su rezultati dobijeni merenjima u niskofonskoj laboratoriji Instituta u Zemunu i u jednoj porodičnoj kući. Vremenske serije merenih koncentracija radona, temperature, atmosferskog pritiska i relativne vlažnosti dobijene su pomoću uređaja SN1029 (proizvođača Sun Nuclear Corporation). To je merni uređaj jednostavne konstrukcije i primene u praksi. U suštini, radi se o brojaču sa dodatkom senzora za merenje meteoroloških parametara. Nedostatak uređaja je nemogućnost merenja koncentracije radona u zemljištu i vodi. Operater može podesiti vremenske sekvence od 0.5 sati do 24 sati. Jedan ciklus merenja može trajati 1000 sati ili ukupno 720 vremenskih sekvenci (broj sukcesivnih merenja, odnosno tačaka u vremenskoj seriji).

Od 2008. godine, rade se kratkotrajna merenja koncentracije radona u niskofonskoj podzemnoj laboratoriji u Institutu za fiziku u Zemunu. Ova metoda se koristi za dobijanje vremenskih serija koncentracija radona u datoj sredini. Dobijeni rezultati su publikovani u nekoliko radova u međunarodnim naučnim časopisima [5], [6], [7]. Tokom merenja radila je ventilacija i može se reći da su meteorološki parametri u laboratoriji bili mnogo stabilniji nego u kući. Meteorološki podaci izmereni za taj vremenski interval preuzeti su sa meteorološke stanice koja je locirana 4 km od laboratorije.

Merenje koncentracije radona vršeno je i u dnevnoj sobi porodične kuće koja je izgrađena od standardnih materijala (cigla, beton, malter) i izolovana je stiroporom. Merenje je izvršeno u periodu od 3. juna do 3. jula 2013. godine pri čemu je merena koncentracija radona, temperatura, pritisak i relativna vlažnost vazduha u samoj prostoriji. Vrednosti meteoroloških faktora u tom periodu dobijene su iz automatske meteorološke stanice locirane 400 m od kuće u kojoj je vršeno merenje. U obzir su uzeti sledeći meteorološki parametri: spoljašnja temperatura vazduha, pritisak i vlažnost vazduha, zračenje sunca, brzina vetra na visini od 10 m iznad površine zemlje, padavine, isparavanja i temperatura i vlažnost zemlje na dubinama od 10 cm, 20 cm, 30 cm i 50 cm.

### **3. Korelaciona i regresiona analiza dobijenih rezultata**

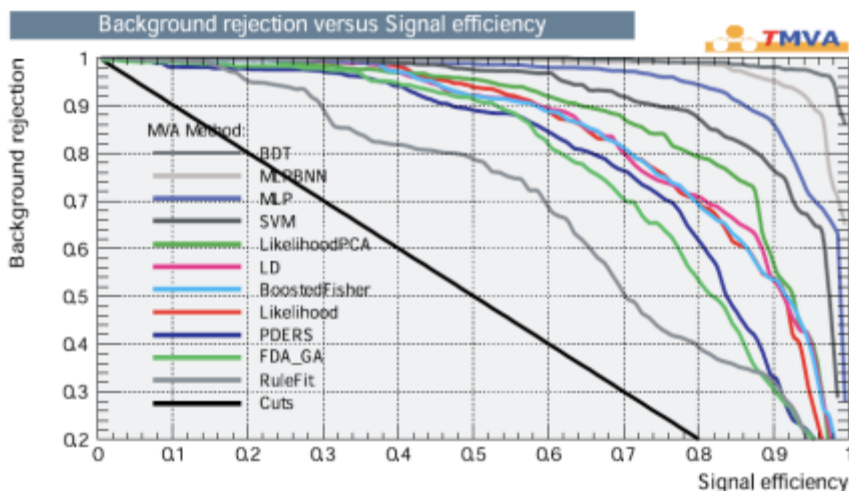
Pri obradi podataka korišćene su MVA analize koje su implementirane kao deo programskog paketa ROOT [8]. ROOT sadrži, pored programa za analizu podataka, i programe za multivarijantnu analizu (The Toolkit for Multivariate Analysis - TMVA) [9]. Sve multivarijantne tehnike u TMVA pripadaju familiji algoritama "nadgledanog učenja". Nadgledano učenje rezultira u dobijanju algoritma za "mapiranje" (aproksimiranje) izlazne funkcionalne zavisnosti. Put do dobrog algoritma je učenje treniranjem, a srž treniranja je korišćenje skupa ulaznih varijabli (npr. atmosferske varijable) sa poznatim izlaznim vrednostima (npr. koncentracijom radona). Rezultujuća izlazna funkcionalna zavisnost može biti, jednostavno, skup "odluka", tj. uslova na vrednosti ulaznih podataka, kojim klasifikujemo izlazne vrednosti. Češće, traga se za nekom aproksimativnom funkcionalnom zavisnošću, sa uslovom da ova zavisnost daje izlazne vrednosti sa nekom proizvoljnom tačnošću. Određivanje korelacionih

koeficijenta služi kako bi bili u mogućnosti da odaberemo varijable koje imaju najjaču korelaciju sa koncentracijom radona. U tabeli 1 navedene su neke od meteoroloških varijabli poređane po njihovoj važnosti.

**Tabela 1. Rangiranje BDT ulaznih varijabli**

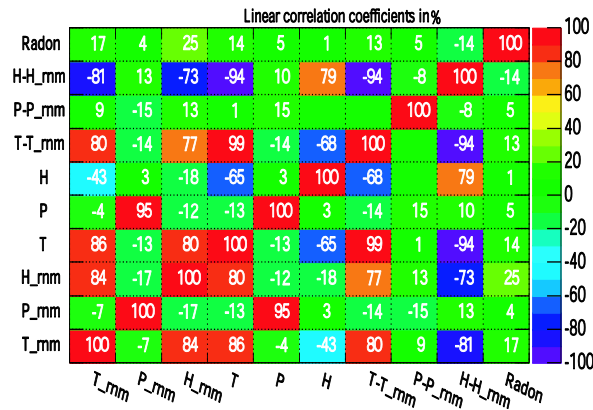
Variable	Variable importance
Temperatura zemljišta na dubini od 10cm	$1,37 \cdot 10^{-1}$
Temperatura spoljašnjeg vazduha	$7,40 \cdot 10^{-2}$
p(spolj) - p(radon monitor)	$6,51 \cdot 10^{-2}$
Vlažnost spoljašnjeg vazduha	$6,40 \cdot 10^{-2}$
Temperatura zemljišta na dubini od 50cm	$4,68 \cdot 10^{-2}$
Brzina vetra na visini od 10m	$3,87 \cdot 10^{-2}$

Multivarijantnim metodama unutar paketa TMVA u ROOT-u može se tragati za multivarijativnom aproksimacijom funkcionalne zavisnosti koncentracije radona i meteoroloških varijabli klasifikacijom odbroja radona. Pri obradi podataka korišćeno je nekoliko multivarijantnih metoda od kojih se najbolje pokazao BDT (Boosted Decision Tree), što se može videti na slici 1.

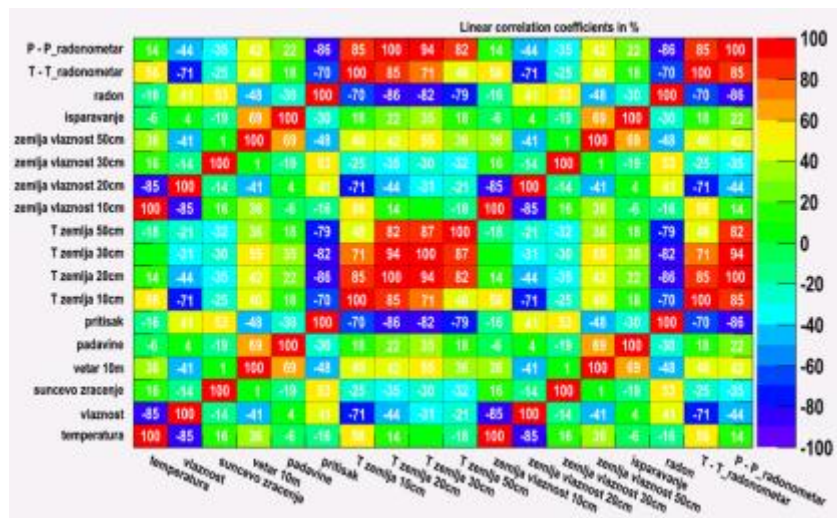


**Slika 1. ROC-Krive za različite MVA metode**

BDT se pokazao kao najefikasniji metod za klasifikaciju ulaznih podataka i u slučaju podataka dobijenih iz kuće kao i onih dobijenih merenjem u podzemnoj niskofonskoj laboratoriji. Najbolji multivarijantni regresioni metod je takodje u oba slučaja BDT. Na slici 2 može se videti korelaciona matrica u kojoj je prikazana korelacija izmedju svih parametara.



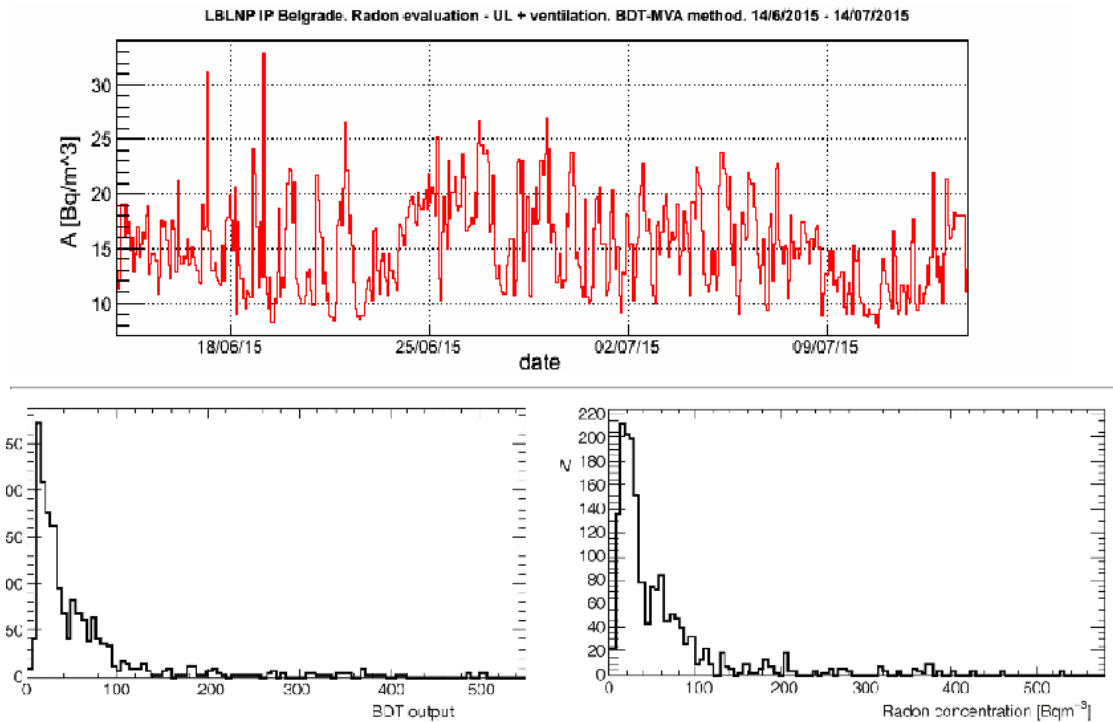
Slika 2. Korelaciona matrica radona i meteo varijabli u podzemnoj niskofonskoj laboratoriji



Slika 3. Korelaciona matrica radona i meteo varijabli u porodičnoj kući

Primenom regresione analize u okviru istog TMVA paketa, a za isti skup merenih koncentracija radona i meteo parametara u niskofonskoj podzemnoj laboratoriji i porodičnoj kući u Srbiji, dobijeni su rezultati koji su prikazani na slici 4.

Multivariate analysis method (Boosted Decision trees) is used for evaluation of Radon concentration in underground laboratory of "Low background laboratory for Nuclear physics" in the Institute of physics, Belgrade.



**Slika 4. Predviđanje koncentracije radona na osnovu meteo parametara korišćenjem regresione analize u okviru TMVA paketa u niskofonskoj podzemnoj laboratoriji (gore) i porodičnoj kući (dole)**

#### 4. Zaključak

Korelaciona i regresiona analiza varijabilnosti radona primenom multivarijantnih metoda, realizovana u softverskom paketu TMVA, primenjena na analizu varijacije koncentracije radona sa klimatskim varijablama u niskofonskoj podzemnoj laboratoriji i porodičnoj kući u Srbiji, pokazala je potencijalnu korisnost ovih metoda. Čini se da se metoda može koristiti sa dovoljnom tačnošću (oko 15 %) za predviđanje koncentracije radona, a na osnovu meteoroloških parametara dobijenih iz obližnjih meteoroloških stanica.

#### 5. Literatura

- [1] B. P. Jelle et al. Implementation of radon barriers, model development and calculation of radon concentration in indoor air. *Journal of Building Physics* (2010) 195-222.
- [2] B. P. Jelle et al. Development of a model for radon concentration in indoor air. *Science of the Total Environment* 416 (2012), 343–350.
- [3] Font, Ll., Baixeras, C. The RAGENA dynamic model of radon generation, entry and accumulation indoors. *Science of the Total Environment* 307 (2003) 55–69.
- [4] D. M. Maletić et al. Comparison of multivariate classification and regression methods for indoor radon measurements. *Nuclear Technology and Radiation Protection* 29 (2014) 17-23.



- [5] V. Udovičić, B. Grabež, A. Dragić, R. Banjanac, D. Joković, B. Panić, D. Joksimović, J. Puzović, I. Aničin. Radon problem in an underground low-level laboratory. *Radiation Measurements*. 44 (2009) 1009-1012.
- [6] V. Udovičić, I. Aničin, D. Joković, A. Dragić, R. Banjanac, B. Grabež, N. Veselinović. Radon Time-Series Analysis in the Underground Low-Level Laboratory in Belgrade, Serbia. *Radiation Protection Dosimetry*. 145 (2-3) (2011) 155-158.
- [7] R. Banjanac, V. Udovičić, A. Dragić, D. Joković, D. Maletić, N. Veselinović, B. Grabež. Daily Variations of Gamma-Ray Background and Radon Concentration. *Romanian Journal of Physics*. Volume 58, Supplement (2013) S14-S21.
- [8] R. Brun and F. Rademakers, ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. A 389, (1997) 81
- [9] A. Hoecker, P. Speckmayer, J. Stelzer, J. Therhaag, E. von Toerne, and H. Voss. TMVA - Toolkit for Multivariate Data Analysis. PoS ACAT 040 (2007) arXiv:physics/070303

## **CORRELATION AND REGRESSION ANALYSIS OF VARIABILITY OF RADON CONCENTRATION APPLYING MULTIVARIATE METHODS**

**Jelena FILIPOVIĆ, Vladimir UDOVIČIĆ, Dimitrije MALETIĆ, Radomir BANJANAC, Dejan JOKOVIĆ, Mihailo SAVIĆ, Nikola VESELINOVIĆ**  
*Institute of Physics, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

### ABSTRACT

Multivariate methods provide testing the correlation of a large number of meteorological parameters and concentrations of radon. It is shown that multivariate methods for classification and regression give good results, which are important for the study of indoor radon variation. BDT has proven to be the most effective method of 12 different methods that have been tested. In this work, there will be more to say about this method.

# DIFFERENT TECHNIQUES FOR $^{222}\text{Rn}$ DETERMINATION IN DRINKING WATERS

**Nataša TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Ivana STOJKOVIĆ<sup>2</sup>, Jovana NIKOLOV<sup>1</sup>  
and Pattama PISPAK<sup>3</sup>**

1) *University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics,  
Novi Sad, Serbia*

2) *University of Novi Sad, Faculty of Technical Sciences, Novi Sad, Serbia*

3) *Department of Physics, Faculty of Science, Prince of Songkla University, Thailand*  
e-mail: [natasa.todorovic@df.uns.ac.rs](mailto:natasa.todorovic@df.uns.ac.rs)

## 1. INTRODUCTION

*A procedure for the determination of  $^{222}\text{Rn}$  in environmental water samples using liquid scintillation counting (LSC) was applied and optimized. The procedure was compared with RAD 7 radon detector measurements.  $^{226}\text{Ra}$  content in the water was determined by gamma-ray spectroscopy. Applications to drinking waters with annual effective dose for ingestion and inhalation for adults are presented.*

## 2. EXPERIMENTAL

For radon determination in drinking water from groundwater and surface water sources by LSC, the EPA Method 913.0 [1] was used. According to EPA Method 913.0 [1], for calibration and standardization the Radium Solution Method was used, where standard of 100 ml  $^{226}\text{Ra}$  in water was prepared such that the final activity was approximately 1,3 kBq $^{-1}$ . A standard radioactive source activity (aqueous solution of  $^{226}\text{Ra}$ ) produced from Czech Metrology Institute, Inspectorate for Ionizing Radiation, was used for instrument's calibration, certified activity  $A(^{226}\text{Ra}) = 37,472 \text{ Bq}\cdot\text{ml}^{-1}$  with combined standard uncertainty 0,5%, reference date 1/10/2013. According to this single phase method, 10 ml of the diluted standard was transferred into the 20 ml scintillation vial (20ml high performance glass vials, Perkin Elmer), to which has been added 10 ml of miscible scintillation cocktail OptiPhase HiSafe 3. The background samples were prepared using 10 ml of distilled water. The standards and background samples were set aside for a 30 days to allow radon to attain secular equilibrium. Radon diffused from the sample into scintillation cocktail from which it has a much greater affinity than for water. The standards were counted for 50 minutes in a liquid scintillation counter Quantulus 1220 equipped with PSA circuit for energy discrimination for alpha particles in order to determine calibration factor  $CF$ . For radon determination in drinking waters, 10 ml of water sample was pipetted into a glass scintillation vial to which it had been added 10 ml of scintillation cocktail. The samples were shaken and set aside in the dark for at least three hours to equilibrate the radon progeny and dark adapt before counting. Verification of results obtained with standard EPA Method 913.0 was done with set of standard referential  $^{226}\text{Ra}$  sources.

For optimal window selection, radon standard with activity 1,28 Bq ml $^{-1}$  was prepared and counted for 5 minutes. The region of greatest alpha activity is the region by two large peaks at the high end of the energy spectrum. The optimal window was formed by extending the region by 10% on each side of the alpha peaks, and set from channels 420-780. The spectra were acquired by WinQ and analyzed by Easy View software by Perkin Elmer.

Calibration factor  $CF$  [ $\text{min}^{-1} \text{Bq}^{-1}$ ] which represents counting efficiency for  $^{226}\text{Ra}$  was calculated using the following formula:

$$CF = \frac{S-B}{C \cdot V}, \quad (1)$$

where  $S$  [ $\text{min}^{-1}$ ] is the counting rate of standard,  $B$  [ $\text{min}^{-1}$ ] is background count rate,  $C$  [ $\text{Bq l}^{-1}$ ] is the concentration of  $^{226}\text{Ra}$  standard and  $V$  [l] is volume of standard used.

Activity of  $^{222}\text{Rn}$  in the water sample  $A$  [ $\text{Bq l}^{-1}$ ] and  $2\sigma$  uncertainty (95% CI) were obtained using equations:

$$A(^{222}\text{Rn}) = \frac{G-B}{CF \cdot D \cdot V}, \quad 2\sigma = \frac{2 \left( \frac{G+B}{T_G+T_B} \right)^{1/2}}{CF \cdot D \cdot V}, \quad (2)$$

where  $G$  [ $\text{min}^{-1}$ ] is gross counting rate of the sample,  $D = \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t\right)$  is decay correction factor for  $^{222}\text{Rn}$  calculated for  $t$ , time between the collection and midpoint of counting period,  $T_{1/2}(^{222}\text{Rn}) = 3,824$  days, and  $V$  [l] is volume of the sample,  $T_B$  and  $T_G$  are duration of the background and sample counting [min]. The minimum detectable activity (MDA) [ $\text{Bq l}^{-1}$ ] was evaluated using the following formula:

$$MDA = \frac{2.83}{CF \cdot D \cdot V} \sqrt{\frac{B}{T_B}}. \quad (3)$$

The minimum detectable activity (MDA) achieved for different periods of measuring time according to expression (3) was calculated to be approximately  $0,029 \text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$  for total counting time of 300 minutes.

For radon determination by RAD 7 detector, the samples were collected using the techniques proposed by the manufacturer [2]. In the measurement, a 250 ml vial was taken for radon concentration less than  $100 \text{Bq l}^{-1}$ . If expected radon concentrations are higher than  $100 \text{Bq l}^{-1}$ , a 40 ml vial should be used. Factors that affect the measurement accuracy and precision of RAD 7 radon detector are the sampling technique, sample concentration, sample size, counting time, temperature, relative humidity and background effects [2]. A relative humidity showed the greatest impact on measurement error in the presented results, since it reduces the efficiency of collection of the  $^{218}\text{Po}$  atoms formed when radon decays inside the chamber. For accurate readings, the RAD7 should be dried out thoroughly before making the measurement, so the relative humidity inside the instrument could stay below 10% for the entire 30 min of the measurement. The most significant background effect in the RAD-H<sub>2</sub>O are counts from radon daughters and traces of radon left from previous measurements, especially after very active  $^{222}\text{Rn}$  sample measurement.

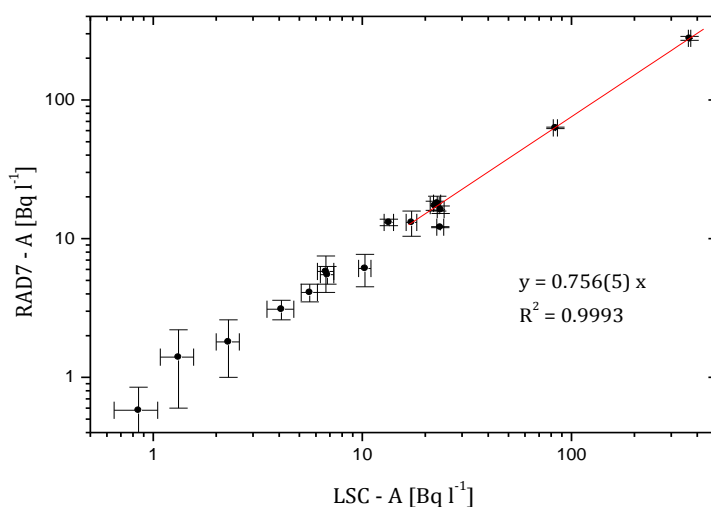
For background determination, a water sample containing no radon (the distilled water sample, left closed and undisturbed for more than 4 weeks was used as a radon-free sample) was measured. The background sample was measured several times using the same protocol. The relative humidity during measurements was less than 8%. The minimal detectable activity (MDA) was found to be  $0,1 \text{Bq l}^{-1}$ . It is possible to achieve a background this low if all radon and its progeny were completely eliminated from the system before measurement [2].

The radon content of the water, at the time of the analysis, is the mean value shown in the printout. This value takes into account the calibration of the RAD7, the size of the sample vial and the total volume of the closed air loop, as set up [2]. If a sample is analyzed at a later time (rather than immediately), the sample's radon concentration will decline due to the radioactive decay. It is necessary to correct the result for the sample's decay from the time the sample was drawn to the time the sample was counted [2].

### 3. RESULTS AND DISCUSSION

Results of  $^{222}\text{Rn}$  activity measurements by LSC technique were obtained with the following variables:  $B=0,326$  cpm,  $T_B = 300$  min,  $T_G = 50$  min,  $CF = (252,2\pm 2,7)$  cpm  $\text{Bq}^{-1}$ , PSA = 68, OptiPhase HiSafe 3 cocktail used. Measurements on RAD7 detector were done using Wat 250 protocol (average radon concentration was obtained from four 5 min cycles of measurement), while keeping humidity  $< 8\%$ .

From obtained results of  $^{222}\text{Rn}$  measurements in 15 water samples with different  $^{222}\text{Rn}$  activity, correlation between two techniques applied for measurements of  $^{222}\text{Rn}$  in water samples ( $A < 400 \text{ Bq l}^{-1}$ ) could be determined (Figure 1). There is reasonable agreement (within statistical uncertainties) between the various techniques in most cases, while disagreements most likely come from systematic uncertainties associated with sampling procedures. Discrepancy in determined activities between the two techniques becomes more evident with increased  $^{222}\text{Rn}$  activities in water.



**Figure 1. Correlation between two techniques applied for measurements of  $^{222}\text{Rn}$  in water samples ( $A < 400 \text{ Bq l}^{-1}$ ) in log-log scale. The solid line represents linear fit (least-squares minimization procedure)**

From the slope ( $y = 0,756 x$ ) (Figure 1) it can be concluded that LSC technique gives in general higher activity concentrations for about 30% than RAD 7 spectrometer. The interpretation of shown results could be that RAD7 is not properly calibrated for higher activities measurements, since USA reference level of  $^{222}\text{Rn}$  concentrations in water is only  $11,1 \text{ Bq l}^{-1}$  [3]. RAD7 RAD H<sub>2</sub>O manual [2] also provided the comparison between RAD H<sub>2</sub>O and LSC method. In experiments presented in this paper, Quantulus achieved for two orders of magnitude lower background (0.326 cpm) than in [2] and  $\text{LLD}=0.029 \text{ Bq l}^{-1}$  for 300 min counting time which is one order of magnitude lower than in [2].

Calculated activities as well as an assessment of effective doses [4] (based on LSC measurements) received by population from drinking waters in Novi Sad and from Kopaonik are displayed in Tables 1 and 2, respectively. Comparing the measured  $^{222}\text{Rn}$  concentrations with the reference level of  $100 \text{ Bq l}^{-1}$  [5], it can be concluded that the drinking waters from public water supply in Novi Sad and in Kopaonik do not contain elevated concentrations of radon, except water KRn01 from “Marine vode” fountain in Kopaonik.

**Table 1. Determination of  $^{222}\text{Rn}$  activities (with  $2\sigma$  counting uncertainty, 95% CI) and annual effective doses in fountain waters in Novi Sad**

Fountain sample	A [ $\text{Bq l}^{-1}$ ] RAD7 result	A [ $\text{Bq l}^{-1}$ ] Quantulus result	E [ $\text{mSv yr}^{-1}$ ] Ingestion	E [ $\text{mSv yr}^{-1}$ ] Inhalation
tap water	$1.8 \pm 0.8$	$2.29 \pm 0.29$	$0.020 \pm 0.006$	$0.0057 \pm 0.0016$
Spens	$13.1 \pm 0.7$	$13.4 \pm 0.7$	$0.10 \pm 0.07$	$0.033 \pm 0.0023$
Ribarsko ostrvo	$18.0 \pm 2.2$	$22.8 \pm 0.9$	$0.17 \pm 0.15$	$0.06 \pm 0.05$
Limanski park	$16.20 \pm 1.0$	$23.7 \pm 0.9$	$0.17 \pm 0.15$	$0.06 \pm 0.05$

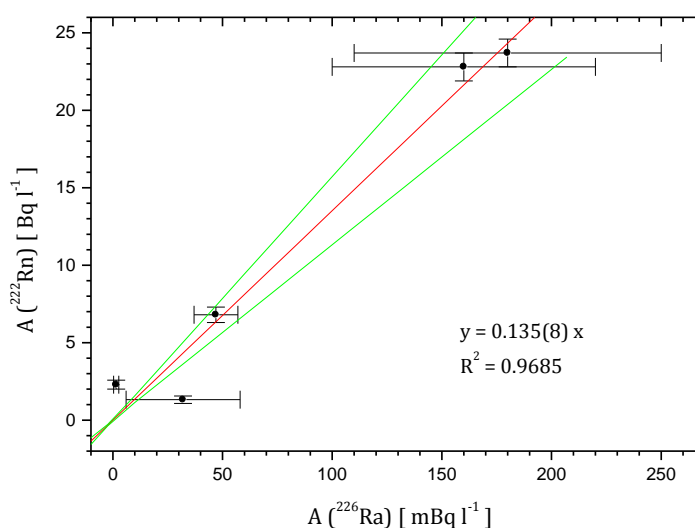
**Table 2. Mapping of  $^{222}\text{Rn}$  activity (with  $2\sigma$  counting uncertainty, 95% CI) and annual effective doses in drinking waters Kopaonik mountain**

Sample location	A [ $\text{Bq l}^{-1}$ ] RAD7 result	A [ $\text{Bq l}^{-1}$ ] Quantulus result	E [ $\text{mSv yr}^{-1}$ ] Ingestion	E [ $\text{mSv yr}^{-1}$ ] Inhalation
KRn 01	$82 \pm 0.4$	$100.8 \pm 0.6$	$0.7 \pm 0.4$	$0.25 \pm 0.15$
KRn 02	$20 \pm 0.8$	$25.2 \pm 0.7$	$0.18 \pm 0.13$	$0.06 \pm 0.04$
KRn 03	$1.1 \pm 0.6$	$1.3 \pm 0.3$	$0.010 \pm 0.003$	$0.0034 \pm 0.0010$
KRn 04	$15.0 \pm 0.7$	$13.6 \pm 0.7$	$0.10 \pm 0.07$	$0.0034 \pm 0.0024$

The  $^{226}\text{Ra}$  content of the tap water and few fountain water samples was determined by gamma-spectrometry measurements using the HPGe spectrometer, Table 3. According to the legislation of Republic of Serbia [6], the derived concentration of  $^{226}\text{Ra}$  in drinking water is  $0.49 \text{ Bq l}^{-1}$ . All activity concentrations for measured radionuclides  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{222}\text{Rn}$  are lower than the legally established levels for radionuclide content in drinking water in Serbia, so the water from public fountains in Novi Sad is safe for consumption from radioactivity point of view. Because of the urge of measurements, all the samples were measured on gamma-spectrometer immediately after collection. It is certain that A( $^{226}\text{Ra}$ ) results will be about 20% higher after reaching equilibrium with  $^{222}\text{Rn}$ . The detected higher content of  $^{226}\text{Ra}$  ( $^{222}\text{Rn}$  parent) in Table 3 corresponds to higher  $^{222}\text{Rn}$  concentrations detected by LSC in samples Ribarsko ostrvo, Limanski park (Table 1), it can be concluded that  $^{222}\text{Rn}$  in drinking water from public fountains could result from  $^{226}\text{Ra}$  content in water. Correlation between activity concentrations of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{222}\text{Rn}$ , based only on few samples given in Table 3, is presented in Figure 2. More accurate analysis should involve more data with significant number of samples.

**Table 3.  $^{226}\text{Ra}$  content of drinking waters, HPGe gamma-spectrometric measurements.**

Sample	$^{226}\text{Ra}$ activity concentration A [mBq l <sup>-1</sup> ]
Tap water (Novi Sad)	1.5±1.2
Limanski park	180±70
Ribarsko ostrvo	160±60
S. Karlovci	47±10
V. Remeta	32±26



**Figure 2. Correlation between activity concentrations of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{222}\text{Rn}$ . The solid line represents linear fit (least-squares minimization procedure) with 95% confidence limits**

#### 4. CONCLUSION

Ultra-low level LS counting coupled to alpha-beta discrimination allows rapid and simple simultaneous determination of gross alpha and beta activities and therefore it can be applied to  $^{222}\text{Rn}$  activity determination in waters. Radon diffusion from the sample into scintillator cocktail for which it has a much greater affinity than for water ensures good efficiency collection. PSA parameter must be fixed while  $CF$  determination and sample counting, in which case PSA value itself will not influence  $^{222}\text{Rn}$  determination. A minimum detectable activity of 0,029 Bq l<sup>-1</sup> in 10 ml of water sample has been achieved in glass vials during 300 minutes of measurement time.

Calibration coefficient from the LSC and RAD7 measurements from Figure 1 ( $y = 0,756 x$ ) indicates that LSC technique gives in general higher activity concentrations for about 30% than RAD 7 spectrometer. Some of the measurements might be associated with systematic uncertainties most likely associated with sampling.

Detected  $^{222}\text{Rn}$  in drinking waters from public fountains could result from its  $^{226}\text{Ra}$  water content, as concluded from the measured activity concentration of  $^{226}\text{Ra}$  with HPGe gamma-spectrometer in those samples (Tables 1, 2, 3).

All measured activity concentrations and annual doses are well under the legally defined limits [5,6], so the drinking water from Novi Sad and Kopaonik mountain water supply is safe for consumption from the radioactivity point of view, except water KRn01 from “Marine vode” fountain in Kopaonik.

### **Acknowledgment**

The authors acknowledge the financial support of the Provincial Secretariat for Science and Technology Development within the project Development and application low-background alpha, beta spectroscopy for investigating of radionuclides in the nature.

We would like to thank the Office of the Higher Education Commission: OHEC for providing the research grants, Graduate School, PSU (Prince of Songkla University), Thailand, for financial support and thanks the Geophysics Program, Department of Physics, Faculty of Science, PSU, for equipment support and other required facilities.

### **5. REFERENCES**

- [1] EPA Method 913.0 – 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
- [2] RAD7 RAD H2O, Radon in Water Accessory, DURRIDGE Co.
- [3] US EPA, Proposed Radon in Drinking Water Regulation, <http://water.epa.gov/lawsregs/rulesregs/sdwa/radon/regulations.cfm#PropRosedregulations>
- [4] N. Todorović et al, Public exposure to radon in drinking water in Serbia. *Appl. Radiat. Isot.* 70 (2012) 543-549.
- [5] 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.
- [6] Law on Protection against Ionizing Radiation and Nuclear Safety, Official Gazette of the Republic of Serbia 96/2009.

## DIFFERENT TECHNIQUES FOR $^{222}\text{Rn}$ DETERMINATION IN DRINKING WATERS

**Nataša TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Ivana STOJKOVIĆ<sup>2</sup>, Jovana NIKOLOV<sup>1</sup> and Pattama PISPAK<sup>3</sup>**

*1) University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Novi Sad, Serbia*

*2) University of Novi Sad, Faculty of Technical Sciences, Novi Sad, Serbia*

*3) Department of Physics, Faculty of Science, Prince of Songkla University, Thailand*

e-mail: [natasa.todorovic@df.uns.ac.rs](mailto:natasa.todorovic@df.uns.ac.rs)

A procedure for the determination of  $^{222}\text{Rn}$  in environmental water samples using liquid scintillation counting (LSC) was applied and optimized. For radon determination in drinking water from groundwater and surface water sources by LSC, the EPA Method 913.0 was used. A minimum detectable activity of  $0.029 \text{ Bq l}^{-1}$  in a 20 ml glass vial (10 ml water sample mixed with 10 ml of liquid scintillation cocktail) has been achieved during 300 minutes of measurement time. The procedure was compared with RAD 7 radon detector measurements. Factors that affect the measurement accuracy and precision of RAD 7 radon detector are the sampling technique, sample concentration, sample size, counting time, temperature, relative humidity and background effects. The minimal detectable activity (MDA) for RAD 7 technique was found to be  $0,1 \text{ Bq l}^{-1}$ .

From obtained results of  $^{222}\text{Rn}$  measurements in 15 water samples with different  $^{222}\text{Rn}$  activity, correlation between two techniques applied for measurements of  $^{222}\text{Rn}$  in water samples ( $A < 400 \text{ Bq l}^{-1}$ ) could be determined. There is reasonable agreement (within statistical uncertainties) between the various techniques in most cases, while disagreements most likely come from systematic uncertainties associated with sampling procedures. Discrepancy in determined activities between the two techniques becomes more evident with increased  $^{222}\text{Rn}$  activities in water.

LSC technique gives in general higher activity concentrations for about 30% than RAD 7 spectrometer. The interpretation of shown results could be that RAD7 is not properly calibrated for higher activities measurements, since USA reference level of  $^{222}\text{Rn}$  concentrations in water is only  $11,1 \text{ Bq l}^{-1}$  (US EPA, Proposed Radon in Drinking Water Regulation).

Detected  $^{222}\text{Rn}$  in drinking waters from public fountains could result from its  $^{226}\text{Ra}$  water content, as concluded from the measured activity concentration of  $^{226}\text{Ra}$  with HPGe gamma-spectrometer in those samples. All measured activity concentrations and annual doses are well under the legally defined limits, so the drinking water from Novi Sad and Kopaonik mountain water is safe for consumption from the radioactivity point of view.



# **ЗАШТИТА ОД ЗРАЧЕЊА У МЕДИЦИНИ**

## PERIFERNE DOZE U RADIOTERAPIJI – PRIKAZ AKTIVNOSTI RADNE GRUPE 9 EURADOS-A

**Saveta MILJANIĆ u ime radne grupe 9 EURADOS-a**  
*Institut Ruđer Bošković, Zagreb, Hrvatska, saveta@irb.hr*

### SADRŽAJ

*Motivacija radne grupe 9 (WG9): “Radiation Dosimetry in Radiotherapy” EURADOS-a je procjena nepoželjne doze koju prima pacijent izvan ciljanog volumena tumora prilikom radioterapije kao podloga za procjene odgovarajućih rizika sekundarnog karcinoma. Ovaj skraćeni pregled dozimetrijskih mjerenja obavljenih unatrag nekoliko godina koncentriran je na dozimetrijske metode za mjerenje perifernih doza u vodenim fantomima i antropomorfnim dječjim fantomima uz korištenje različitih tipova dozimetara za mjerenje doza fotona i neutrona. Karakteristike dozimetara i njihova kalibracija obavljene su u standardnom dozimetrijskom laboratoriju, a zatim su obavljena mjerenja simulacije tumora prostate uz korištenje različitih modaliteta radioterapijskog ozračivanja. Prikazani su i odabrani preliminarni rezultati simulacije radioterapije tumora mozga kod djece.*

### 1. Uvod

Najveći izazov u radioterapiji ili bilo kojoj terapiji karcinoma je postići najveću vjerojatnost izlječenja uz najmanje negativnih efekata. Najjednostavniji način povećanja tog terapijskog omjera u radioterapiji bio bi da se dovoljnom dozom zračenja obuhvate sve stanice karcinoma dok se istovremeno štedi okolno zdravo tkivo. Indukcija karcinoma nakon ozračenja (sekundarni karcinom) odavno je poznata iako određivanje vjerojatnosti rizika karcinogeneze zračenjem nije sasvim objašnjeno. Na ukupni rizik pojave karcinoma utječu doze (tzv. periferne doze) koje su primili radioosjetljivi organi udaljeni od ciljanog volumena. Poboljšanja u tretmanu karcinoma povećava vrijeme preživljavanja i tako se u budućnosti može očekivati povećanje pojave sekundarnog karcinoma. Istovremeno, razvoj radioterapijskih modaliteta kao što su radioterapija modularnog intenziteta („Intensity-Modulated Radiation Therapy“, IMRT), „Image-Guided Radiotherapy“ (IGRT) i daljnje usklađivanje u predaji doze, npr. Tomoterapija i „Volumetric Modulated Arc Therapy“ (VMAT) mogu za posljedicu imati povećanje ozračenja cijelog tijela. Međutim, još uvijek nema dovoljno podataka o usporednim mjerenjima perifernih doza za moderne radioterapijske modalitete da bi se mogao ispitati njihov utjecaj na pojavu sekundarnog oboljenja.

Motivacija WG 9: „Radiation Dosimetry in Radiotherapy“ EURADOS-a (*European Radiation Dosimetry Group, www.eurados.org*) je procjena neželjene doze izvan ciljanog volumena u radioterapiji i pripadajućeg rizika pojave sekundarnog karcinoma. Glavni udjeli u perifernim dozama potječu od (i) raspršenog zračenja od interakcija primarnih snopova s pacijentom; (ii) raspršenog zračenja od uređaja za zračenje (glava, kolimator) i (iii) curenje (leakage) iz mete. Važno je istaći da je za određivanje izlaganja cijelog tijela pacijenta potrebno eksperimentalno mjerenje doza jer je poznato da je točnost programa za planiranje tretmana (TPS) to manje pouzdana kako se povećava udaljenost od volumena tretmana [1]. Dva dodatna ograničenja TPS-a su (i) da curenje zračenja kroz glavu akceleratora nije uvijek uzeto u obzir i (ii) da moguća fotoneutronska kontaminacija X-zračenja ili elektronskog snopa nije uključena. Za izlazne energije veće od oko 8 MV postoji udio doze od brzih neutrona iz reakcija ( $\gamma, n$ )

u materijalima visokog Z u glavi akceleratora. Nakon spektralne degradacije prolazom kroz masivnu zaštitu i sisteme kolimatora te višestrukih raspršenja u okolini akceleratora, konačni rezultat je široko polje polienergijskih neutrona s jakom prostornom ovisnošću spektra [2].

Dozimetrijski eksperimenti radne grupe 9 do sada su prošli sljedeće faze:

(i) Mjerenja su započela u jedinici za kalibracije dozimetara u radioterapiji francuskog nacionalnog metrološkog laboratorija za ionizirajuće zračenje, CEA/LIST Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB),. Cilj je bio evaluacija aktualnih metoda mjerenja trodimenzionalne raspodjele doza u ciljanom volumenu i oko njega kao i određivanje komponenti doza u vodenom tanku (slika 1) koji je simulirao tijelo ozračeno medicinskim linearnim akceleratorom.

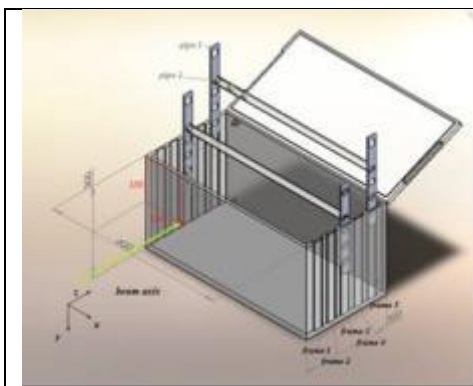
(ii) U kliničkim simulacijama koje su slijedile za modeliranje je odabran karcinom prostate. Simulirana su četiri tipa tretmana prostate: 3D konformalna radioterapija (3D CRT), IMRT, VMAT i Tomoterapija. Ozračivanja su obavljena u dva centra: University Hospital of Santa Chiara, Pisa, Italija i Centre of Oncology M. Skłodowska-Curie Memorial Institute, Krakow, Poljska. Dozimetrijska mjerenja su obavljena u fantomu nazvanom BOMAB prema izvornom fantomu tog tipa (Bottle Mannikin ABSorber phantom [3]). Iako je ovaj fantom realističniji od vodenog tanka za simulacije nekih kliničkih tretmana (slika 2), rezultati mjerenja u ovom fantomu korisni su prije svega za usporedbu s algoritmima za računanje doze i za usporedbu različitih dozimetara.

(iii) Sljedeći skup eksperimenata posvećen je dječjoj fotonskoj radioterapiji. Zbog pretpostavke da će doživjeti dob kada se javljaju sekundarni karcinomi uzrokovani zračenjem, kao i veće osjetljivosti na zračenje u odnosu na odraslu populaciju, dozimetrijska mjerenja i mogućnost procjene rizika za dječju populaciju su iznimno važna. Mjerenja su obavljena u antropomorfnim dječjim fantomima koji imaju organe ekvivalentne tkivu. Korištena su dva tipa fantoma koji odgovaraju dobi od 5 i 10 godina. Simulirana su tri različita radioterapijska tretmana karcinoma mozga (3D CRT, IMRT i gama-nož) te kraniospinalno ozračenje (3D CRT).

(iv) Uz fotonsku radioterapiju eksperimenti su nastavljani uz primjenu protonske radioterapije. Radioterapija tumora snopom protona pripada hadronskim terapijama koje se osnivaju na nuklearnim česticama (protonima, neutronima i lakim ionima) za tretman ranih i uznapredovalih tumora. Dobrobiti ove terapije se osnivaju na fizikalnim (bolja balistička točnost) kao i na biološkim razlozima koji rezultiraju u točnijim i efikasnijim ozračenjem tumora i pri tom smanjenjem doze u okolnom zdravom tkivu. Doze apsorbirane u cijelom tijelu su manje nego kod fotonske terapije [4] ali pozornost treba obratiti na sekundarne neutrone koji nastaju interakcijama protona.

Eksperimenti su obavljani u dva terapijska centra: u Trentu na protonskom uređaju s aktivnim skeniranjem, IBA, 230 MeV i na uređaju istih karakteristika u Krakowu. U Trentu dozimetri su zračeni u vodenom fantomu (slika 1), a u Krakowu u antropomorfnim dječjim fantomima koji odgovaraju dobi od 5 i 10 godina. Rezultati ovih eksperimenata u pripremi su za objavljivanje i neće biti pokazani u ovom pregledu. Za mjerenje doza u eksperimentima su korišteni termoluminescentni (TL), radiofotoluminiscentni (RPL) i optički stimulirani luminiscentni (OSL) dozimetri. Za mjerenje doza fotona korišteni su LiF TL dozimetri na osnovi  $^7\text{LiF:Mg,Ti}$  (TLD-700 i MTS-7),  $^{\text{nat}}\text{LiF}$  (TLD-100, MTS-N i LiF:Mg,Cu,P), a za indicaciju neutronske zračenja  $^6\text{LiF:Mg,Ti}$  (MTS-6). Korištena su dva tipa RPL dozimetara GD-352M (sa Sn filterom) i GD302M (bez filtera) [5,6]. Dozimetri su prvo zračeni u vodenom tanku u jednakim uvjetima i rezultati su uspoređeni s mjerenjima referentne ionizacijske

komore. Fotoneutronske doze mjerene su upotrebom „superheated“ emulzija (SE) i Poly-Allyl-Diglicol-Carbonate (PADC) nuklearnih detektora traga (Universitat Autònoma de Barcelona (UAB). Korištena su dva tipa SE detektora „superheated drop detectors“ (SDD - UNIPI) i „bubble damage detectors“ (BDT i BD PND), proizvodnje Bubble Technology Industries (BTI) [7]. Za karakterizaciju raspršenog zračenja oko volumena mete u protonskoj terapiji korišteni su „Bonner sphere“ spektrometri i različiti komercijalni aktivni dozimetrijski sistemi [8].



**Slika 1. Vodeni fantom korišten kod zračenja na kliničkom linearnom akceleratoru u CEA-LIST/LNHB u Saclay-u i mjerenjima u protonskom snopu u Trentu.**



**Slika 2. BOMAB fantom korišten u mjerenjima raspodjele doza za različite modalitete fotonske radioterapije u Pisi i Krakovu**

## 2. Kalibracijska mjerenja u CEA-LIST/LNHB, Saclay

Prije ozračivanja na referentnom kliničkom linearnom akceleratoru fotonski dozimetri su kalibrirani u standardnim uvjetima na izvoru  $^{60}\text{Co}$  kako je opisano u IAEA TRS 398 (2000) [9]. Zatim su dozimetri uspoređeni u referentnom snopu kliničkog linearnog akceleratora (Saturn 43) u CEA-LIST/LNHB metrološkom laboratoriju u Saclay-u ozračenjem u vodenom tanku uz energije od 6, 12 i 20 MV.

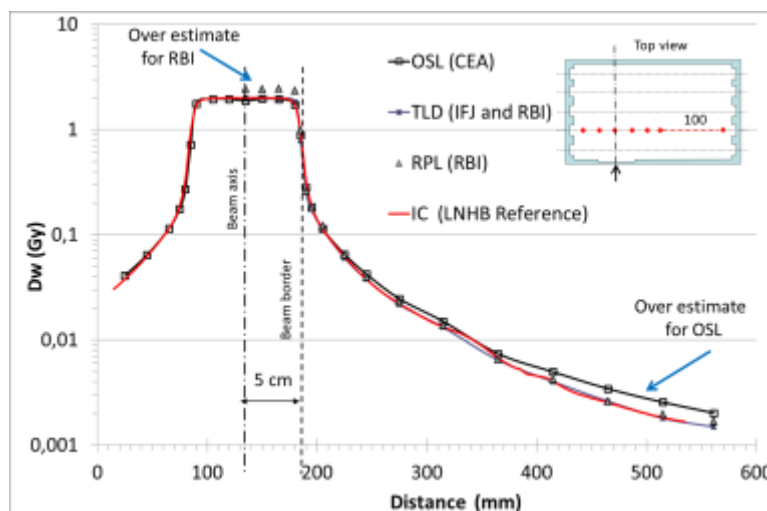
U vodenom fantomu pomoću okvira na različitim dubinama i cijevi u okvirima smještenih na različitim visinama bilo je moguće trodimenzionalno mjerenje doza. Primjer usporedbe dozimetara prikazan je na slici 3. Prikazan je profil mjereno s 4 tipa dozimetara i ionizacijskom komorom na 10 cm dubine kod 12 MV [10].

Veći odziv OSL dozimetara za energije niže od 200 keV precjenjuje doze u području raspršenog zračenja (povećanje je to veće što je udaljenost od osi snopa veća) dok je u tom području dobro slaganje između TLD, RPL i mjerenja ionizacijskom komorom. Udio fluensa i energijskog fluensa za energije niže od 200 keV računat je Monte Carlo metodom upotrebom PENELOPE koda [10]. Korekcijski faktori za energijsku ovisnost OSL-a korišteni su u drugom setu eksperimenata kod kliničkog ozračivanja.

Za dozu u izocentru, u usporedbi s ionizacijskom komorom, devijacije TLD-a su manje od 1.5 %, za korigirane OSL nađene su sistematski niže doze do 4% dok su za RPL dozimetar (tip GD-352M) sistematski veće doze 13.5%, 23.0% i 27.5% za kvalitete zračenja 6, 12 i 20 MV (na slici 3 to je pokazano za 12 MV). Ova pojava može se pripisati utjecaju kositrenog filtera koji pokriva RPL detektor. Za mjerenja unutar snopa može se primijeniti odgovarajuća korekcija, a druga mogućnost je da se u volumenu

mete upotrijebe RPL tipovi GD-301 ili GD-302M (bez Sn filtera) koji ne pokazuju veće doze za visoko energijske fotone [11].

Usporedba TLD i RPL s ionizacijskom komorom u području perifernih doza (1.5 do 150 mGy) pokazala je slaganje unutar 3%.



**Slika 3. Usporedba profila mjerenog s 4 tipa pasivnih dozimetara i ionizacijskom komorom na 10 cm dubine kod energije 12 MV. Udaljenosti na x-osi dane su od unutarnjeg zida fantoma [10]**

### 3. Kliničke simulacije radioterapije karcinoma prostate

Simulacije kliničkih tretmana obavljene su uz upotrebu modificirane verzije BOMAB fantoma razvijenog u University of Pisa [12]. Reproducibilno pozicioniranje dozimetara unutar fantoma postignuto je serijom PMMA cijevi. Podaci o modalitetima kliničkih simulacija terapije prostate u dva radioterapijska centra prikazani su u Tablici 1.

Usporedba dozimetara u BOMAB fantomu u području perifernih doza pokazuju veće varijacije nego u vodenom tanku. Za različite modalitete standardne devijacije srednjih vrijednosti mjerenja različitih dozimetara bile su u području 6 do 10% [13].

Usporedba perifernih doza za različite modalitete prikazana je slici 4. Ozračenja uz samo jedno polje dana su kao referencijska za usporedbu. Rezultati su prikazani za centralnu („prostata“) cijev.

Bez ozračenja s jednim poljem, rezultati pokazuju da omjeri maksimalne (Tomoterapija) i minimalne (15 MV 5-field CRT) doze variraju od 2.4 do 3.8 u Pisi i od 1.6 do 2.4 (najviše za 6 MV IMRT a najniže za 18 MV 4-field CRT) u Krakovu. Općenito, najmanje periferne doze su dobivene za 3D konformalnu terapiju iako se usporedbom 18 MV IMRT i 18 MV 4-field CRT u Krakovu može vidjeti da je  $D_{CRT}/D_{IMRT} > 1$  za udaljenosti manje od 15 cm od ruba polja a da je  $D_{CRT}/D_{IMRT} < 1$  za udaljenosti veće od 15 cm od ruba polja.

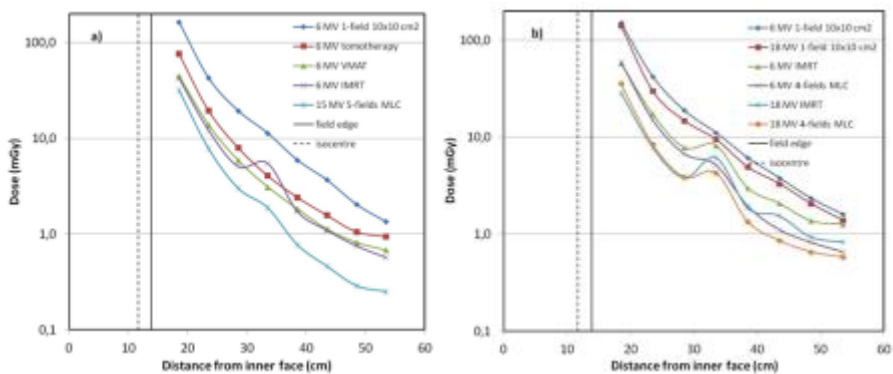
Iz slike 4b) za ozračenja u Krakovu vidljiv je utjecaj energije za isti modalitet tretmana. U svim slučajevima kako energija raste periferne doze se smanjuju dajući  $D_{6MV}/D_{18MV}$ : 1.3-2.2 za IMRT,  $D_{6MV}/D_{18MV}$ : 1.1-1.8 za 4-field CRT i  $D_{6MV}/D_{18MV}$ : 1.1-1.3 za 1-field  $10 \times 10 \text{ cm}^2$ . Ekvivalentni rezultati za jedno polje su i u vodenom tanku u Saclay-u [10].

Usporedba sistema za planiranje tretmana (TPS) i mjerenja dozimetrima za dva modaliteta pokazana je na slici 5 [14]. Rezultati mjerenja dozimetara odgovaraju obliku krivulja TPS-a ali općenito dozimetri pokazuju veće doze od TPS kako se udaljenost od

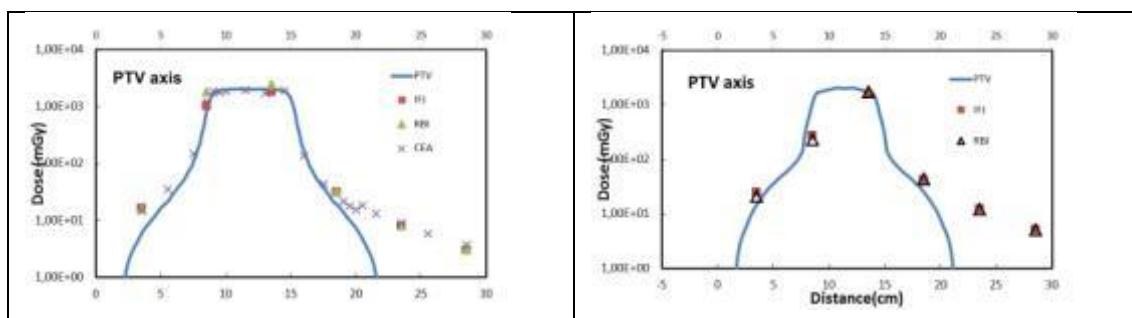
izocentra povećava. Profili doza za planirani volumen mete za prostatu (PTV) pokazuju da su periferne doze potpuno različite za različite modalitete. Na udaljenosti od 4.6 cm od ruba polja omjer doza mjerenih dozimetrima i predviđenih TPS-om varira od 1.15 do 2.25 [13].

**Tablica 1. Modaliteti kliničkih simulacija terapije prostate**

<b>Pisa</b>	<b>MU/</b>	<b>Krakov</b>	<b>MU/</b>
Varian Clinac 2100 C	2 Gy	Varian Clinac 2300 CD	2 Gy
6 MV single 10x10 cm <sup>2</sup> field (ref)	251	6 MV single 10x10 cm <sup>2</sup> field (ref)	240
15 MV single 10x10 cm <sup>2</sup> field (ref)	218	18 MV single 10x10 cm <sup>2</sup> field (ref)	199
15 MV 5-field 3DCRT	266	6 MV 4-field 3DCRT	277
		18 MV 4-field 3DCRT	218
6 MV IMRT	432	6 MV IMRT	466
		18 MV IMRT	350
6 MV VMAT (RapidArc)	481		
6 MV Tomotherapy	2495		



**Slika 4. Usporedba perifernih doza za različite modalitete: a) ozračenja u Pisi i b) ozračenje u Krakowu [13]**

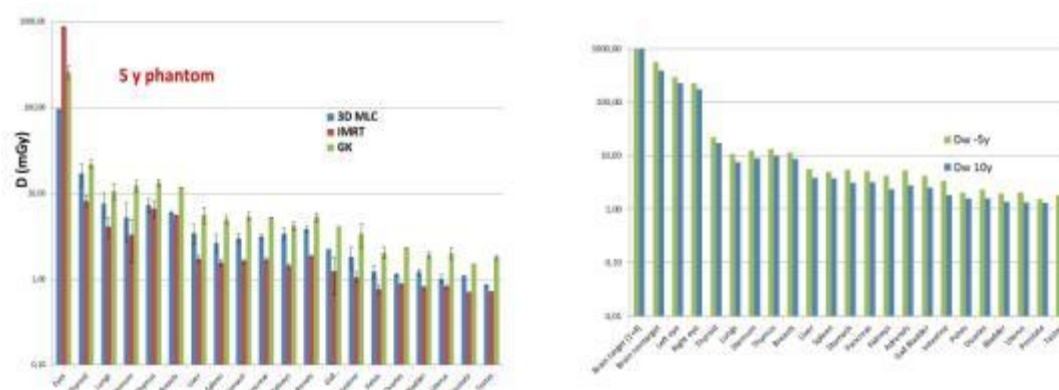


**Slika 5. Usporedba profila doza predviđenih TPS-om i mjerenja različitim dozimetrima za 15 MV 5-fields CRT (lijevo) i 6 MV IMRT (desno)**

#### 4. Kliničke simulacije radioterapije karcinoma mozga kod djece

Simulacije tretiranja karcinoma u mozgu (kugla promjera 6 cm, iznad lijevog oka) ostvareno je uporabom sljedećih radioterapijskih tehnika: 3D CRT i IMRT u Centru za onkologiju, Krakow, gama-nožem u Kliničkom bolničkom centru Zagreb te kraniospinalnim ozračenjem u Klinici za tumore, Zagreb. U prva dva slučaja korišteni su 6 MV fotonski snopovi dobiveni linearnim akceleratorom Varian Clinac 2300. Leksellov gama-nož (Gamma-Knife, GK) je metoda za precizno jednokratno ozračivanje malih intrakranijskih lezija korištenjem uskih konvergirajućih fotonskim snopovima  $^{60}\text{Co}$  ( $n = 201$ ). Korišten je Model C (Elekta AB, Stockholm, Švedska). Kraniospinalno ozračenje obavljeno je u Klinici za tumore, Zagreb, na akceleratoru ARTISTE uz kombinaciju energija od 6 i 18 MV.

Doze su mjerene u dječjim CIRS fantomima koji imaju organe ekvivalentne tkivu. Fantomi odgovaraju desetogodišnjem (tip 706D) i petogodišnjem (tip 705D) djetetu i sastoje se od 32, odnosno 26 sloja debljine 25 mm. Odabrani rezultati su prikazani na slici 6 za dozu od 2 Gy u tumoru. Lijevo su prikazane raspodjele doza u fantomu od 5 godina za tri modaliteta 3D CRT, IMRT i GK. Najveće doze su za GK radi toga jer je tumor daleko veći nego je predviđeno za zračenje gama-nožem te je bilo potrebno zračiti uz čak 25 izocentara uz kolimator od 18 mm. U organima tijela kod petogodišnjeg fantoma mjerene su veće periferne doze za 3D CRT u odnosu na IMRT, dok su za desetogodišnji fantom izmjerene podjednake periferne doze za obje radioterapijske tehnike. Moguće objašnjenje različitih odnosa doza dviju tehnika kod različitih fantoma mogli bi biti različiti uvjeti zračenja za tehniku 3D CRT (različit odnos monitorski jedinica, MU, za iste smjerove, te uporaba različitih klinova) [15]. Desno je pokazana raspodjela doza u organima za fantome od 5 i 10 godina kod zračenja na gama-nožu. Očekivano, doze opadaju s udaljenošću organa od tumora i zbog manjih dimenzija petogodišnjeg fantoma, pa time veće blizine tumoru, isti organi primili su manju dozu kod desetogodišnjeg fantoma nego kod petogodišnjeg. Prosječni omjer perifernih doza za desetogodišnji i petogodišnji fantom iznosi  $0.68 \pm 0.11$ . Prosječno smanjenje doza za tehniku IMRT je oko 30 % i oko 60 % za 3D CRT [15].



**Slika 6. Lijevo: Raspodjele doza prikazane su u fantomu od 5 godina za 3 modaliteta zračenja, 3D CRT, IMRT i GK. Desno: Raspodjela doza u organima za fantome od 5 i 10 godina kod zračenja na gama-nožu**

## 5. Diskusija i zaključci

Procjena rizika sekundarnog karcinoma je težak i opsežan zadatak i nemoguće je simulirati sve moguće tipove tretmana i tehnika za sve geometrije pacijenata. Radi toga je važno razviti algoritme za periferne doze te su zato kao podloga neophodni pouzdani dozimetrijski mjereni rezultati. Dozimetrijske metode korištene u eksperimentima radne grupe 9 EURADOS-a (TLD, OSL i RPL za fotone) mogu se pouzdano upotrebljavati za mjerenja perifernih doza. Sve pokazuju dobru ujednačenost, dobru reproducibilnost i mogu se koristiti kod niskih doza koje se očekuju na većim udaljenostima od radioterapijskog ciljanog volumena (tumora).

Usporedba perifernih doza kod simulacije tretmana prostate u dva radioterapijska centra pokazuje da razlike u tim dozama za isti PTV mogu biti čak za faktor 4. Za poštedu neposrednih okolnih organa najbolji rezultati su za IMRT. S druge strane, najniže periferne doze su izmjerene za 3D CRT. Daljnja istraživanja su potrebna, osobito za novije modalitete radioterapije budući su rezultati otkrili činjenicu da korišteni TPS-i u ovom istraživanju redovito podcjenjuju periferne doze.

Iako mjerenja neutronske komponente doze nisu prikazana u ovom pregledu, ona su posebno važna i treba ih nastaviti i prošiti osobito radi toga jer sistemi za planiranje tretmana ne uključuju neutronske doze u standardnim algoritmima. Osim toga, pokazano je da fotoneutronske doze nisu zanemarive čak i ni kod energija od 6MV [12]. Simulacije tretmana karcinoma mozga kod djece pokazala se da za iste uvjete zračenja manja djeca radi manjih dimenzija dobivaju veće doze u istim organima od veće djece. Slijedom toga, kao i razlike dobivene za različite modalitete, pokazuju da se uvjeti i modaliteti zračenja za djecu moraju pažljivo odabirati.

## 6. Literatura

- [1] R. M. Howell, S. B. Scarboro, S. F. Kry and D. Z. Yaldo. Accuracy of out-of-field dose calculations by a commercial treatment planning system. *Phys.Med.Biol.* 55 (2010) 6999-7008.
- [2] NCRP, Neutron Contamination From Medical Accelerators. National Council on Radiation Protection and Measurements Report 79 (1984). Washington, DC, USA.
- [3] F. Bush. The integral dose received from a uniformly distributed radioactive isotope. *British. J. Radiol.* 22 (1949) 96-102.
- [4] U. Schneider, S. Agosteo, E. Pedroni and J. Besserer. Secondary neutron dose during proton therapy using spot scanning. *Int. J. of Radiat. Oncol. Bio. Phys.* 53 (2002) 244-251.
- [5] Ž. Knežević, L. Stolarczyk, I. Bessieres, J-M. Bordy, S. Miljanić, and P. Olko. Photon dosimetry methods outside the target volume in radiation therapy: Optically stimulated luminescence (OSL), thermoluminescence (TL) and radiophotoluminescence (RPL) dosimetry. *Radiat. Meas.* 57 (2013) 9-18.
- [6] Ž. Knežević, M. Majer i S. Miljanić u ime EURADOS radne grupe 9. Sekundarno zračenje u protonskoj radioterapiji - preliminarni rezultati mjerenja s pasivnim dozimetrima. Zbornik radova 10. simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja (urednici: B. Petrincec, T. Bituh, M. Milić i N. Kopjar), 207-212, HDZZ, Zagreb 2015.
- [7] A. Di Fulvio, C. Domingo, M. de San Pedro, E. D'Agostino, M. Caresana, L. Tana and F. d'Errico. Superheated emulsions and track etch detectors for photoneutron measurements. *Radiat. Meas.* 57 (2013) 19-28.
- [8] J. Farah, V. Mares, M. Romero-Expósito, S. Trinkl, C. Domingo, V. Dufek, M. Klodowska, J. Kubancak, Ž. Knežević, M. Liszka, M. Majer, S. Miljanić, O. Ploc, K. Schinner, L. Stolarczyk, F. Trompier, M. Wielunski, P. Olko and R. M. Harrison.



Measurement of stray radiation within a scanning proton therapy facility: EURADOS WG9 intercomparison exercise of active dosimetry systems. *Med. Phys.* 42 (2015) 2572-2584.

[9] IAEA, Absorbed Dose Determination in External Beam Radiotherapy. An International Code of Practice for Dosimetry Based on Standards of Absorbed Dose to Water. Technical Reports Series No. 398. International Atomic Energy Agency, Vienna, 2000.

[10] J-M. Bordy, E. d'Agostino, I. Bessiere, C. Domingo, F. d'Errico, A. di Fulvio, Ž. Knežević, S. Miljanić, P. Olko, A. Ostrosky, B. Poumarede, S. Sorel, L. Stolarczyk, D. Vermerse and R. Harrison. Radiotherapy out-of-field dosimetry: Experimental and computational results for photons in a water tank. *Radiat. Meas.* 57 (2013) 29-34.

[11] H. Mizuno, T. Kanai, Y. Kusano, S. Ko, M. Ono, A. Fukumura, K. Abe, K. Nishizawa, M. Shimbo, S. Sakata, S. Ishikura and H. Ikeda. Feasibility Study of Glass Dosimeter Postal Dosimetry Audit of High-Energy Radiotherapy Photon Beams. *Radiat. and Oncol.* 85 (2008) 258-263.

[12] A. Di Fulvio, L. Tana, M. Caresana, E. D'Agostino, M. de San Pedro, C. Domingo and F. d'Errico. Clinical simulations of prostate radiotherapy using BOMAB-like phantoms: Results for neutrons. *Radiat. Meas.* 57 (2013) 48-61.

[13] S. Miljanić, I. Bessieres, J-M. Bordy, F. d'Errico, A. Di Fulvio, D. Kabat, Ž. Knežević, P. Olko, L. Stolarczyk, L. Tana and R. Harrison. Clinical simulations of prostate radiotherapy using BOMAB-like phantoms: results for photons. *Radiat. Meas.* 57 (2013) 35-47.

[14] S. Miljanić, J-M. Bordy, F. d'Errico, R. Harrison and P. Olko. Out-of-field dose measurements in radiotherapy – An overview of activity of EURADOS Working Group 9: Radiation Protection in Medicine. *Radiat. Meas.* 71 (2014) 48-61.

[15] M. Majer, Ž. Knežević i S. Miljanić u ime EURADOS radne grupe 9. Periferne doze pri radioterapijskim tretmanima karcinoma mozga kod djece. Zbornik radova 10. simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja (urednici: B. Petrinc, T. Bituh, M. Milić i N. Kopjar), 213-218, HDZZ, Zagreb 2015.

## **PERIPHERAL DOSES IN RADIOTHERAPY – AN OVERVIEW OF ACTIVITY OF EURADOS WORKING GROUP 9**

**Saveta MILJANIĆ on behalf of EURADOS working group 9**  
*Ruđer Bošković Institute, Zagreb, Croatia, saveta@irb.hr*

### **ABSTRACT**

The motivation of Working Group 9 (WG9: Radiation Dosimetry in Radiotherapy) of the European Radiation Dosimetry Group (EURADOS) was to assess undue, non-target patient doses in radiotherapy and the related risks of second malignancy. This review of dosimetry for second cancer risk estimation introduces work carried out by WG9. The work concentrates on the measurement of peripheral (out-of-field) doses in water and anthropomorphic paediatric phantoms using a variety of dosimeters to measure photon and neutron doses. These include optically stimulated luminescence (OSL), radiophotoluminescence (RPL) and thermoluminescence (TLD) dosimeters for photon dosimetry (together with ion chambers for reference measurements) and track etch and superheated emulsion detectors for neutron measurements.

Improvements in cancer treatment have increased survival times and thus increased incidence of second cancer may be expected in the future. In addition, increased whole body exposure may result from some developments in radiotherapy. This means that radiotherapy clinics will need to simulate their treatments in order to estimate and minimize doses to healthy tissues and organs. The proposed work is designed to generate a robust dataset of out-of-field dose measurements which can be used for the development and validation of dose algorithms.

## PROCENA IZLAGANJA RADIOLOŠKOG OSOBLJA U DOMOVIMA ZDRAVLJA

**Jelica KALJEVIĆ<sup>1</sup>, Predrag BOŽOVIĆ<sup>1,2</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup> i Jelena STANKOVIĆ<sup>1,2</sup>**

1) Institut za nuklearne nauke Vinča, Univerzitet u Beograd, Srbija, jkaljevic@vinca.rs

2) Elektrotehnički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Srbija

### SADRŽAJ

*Cilj ovog rada je procena efektivnih doza radiološkog osoblja profesionalno izloženih jonizujućem zračenju u domovima zdravlja u Srbiji. Za procenu doza su primenjene dve metode: (1) merenje ambijentalnog ekvivalenta doze,  $H^*(10)$ , korišćenjem jonizacione komore; i (2) merenje ličnog ekvivalenta doze,  $Hp(10)$ , korišćenjem termoluminescentnih dozimetara (TLD). Doze su procenjene za ukupno 60 profesionalno izloženih lica koji većinom rade u nadgledanoj radijacionoj zoni. Godišnje doze su date za radiologe i radiološke tehničare za period od četiri uzastopne godine (2011-2014). Procenjena godišnja doza ne prelazi 4.7 mSv, na osnovu merenja  $H^*(10)$ , dok je 1.3 mSv maksimalna godišnja doza izmerena TLD metodom. Dobijeni rezultati pokazuju da doze osoblja ne prelaze zakonski predviđenu granicu godišnje doze od 20 mSv.*

### 1. Uvod

Domovi zdravlja su najbrnije zdravstvene ustanove na primarnom nivou u sistemu zdravstvene zaštite stanovništva. U Srbiji ima 158 domova Zdravlja koji se razlikuju po veličini i obimu posla [1]. Na odeljenjima radiologije u domovima zdravlja najučestalije se koriste rendgen aparati: i) za potrebe snimanja pluća, abdomena, ekstremiteta, itd; ii) za prosvetljavanje kod procedura kao što su pregledi gastrointestinalnog trakta i urinarnog trakta i iii) mamografiju i to kao dijagnostička i skrining metoda. U većini domova zdravlja koriste se i rendgen-aparati za stomatološku radiologiju. U ovim radiološkim procedurama koristi se x-zračenje nazivnih napona 25-150 kV.

Radiološko osoblje za vreme procedure može da se nađe u kontrolisanoj i nadgledanoj zoni. U kontrolisanoj zoni osoblje može biti izloženo direktnom ili rasejanom x-zračenju dok u nadgledanoj zoni osoblje može biti izloženo samo rasejanom x-zračenju, koje je dodatno oslabljeno zaštitnim barijerama koje okružuju rendgen-aparat.

Prema navedenom, radiološko osoblje jeste profesionalno izloženo spoljašnjem jonizujućem zračenju i obavezan je monitoring individualnog izlaganja. Za procenu efektivne doze osoblja mogu da se koriste dve metode: merenje ambijentalnog ekvivalenta doze  $H^*(10)$  na radnom mestu, i merenje ličnog ekvivalenta doze,  $Hp(10)$  [2].

Prema [2] merenje ambijetalnog ekvivalenta doze obavlja se makar jednom godišnje, i nakon značajnijih intervencija na rendgen-aparatu. Za merenje  $H^*(10)$  se koristi jonizaciona komora ili drugi adekvatan i etaloniran prenosni monitor zračenja.

U okviru lične dozimetrijske kontrole procenjuje se  $Hp(10)$  odgovarajućim pasivnim dozimetrima. Lična kontrola predstavlja deo sistema zaštite lica profesionalno izloženih spoljašnjem fonskom zračenju. Dozimetri s očitavaju jednom u mesec dana za kategoriju A profesionalno izloženih lica i jednom u tri meseca za ketegoriju B profesionslno izloženih lica [2]. Ovlašćeni dozimetrijski servisi u Srbiji koriste

termoluminescentne dozimetre za telo, radi procene ličnog ekvivalenta doze  $Hp(10)$ .

U ovom radu su dati rezultati godišnje kontrole ambijentalne doze na random mestu, i lične dozimetrijske kontrole radiološkog osoblja koje pripada grupi B. Rezultati su prikazani za četiri uzastopne godine (2011-2014).

## 2. Materijal i metode

Procena izlaganja profesionalno izloženih lica je izvršena korišćenjem dve metode: merenjem ambijentalne doze  $H^*(10)$  i merenjem ličnog ekvivalenta doze za telo  $Hp(10)$ .

### Merenje ambijentalnog ekvivalenta doze

Ambijentalni ekvivalent doze je operativna dozimetrijska veličina koja se koristi za dozimetrijsku karakterizaciju polja zračenja u okolini izvora. Ova veličina se meri u okviru kontrole profesionalnih izlaganja doze obavlja se makar jednom godišnje, i nakon značajnijih intervencija na rendgen-aparatu i na osnovu tih merenja moguće je proceniti dozu za profesionalno izložena lica.

Za merenje dozimetrijske veličine  $H^*(10)$  korišćen je prenosni dozimetar koji sadrži jonizacionu komoru pod pritiskom Victoreen 451P (Fluke Biomedical, USA). Ovaj dozimetar je etaloniran u jedinicama ambijentalnog ekvivalenta doze  $H^*(10)$ . Merenja su obavljena u režimu snimanja i prosvetljavanja uz primenu vodenog fantoma dimenzija  $20 \times 20 \times 15 \text{ cm}^3$ . Kod mamografskih procedura korišćeni fantom je debljine 4.5 cm od polimetilmetakrilata. Jačina ambijentalnog ekvivalenta doze za vreme trajanja procedure je merena na rastojanju koje odgovara poziciji glave, grudi, gonada i ruku lica koja upravljaju rendgen-aparatima. Procena doze je izvršena na osnovu rezultata merenja jačine ambijentalnog ekvivalenta doze po proceduri i radnog opterećenja u datoj ustanovi. Podaci o random opterećenju su dobijeni od samog osoblja. Procena doze dobijena na ovakav način odnosi se na radno mesto. U slučaju da na istom random mestu radi više operatera, ukupna doze je podeljenja sa brojem izvršilaca. Prilikom ove procene nije uzeto u obzir umanjenje doze usled upotrebe ličnih i kolektivnih zaštitnih sredstava.

### Merenje ličnog ekvivalenta doze

U Laboratoriji "Zaštita" za merenje ličnog ekvivalenta doze za celo telo,  $Hp(10)$ , koristi se merni sistem koga čine: komercijalni dozimetri, TLD -100 (LiF:Mg,Ti) (Harshaw, USA), čitač dozimetara "Harshaw Model 6600 PLUS Automated TLD Reader" (Harshaw, USA), program WinREMS (Harshaw, USA) i program TL dozimetrija. Sva merenje su izvršena na automatskom TLD čitaču koji se sastoji od programabilnog sistema baziranog na brzom zagrevanju gasa (azota), i sistema fotomultiplikatora koji mere intenzitet termoluminescentne svetlosti [3]. Program WinREMS (Windows based Radiation Evaluation and Management System) omogućava kontrolu merenja i izračunava ekvivalent doze prema (1):

$$D = \frac{Q \cdot ECC}{RCF} \quad (1)$$

gde je:  $D$  - izmereni ekvivalent doze u smislu  $Hp(10)$ ,  $Q$  - naelektrisanje na izlazu fotomultiplikatora,  $ECC$  - koeficijent kalibracije svakog pojedinačnog dozimetra,  $RCF$  - koeficijent kalibracije čitača.

Koeficijenti  $ECC$  i  $RCF$  se dobijaju pomoću tri automatske kalibracione procedure programa WinREMS: i) izbor kalibracionih dozimetara, ii) kalibracija čitača i iii)

kalibracija dozimetara. Za izračunavanje *RCF* koeficijenta, kalibracioni dozimetri se na odgovarajućem fantomu zrače u dozimetrijskoj laboratoriji sa sekundarnim standardom (SSDL) prema standardu ISO 4037 na referentnom radioaktivnom izvoru  $^{137}\text{Cs}$  [4, 5, 6]. Za određivanje *ECC*, koristi se iradijator u samom čitaču i program WinREMS. Konačan rezultat svih kalibracionih procedura je dozimetar spreman za korisnika. Program TL dozimetrija povezuje rezultate merenja iz programa „WinREMS“ sa bazom ličnih podataka kontrolisanih lica (ime, prezime, JMBG). Korisnik nosi dozimetar tri meseca, nakon čega se dozimetar očitava na TLD čitaču. Zbir svih očitavanja u toku jedne godine za datog korisnika predstavlja procenjenju godišnju efektivnu dozu.

### 3. Rezultati

Rezultati lične dozimetrijske kontrole su dati za deset domova zdravlja (DZ1-DZ10) i to za četiri uzastopne godine i za dva radna mesta: i) za radiologe (DRA) i ii) radiološke tehničare (RT). Na kontroli je bilo ukupno 16 DRA i 44 RT.

U Tabeli 1 je dat broj DRA i RT u posmatranim domovima zdravlja.

Tabela 2 prikazuje srednje efektivne godišnje doze za određeno radno mesto i za određen dom zdravlja, procenjene metodom merenja ambijentalne doze.

**Tabela 1. Broj radiologa i radioloških tehničara u posmatranim domovima zdravlja**

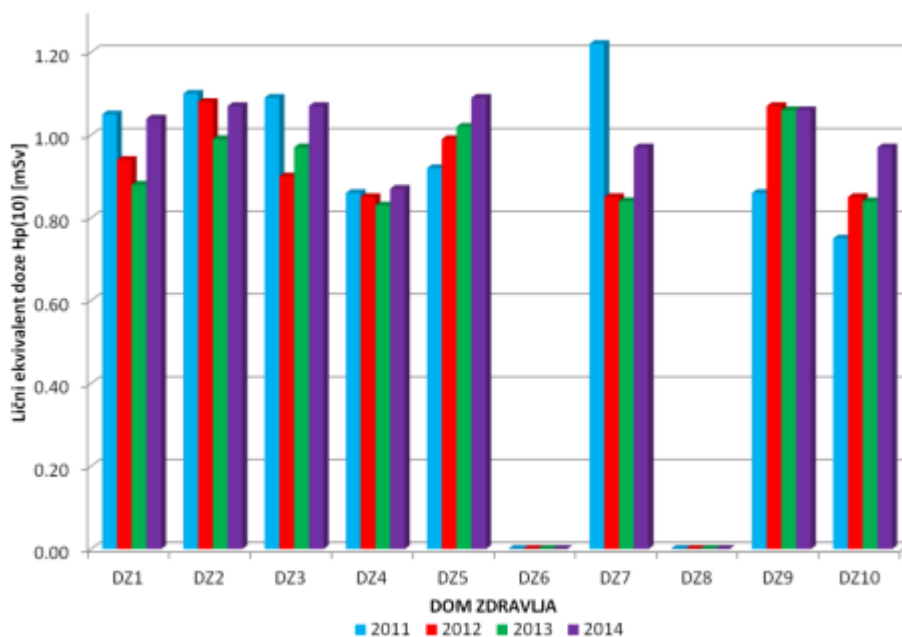
Ustanova	DZ1	DZ2	DZ3	DZ4	DZ5	DZ6	DZ7	DZ8	DZ9	DZ10
DRA[#]	1	2	2	5	1	-	1	-	1	3
RT[#]	2	6	3	13	1	6	1	2	3	7

**Tabela 2. Procenjene godišnje efektivne doze radiologa i radioloških tehničara metodom merenja  $H^*(10)$**

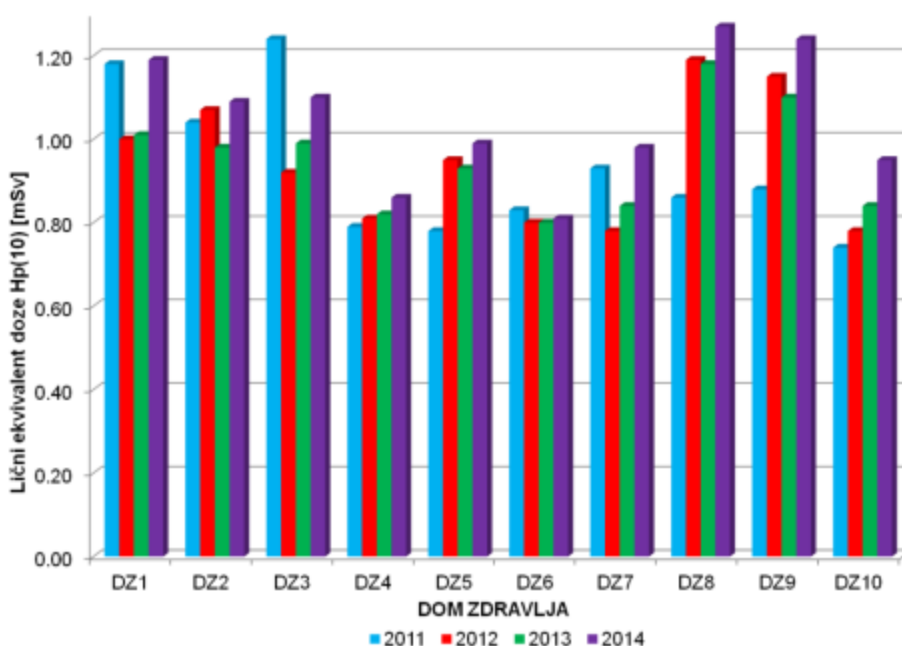
Ustanova	DZ1	DZ2	DZ3	DZ4	DZ5	DZ6	DZ7	DZ8	DZ9	DZ10
$E_{\text{DRA}}[\mu\text{Sv}]$	-*	29	4687	2.5	-*	-	-*	-	21	2.1
$E_{\text{RT}}[\mu\text{Sv}]$	0.26	0.62	0.25	2.7	0.53	0.39	0.6	1.2	9	0.75

\*Nisu prikazane vrednosti jer izmeren  $H^*(10)$  nije bio veći od nivoa prirodnog zračenja.

Na slikama 1. i 2. dati su rezultati srednjih efektivnih godišnjih doza za posmatrano radno mesto i za datu godinu.



Slika 1. Srednje godišnje efektivne doze za radiologe u domovima zdravlja (metoda merenja  $H_p(10)$ )



Slika 2. Srednje godišnje efektivne doze za radiološke tehničare u domovima zdravlja (metoda merenja  $H_p(10)$ )

#### 4. Diskusija

Rezultati pokazuju da su srednje efektivne doze procenjene dvema metodama, manje od zakonski propisane granice od 20 mSv/god. Maksimalne procenje vrednosti efektivne doze prema metodi merenja  $H^*(10)$  iznose 4.7 mSv i 9  $\mu$ Sv, respektivno za mesto DRA i RT. Ove maksimalne vrednosti se razlikuju od procenjenih maksimalnih efektivnih doza prema metodi merenja  $H_p(10)$ , koje iznose 1.3 mSv za oba radna mesta. Razlika koja se javlja u rezultatima ove dve metode može biti objašnjena time što:

1) u metodi merenja  $H^*(10)$  rezultat procene efektivne doze zavisi od informacija koje

daje osoblje i koje u datom trenutku ne mogu biti proverene; Ova metoda ne uzima u obzir atenuaciju usled upotrebe zaštitnih sredstava koja se u menjoj ili većoj meri koriste rutinski; Takođe, ova metoda ne prepoznaje neravnomernost u raspodeli radnog opterećenja među operaterima;

2) korisnik može da ne nosi redovno lični TLD, tako da TLD pokazuje dozu manju nego što je korisnik dozimetra primio.

## **5. Zaključak**

Lica profesionalno izložena spoljašnjem zračenju u domovima zdravlja rade sa generatorima rendgenskog zračenja. Procena efektivne godišnje doze može se izvršiti primenom dve metode. Prvi metod se sastoji od merenja ambijentalnog ekvivalenta doze, a drugi od merenja ličnog ekvivalenta doze. Rezultati u ovom radu pokazuju da ova dva metoda daju različite rezultate, ali oba pokazuju da su doze radiološkog osoblja manje od zakonske granice za profesionalno izlaganje jonizujućem zračenju.

## **6. Zahvalnica**

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja kroz projekat broj III43009.

## **7. Literatura**

[1] Zdravstveno-statistički godišnjak republike Srbije 2013. – Beograd (Dr Subotića 5), Institut za javno zdravlje *Srbije „Dr Milan Jovanović Batut”*, (2013), ISSN 2217-3714 (Online).

[2] Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima. *Sl. glasnik RS*, 86 (2011).

[3] Model 6600 PLUS Automated TLD Reader with WinREMSTM, *Thermo Electron Co.*, Oakwood Village, OH (2006).

[4] X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and dose rate meters and for determining their response as a function of energy, ISO 4037-1, (1996).

[5] X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and dose rate meters and for determining their response as a function of energy, ISO 4037-2, (1997).

[6] X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and dose rate meters and for determining their response as a function of energy, ISO 4037-2, (1999).

## **RADIOLOGY STAFF DOSE ASSESSMENT IN PRIMARY HEALTH CENTERS**

**Jelica KALJEVIĆ<sup>1</sup>, Predrag BOŽOVIĆ<sup>1,2</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup> and Jelena STANKOVIĆ<sup>1,2</sup>**

<sup>1</sup>*Vinca Institute of Nuclear Science, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

<sup>2</sup>*School of Electrical Engineering, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

### **ABSTRACT**

The aim of this study is to estimate the effective doses to workers occupationally exposed to ionizing radiation in small health centers in Serbia. To assess doses two methods were applied: (1) the measurement of the ambient equivalent dose,  $H^*(10)$  using ionization chambers routinely utilized during workplace monitoring; and (2) the measurement of the personal equivalent dose,  $H_p(10)$ , using thermoluminescent dosimeters routinely utilized during individual monitoring. Doses were estimated for 60 workers. Annual doses are given for radiologists and radiology technicians for a period of four consecutive years (2011-2014). The maximum recorded annual dose does not exceed 4.7 mSv assessed by the workplace monitoring method, or 1.3 mSv measured by the individual monitoring method. The results show that estimated doses are well below annual dose limits of 20 mSv for the occupational exposure.



## DIJAGNOSTIČKA RADIOGRAFSKA SNIMANJA TRUDNICA- ANALIZA RAZLOGA I SIGURNOSTI

Jelena POPIĆ RAMAČ<sup>1</sup>, Verica GARAY VRHOVEC<sup>2</sup>, Đurđica MILKOVIĆ<sup>3</sup>,  
Vinko VIDJAK<sup>1</sup>, Saveta MILJANIĆ<sup>4</sup>

1) *Klinički Zavod za dijagnostičku i intervencijsku radiologiju, Klinička bolnica Merkur,  
Zagreb, Hrvatska*

2) *Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada, Ksaverska cesta 2, Zagreb,  
Hrvatska*

3) *Dječja bolnica Srebrnjak, Srebrnjak 100, Zagreb, Hrvatska*

4) *Institut Ruđer Bošković, Sekundarni standardni dozimetrijski laboratorij, Zagreb,  
Hrvatska*

e.mail: jelena.popicramac@gmail.com

### SAŽETAK

Usprkos znanstvenim spoznajama temeljenim na dugogodišnjim studijama utjecaja zračenja u dijagnostičke svrhe na trudnicu i plod o toj temi vladaju zablude (kako u općoj populaciji tako i među liječnicima). Te se zablude odnose uglavnom na razmišljanje o svakoj dijagnostičkoj pretrazi koja rabi ionizirajuće zračenje kao razlogu za ozbiljnu zabrinutost i razmatranju artificijelog pobačaja kao mogućeg rješenja. Analizirali smo podatke savjetovanja trudnica ozračenih u dijagnostičke svrhe u KB Merkur kroz period od 4 godine. U tom periodu savjetovalo se 26 trudnica ozračenih u dijagnostičke svrhe u našoj ustanovi. Rezultati pokazuju da je najveći broj trudnica ozračen između 2 i 3 tjedna gestacije njih 36%, između 4 i 5 tjedna 32 %; do 2 tjedna 24%; a iznad 6 tjedana gestacije njih manje od 8%. Prosječne doze bile su: do 0,01 cGy kod 46,2% trudnica; 0,01-0,15 cGy kod 19,2% trudnica; 0,2-1 cGy kod 26,9%, a 1cGy i više kod 7,7% trudnica. Niti jedna savjetovana trudnica nije imala medicinsku indikaciju za pobačaj, makar je u malom postotku slučajeva pobačaj bio osobna subjektivna odluka. Obzirom ne postoje hrvatske smjernice za savjetovanje trudnica ozračenih u dijagnostičke svrhe preporuka je koristiti ICRP smjernice vezane za medicinske indikacije pobačaja kod određenih doza zračenja.

### 1. Uvod

Usprkos znanstvenim spoznajama [1,2] temeljenim na dugogodišnjim studijama utjecaja zračenja u dijagnostičke svrhe na trudnicu i plod o toj temi vladaju zablude (kako u općoj populaciji tako i među liječnicima). Te se zablude odnose uglavnom na razmišljanje o svakoj dijagnostičkoj pretrazi koja rabi ionizirajuće zračenje kao razlogu za ozbiljnu zabrinutost i razmatranju artificijelog pobačaja kao mogućeg rješenja. Razmišljanja o mogućem utjecaju ionizirajućeg zračenja na trudnicu i plod potiču od vremena prve primjene zračenja u dijagnostičke svrhe. Svi dosadašnji znanstveni rezultati vezani za ovu temu odnose na zaključke dobivene promatranjem modela na životinjama i osobito na proučavanju posljedica prirodnih incidenata (pada atomske bombe na Hiroshimu i Nagasaki, katastrofa s nuklearnim elektranama Chernobyl i Fukushima) [3]. Istraživanja na trudnicama naravno nisu dozvoljena. Kao liječnici radiolozi često smo u prilici svjedočiti o slučajevima nenamjernog ozračivanja žena u dijagnostičke svrhe, osobito u periodu kada i same ne znaju da su trudne. Nerijetko takve žene dolaze na savjetovanje zbog zabrinutosti za moguće štetne posljedice zračenja za plod. To savjetovanje vrši osoba zadužena za zaštitu od zračenja u pojedinoj

ustanovi, a ukoliko se radi o dijaskopskim postupcima traži se i pomoć medicinskog fizičara za izračun doze. Savjetovanje se vrši u terminima mogućih rizika [4,5]. Apsolutni rizik označava broj slučajeva/ $10^6$  populacije/mGy /godine. Relativni rizik označava broj osoba s štetnim efektima zračenja kod eksponirane populacije/ broj osoba s istim efektima kod neeksponirane populacije. Obično se kreće u vrijednostima od 1 do 2, no moguće i više. Povećanje rizika označava broj pojavnosti kod eksponiranih - br. pojavnosti kod neeksponiranih [6,7]. Govoreći u terminima rizika valja imati na umu da postoje određeni „bazalni“ rizici kod zdravih, zračenju neizloženih trudnica. Ti su rizici primjerice: oko 15% rizik za spontani pobačaj, 4-10% rizik za genetsku grešku, 4% za intrauterinu retardaciju rasta i 2-4% za jednu od velikih malformacija. Tri su važna razdoblja mogućeg djelovanja zračenja na reprodukciju: djelovanje na plodnost prije trudnoće s mogućim utjecajem na smanjenje plodnosti, djelovanje za vrijeme trudnoće s mogućim malformacijama ploda i djelovanje nakon trudnoće kada su mogući genetski efekti. Djelovanje zračenja u periodu prije trudnoće odnosi se na potencijalno smanjenje plodnosti, odnosno oštećenje gonada kod muškaraca i žena. Ovo je nestohastičko oštećenje za koje postoji jasna ovisnost o dozi i ne javlja se ispod određenog praga. Rezultati istraživanja u ovom polju dosta su jasni, no ovise naravno i o individualnoj osjetljivosti organizma [8]. Općenito se uzima da se iznad doze od 0,25 mGy javlja prolazno oštećenje spermatogeneze kod muškaraca, a kod doza iznad 2 mGy prolazna sterilnost kod žena. Doze od 2 mGy (ovisno o individualnoj osjetljivosti) mogu uzrokovati trajno oštećenje spermatogeneze u muškaraca, a doze iznad 3 mGy trajnu sterilnost u žena [9,10]. Vrijedno je spomenuti dvije velike studije o navedenoj problematici na američkim radiolozima 1927 i 1955 koje su značajno pridonjele spoznajama o utjecaju zračenja na plodnost. Izlaganje zračenju prije začeća bilo kojeg od budućih roditelja ne povećava rizik od karcinoma niti malformacija kod djece. Ova činjenica proizlazi iz istraživanja preživjelih tijekom pada atomske bombe, kao i istraživanja roditelja koji su u djetinjstvu liječeni radioterapijom [11,12].

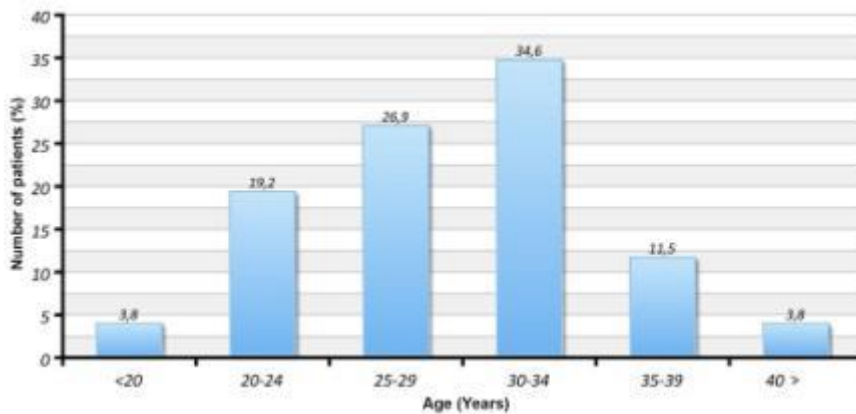
## **2. Pacijenti i metode**

Analizirali smo podatke savjetovanja trudnica ozračenih u dijagnostičke svrhe u KB Merkur kroz period od 4 godine. U tom periodu savjetovalo se 26 trudnica ozračenih u dijagnostičke svrhe u KB Merkur. Savjetovanje je uvijek vršila osoba zadužena za zaštitu od zračenja u našoj ustanovi – liječnik specijalist radiolog. Doze su ovisne o uređajima koji se koriste za snimanja, ali i o načinima snimanja pa je izračun najtočniji ako se radi za svaki uređaj posebice. U nekim slučajevima doza je izračunata uz pomoć medicinskog fizičara i to onda kada se radilo o intervencijskom postupku.

## **3. Rezultati**

Rezultati istraživanja (*Grafikon1.*) pokazali su da je na savjetovanje u navedenom periodu pristupilo 3,8% trudnica u dobi do 20 godina, 19,2 % u dobi 20-24 godine, 26,9% trudnica u dobi 25-29 godina, 34,6 % u dobi između 30 i 34 godine, 11,5% u dobi 34-39 godina i 3,8% trudnica iznad 40 godine života. Rezultat se poklapa s općim trendom povećanja dobi u trudnica. Srednja dob trudnica iznosila je 29,1 +/- 5,8 godina.

Prema broju prethodnih poroda (*Grafikon 2*) na savjetovanju je bilo 46,2% primipara, 38,5 % trudnica kojima je to bio drugi porod i 15,4 % trudnica kojima je to bio treći porod.

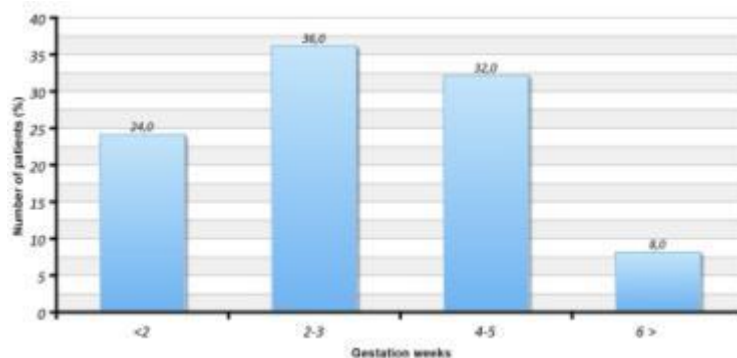


**Grafikon 1. Dob ispitanica u trenutku ozračivanja**



**Grafikon 2. Broj prethodnih poroda**

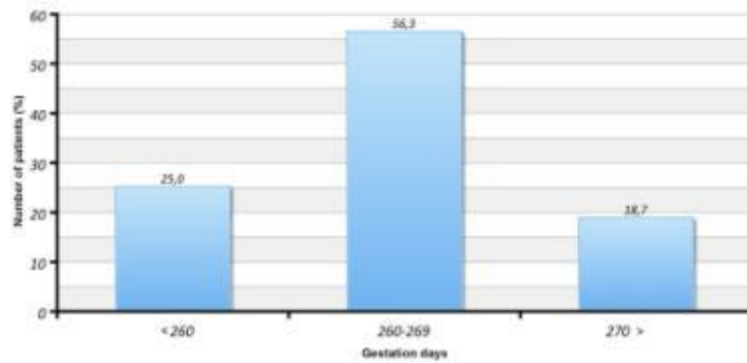
Prema gestacijskoj dobi u trenutku ozračivanja (*Grafikon 3.*) 24% trudnica bile su u periodu do 2. tjedna gestacije, 36% između 2. i 3. tjedna, 32% između 4. i 5. tjedna, a 8% iznad 6 tjedna. Srednja gestacijska dob ispitanica iznosila je 3,4 +/- 2,6 tjedana.



**Grafikon 3. Gestacijska dob u trenutku ozračivanja**

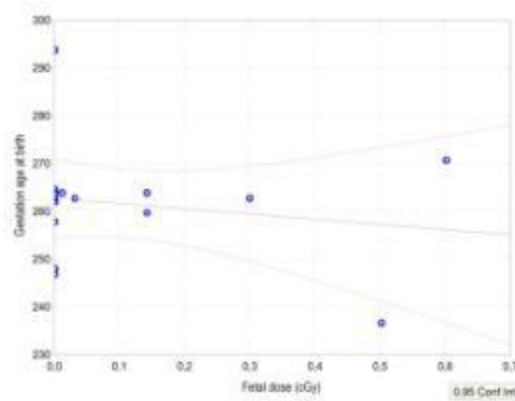
Prema gestacijskoj dobi pri porodu (*Grafikon 4.*) 25% trudnica rodilo je nakon 260 dana gestacije ili nešto manje; 56,3% trudnica nakon 260-290 dana gestacije, a 18,7% nakon 270 dana gestacije i više.

Srednje trajanje trudnoće (na dan poroda) iznosilo je 262 +/- 12,3 dana s rasponom -> 237 – 294 dana (=34 – 42 tjedana).



**Grafikon 4. Gestacijska dob pri porodu**

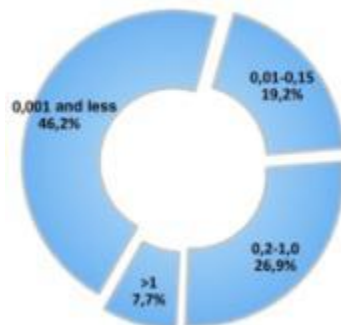
Grafikon 5. pokazuje da je postojala negativna ( $r=-0,173$ ) korelacija između fetalne doze i gestacijske dobi pri porodu. Korelacija ( $p=0,534$ ) se nalazi na granici značajnosti. Jedno mjerenje (35 cGy) izbačeno je iz ove kalkulacija kao outlier.



**Grafikon 5. Korelacija gestacijske dobi pri porodu s fetalnom dozom**

Prosječne doze bile su: do 0,01 cGy kod 46,2% trudnica; 0,01-0,15 cGy kod 19,2% trudnica; 0,2-1 cGy kod 26,9%, a 1cGy i više kod 7,7% trudnica ( *Grafikon 6*). Srednja fetalna doza = 1,6 +/- 6,8 cGy .

Prema izračunatim fetalnim dozama ( *Grafikon 6.*) ta je doza iznosila 0,001 cGy i manje u 46,2% ispitanica; 0,01-0,15 cGy u 19,2% slučajeva; 0,2-1,0 cGy u 26,9% i >1 cGy u 7,7% ispitanica. Srednja fetalna doza iznosila je 1,6 +/- 6,8 cGy



**Grafikon 6. Prosječne doze [cGy]**

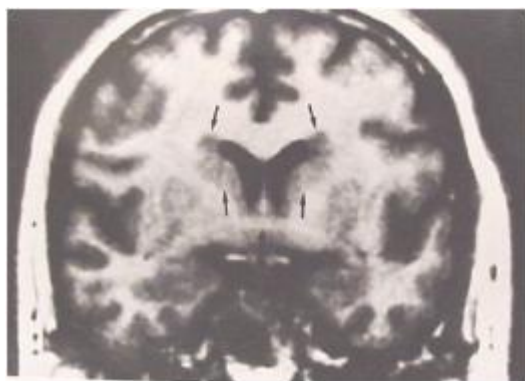
Niti u jednom slučaju nije savjetovan pobačaj obzirom nije bio medicinski opravdan. Subjektivna odluka je bila zadržati trudnoću u 93,3% slučajeva, a usprkos savjetu da trudnoću zadrže 6,7% trudnica se svojevremeno odlučilo za pobačaj.

Prema kategoriji učinjenih snimki bilo je 30,8% standardnih snimki prsišta; 19,2% standardnih snimki trbuha i zdjelice, 11,5% standardnih snimki glave i vrata, 7,7% dijaskopija; 7,7% CT snimki abdomena; 7,7% CT snimki glave i vrata; 7,7% CT snimki prsišta; 3,8% CT snimki ekstremiteta i 3,8% svih ostalih snimki.

Gonade su bile u primarnom snopu u 38,5% slučajeva bile u primarnom snopu, dok su u 61,5% slučajeva bile van primarnog snopa. Srednja fetalna doza kada su gonade bile van primarnog snopa iznosila je 0,023 +/- 0,047 cGy, dok je u slučajevima kada su gonade bile u primarnom snopu srednja fetalna doza iznosila 0,805 +/- 1,051 cGy. Razlika je statistički značajna ( $p=0,001$ )

#### 4. Rasprava

Rizici od zračenja za vrijeme trudnoće (in utero) ovisni su o: gestacijskoj dobi u trenutku snimanja i apsorbiranoj dozi. Rizici su najveći za vrijeme organogeneze i u ranom fetalnom razdoblju, nešto manji u drugom i najmanji u trećem trimestru [2,8]. Prva 2 tjedna poslije začeća ili druga 2 tjedna od izostanka menstruacije embrio je vrlo rezistentan na rtg-zrake. Osjetljiv je na letalne utjecaje kod doza 50 mSv. Između 3.-8. tjedna trudnoće kod doza ispod 200 mSv embrio nije podložan: anomalijama, pobačaju niti retardaciji rasta. Između 8.-15. tjedna trudnoće embrio/fetus je osjetljiv na efekte zračenja na CNS ako je veće od 300 mSv. Iznad 20. tjedna rezistentan je na utjecaj na razvoj i nije osjetljiviji od majke. Nema osjetljivost na dijagnostičke razine doza [13, 14]. Svi učinci zračenja u trudnoći su stohastički odnosno za njih ne postoji siguran prag ispod kojeg nisu mogući. Teratogeni učinci nisu nasljedni, genetski se nasljeđuju. Najvažniji mogući učinci zračenja za vrijeme trudnoće su: prenatalna smrt, neonatalna smrt, kongenitalne anomalije, maligne bolesti, usporenje rasta/anomalni rast, genetski učinci, te mentalna retardacija [15,16]. Oštećenja centralnog živčanog sustava najvjerojatnija su kod djelovanja zračenja između 8. i 25. tjedna nakon začeća jer je CNS upravo u tom periodu osobito osjetljiv na zračenje. Fetalne doze veće od 100 mGy mogu uzrokovati smanjenje kvocijenta inteligencije (IQ). Fetalne doze od 1000 mGy mogu uzrokovati mentalnu retardaciju i mikrocefaliju, osobito od 8.-15. tjedna i nešto manju retardaciju od 16.-25. tjedna [17,18].



**Slika 1. Heterotopična siva tvar uz ventrikule kod mentalno retardirane osobe koja je nastala zbog zračenja in-utero**

Kao što je već rečeno ne postoji siguran prag za izazivanje oštećenja in utero no drži se da se te doze kreću oko 100-200 mGy. Ove doze mogu izazvati oštećenja CNS-a. Valja napomenuti da se fetalne doze od 100 mGy ne dostižu se ni snimanjem 3 CT zdjelice ili 20 radiografskih snimki. no zato su potencijalno opasniji intervencijski postupci u zdjelici pod dijaskopijom/fluoroskopijom i radioterapija kada se postižu i značajno više doze [15,17]. Veliku zabrinutost predstavlja i mogućnost izazivanja leukemija i karcinoma. Poznato je da zračenje povećava rizik nastanka leukemija i određenih tipova karcinoma kod djece i odraslih i to najvećim dijelom karcinoma štitnjače, dojke i bronha. Tijekom većeg dijela trudnoće embrio/fetus je izložen istom riziku karcinogenih utjecaja kao i dijete. U tom je smislu iznimno vrijedna studija britanske pedijatrice Alice Stewart i suradnika koja je proučavala 9000 slučajeva leukemije u ozračenju populaciji i gotovo isti broj u kontrolnoj skupini. Rezultati te i sličnih studija doveli su do izračuna rizika za leukemiju prikazanih u *Tablici 1.*

**Tablica 1. Relativni rizici razvoja leukemije u djece izložene zračenju**

<b>RELATIVNI RIZIK LEUKEMIJE U DJECE NAKON ZRAČENJA</b>	
<i>VRIJEME IZLAGANJA</i>	<i>RELATIVNI RIZIK</i>
1. TRIMESTAR	8,3
2. TRIMESTAR	1,5
3. TRIMESTAR	1,4
UKUPNO	1,5

Relativni rizik za leukemiju može biti visok i iznosi 1,4 ( 40% viši od uobičajenog rizika-incidencije) kod fetalnih doza od 10 mGy. Apsolutni rizik od razvoja raka za osobu koja je in-utero eksponirana zračenju od 10 mGy između 0-15 godina je 1 smrt od karcinoma/1700. tablica 2 prikazuje vjerojatnost rođenja zdravog djeteta u ovisnosti o dozi zračenja. Kao što je iz tablice vidljivo tek kod doza iznad100mGy smanjuje se vjerojatnost ploda bez malformacije. Vjerojatnost ploda bez karcinoma do 19.godine života smanjuje se minimalno i nakon doza od 10 mGy, nešto više s daljnjim porastom doze [15,17].

**Tablica 2. Vjerojatnost rođenja zdravog djeteta u ovisnosti o dozi zračenja**

<b>Doza na plod (mGy) iznad prirodnog zračenja</b>	<b>Vjerojatnost ploda bez malformacije</b>	<b>Vjerojatnost ploda bez karcinoma (0-19god.)</b>
0	97	99.7
1	97	99.7
5	97	99.7
10	97	99.6
50	97	99.4
100	97	99.1
>100	Moguće	Viša

Nepoželjni učinci zračenja izravno su ovisni o dozi i to fetalnoj dozi. Za izračun te doze potrebno bi bilo znati trajanje trudnoće, anatomske karakteristike pacijentice i način snimanja odnosno korištenje zaštitnih sredstava. No u osnovi ta je doza približno jednaka dozi na uterus (Slika 2.)[18,19]

• Gornji abdomen	1 mSv (0.1 rem)
• L-S kratjež.	4 mSv (0.4 rem)
• Zdjelica	2 mSv (0.2 rem)
• kukovi/ femur	3 mSv (0.3 rem)
• Abdomen	2.5 mSv (0.25 rem)
• Pasaža	10 mSv (1.0 rem)
• IVU	6 mSv (0.6 rem)
• CT ABDOMENA	30 mSv (3.0 rem)

**Slika 2. Doze na uterus –prosječne vrijednosti (preuzeto iz Wagner st al. Exposure of pregnant patient to diagnostic radiations, 1997,)**

Kako bi se stekao uvid u približne fetalne doze kod pojedinih pretraga potrebno je poznavati uređaje na kojima se snimanja vrše i tehniku snimanja. Prosječne doze prikazuje Tablica 3. (podaci iz Velike Britanije, 1998).

**Tablica 3. Prosječne doze tijekom pojedinih pretraga**

<i>Data from the UK, 1998</i>		
Dose Examination	Mean (mGy)	Maximum (mGy)
Barium meal (UGI)	<b>1.1</b>	<b>5.8</b>
Barium enema	<b>6.8</b>	<b>24</b>
Head CT	<b>&lt;0.005</b>	<b>&lt;0.005</b>
Chest CT	<b>0.06</b>	<b>1.0</b>
Abdomen CT	<b>8.0</b>	<b>49</b>
Pelvis CT	<b>25</b>	<b>80</b>
Abdomen	<b>1.4</b>	<b>4.2</b>
Chest	<b>&lt;0.01</b>	<b>&lt;0.01</b>
Intravenous uro-gram; lumbar spine	<b>1.7</b>	<b>10</b>
Pelvis	<b>1.1</b>	<b>4</b>
Skull; thoracic spine	<b>&lt;0.01</b>	<b>&lt;0.01</b>

## 5. Zaključak

U postupcima s ozračenim trudnicama u Hrvatskoj valja slijediti Zakon o zaštiti od zračenja i sigurnosti izvora ionizirajućeg zračenja (**Narodne novine**«, broj 64/06) i koristi se smjernicama ICRP (International Commission for radiation Protection). Kod žena u reproduktivnoj dobi prije postupka sa izvorom ionizirajućeg zračenja treba utvrditi mogućnost trudnoće. Izostanak menstrualnog ciklusa treba smatrati trudnoćom dok se ne dokaže drugačije. U čekaonici mora biti pisano upozorenje za trudnice:

**Ukoliko postoji mogućnost trudnoće molimo Vas da obavjestite o tome liječnika ili tehnologa prije snimanja ili davanja kontrastnog sredstva.**

Svi medicinski postupci (na okolišu ili pacijentu) moraju biti opravdani (veća korist od rizika). Prije samog postupka mora se provjeriti njegova opravdanost. Nakon što se odlučimo za postupak fetalnu dozu treba smanjiti koliko je moguće za određeni dijagnostički zadatak. Trudnica (pacijentica ili trudna zaposlenica) ima pravo znati količinu i tip potencijalnih efekata zračenja koji mogu nastati zbog ekspozicije in- utero. Komunikacija s takvom osobom trebala bi je informirati o visini rizika. Rizik je zanemariv kod niskodoznih postupaka (<1 mGy na fetus). Ako su fetalne doze iznad 1 mGy potrebno je detaljnije objašnjenje.

Prema hrvatskom Zakonu o radiološkoj i nuklearnoj sigurnosti definirano je da:

### Članak 26.

- (1) Izloženoj radnici tijekom trudnoće nositelj odobrenja za obavljanje djelatnosti s izvorima ionizirajućeg zračenja, nositelj odobrenja za obavljanje nuklearne djelatnosti, odnosno korisnik mora osigurati radno mjesto na kojem efektivna doza ne smije prijeći 1 mSv godišnje.**
- (2) Na radnim mjestima na kojima postoji mogućnost radioaktivnog onečišćenja ne smiju raditi žene koje doje.**

Radioterapija i intervencijski postupak pod dijaskopijom mogu uzrokovati fetalne doze od 10-100 mGy ili više ovisno o postupku. Poslije ovakvih postupaka potrebno je izračunati fetalnu dozu i potencijalni rizik (medicinski fizičar)

Preporuke za savjetovanje trudnica su slijedeće:

- 1. Kod fetalnih doza do 10 mGy Zadržati trudnoću i objasniti rizik usporedbom s rizicima od prirodnih izvora
- 2. Kod fetalnih doza 10-50 mGy koristiti pravilo “wait and see”. Primijeniti sve dijagnostičke metode za rano otkrivanje anomalija (citologija, uzv..)
- 3. Kod fetalnih doza 50-100 mGy ako nema dodatnih faktora rizika (anamneza, naslijeđe, pušenje, alkohol, lijekovi i slično) tada koristiti pravilo “wait and see”; ako postoje dodatni faktori ima opravdanja preporuka za pobačaj



- 4. Kod fetalnih doza 100-250 mGy preporuka za prekid trudnoće, osim ako roditelji prihvate mogućnost fizičke ili mentalne anomalije te rane leukemije
- 5. Kod fetalnih doza 250 mGy i više preporuka je bezuvjetni prekid trudnoće ( zbog visoke vjerojatnosti teške anomalije ili teške retrdacije)

## 6. Literatura

- [1] Kalender WA, Schmidt BA, Zankl M, Schmidt M. A PC program for estimating organ dose and effective dose values in computed tomography. *Eur. Rad.* 9 (1999) 555-562.
- [2] U.S. exposure to medical radiation soars, ACR issues new white paper on dosage. *Diag.Imag.Intell.Rep.* June 2007. Available online at: [http://www.g2reports.com/issues/DIIR/2007\\_6/1612608-1.html](http://www.g2reports.com/issues/DIIR/2007_6/1612608-1.html)
- [3] Pierce DA, Preston DL., Radiation-related cancer risks at low doses among atomic bomb survivors. *Radiat. Res.* 154 (2000) 178-186.
- [4] Brenner DJ, Elliston CD. Estimated radiation risks potentially associated with full-body CT screening. *Radiology.* 232 (2004) 735-738.
- [5] Hurwitz LM, Yoshizumi TT, Reiman RE, et al. Radiation dose to the female breast from 16-MDCT body protocols. *AJR Am. J. Roentenol.* 186 (2006) 1718-1722.
- [6] Khursheed A, Hillir MC, Shrimpton PC, Wall BF. Influence of patient age on normalized effective doses calculated for CT examinations. *Br. J. Radiol.* 75 (2002) 819-830.
- [7] Hall EJ. Lessons we have learned from our children: Cancr risks from diagnostic radiology. *Pediatr. Radiol.* 32 (2002) 700-706.
- [8] Bushong S. Radiologic science for tehnologists.9. edt (2011) 429-523.
- [9] VockP, Soucek M, Daep M, Kalender WA. Lung:spiral volumetric CT with single -breath –hold technique, continous transport, and scanner rotation. *Radiology* 176 (1990) 864-867.
- [10] Clemons M, LoijensL, Gross P. Breast cancer risk following irradiation for Hodgkin`s disease. *Cancer. Treat. Rev.* 26 (2000) 291-302.
- [11] Baranov aE, Guskova aK, Nadejina NM, Nugis v. Chernobyl experience: biological indicators of exposure to ionising radiation. *Stem. Cells.* (1995) 13-69.
- [12] Kumagai E, Tanaka R, Kumagai T, Onomichi M, Sawada S. Effects of long-term radiation exposure on chromosomal abberation in radiological tehnologist. *J. Radiat. Res.* 31.3 (1990) 270
- [13] Nadich DP, Marhall CH, Gribbin C, Arams RS, Mc Cauley DI. Low-dose CT of the lungs: preliminary observations. *Radiology* 175 (1990) 729-731.
- [14] UNSCEAR 2000 Medical Radiation Exposures (2006) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation Report to the General Assembly: available at: <http://cnts.wpi.edu/RSH/Docs/UN-Chernobyl/inex.html>
- [15] European Commision (radiological protection pages) available at: <http://europa.eu.int/comm/environment/radprot>
- [16] International Atomic Energy Agency: available at: <http://www.iaea.org>
- [17] International Commission on Radiological Protection: available at: <http://www.icrp.org>
- [18] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: <http://www.unscear.org>
- [19] World Health Organization: <http://www.who.int>

**SAFETY OF RADIOGRAPHIC IMAGING DURING PREGNANCY**  
**Jelena POPIĆ RAMAČ<sup>1</sup>, Verica GARAY VRHOVAČ<sup>2</sup>, Đurđica MILKOVIĆ<sup>3</sup>,**  
**Vinko VIDJAK<sup>1</sup>, Saveta MILJANIĆ<sup>4</sup>**

- 1) *Clinical Department for Diagnostic and Interventional Radiology, University Hospital Merkur, Zagreb, Croatia, jelena.popic.ramac@gmail.com*
- 2) *Institute for Medical Research and Occupational Health, Zagreb, Croatia, vgaraj@imi.hr*
- 3) *Childrens hospital Srebrnjak, Zagreb, Croatia, durdica.milkovic@gmail.com*
- 4) *Ruđer Bošković Institute, Radiation Chemistry and Dosimetry Laboratory, Zagreb, Croatia*

**ABSTRACT**

There are many false assumptions regarding influence of radiation on pregnant patients and fetus during diagnostic procedures in spite of scientific facts based on studies (both in general populace and among physicians). Aim of our study was to determine the incidence of irradiation exposure that would justify medically induced termination of the pregnancy in our hospital.

We have analyzed the data of counseling of pregnant patients exposed to ionizing radiation during diagnostic procedures in University Hospital Merkur during a period of four years. In this period we had 26 patients come in for counseling due to exposure to ionizing radiation during pregnancy.

Results show that most of these patients have been exposed to radiation between 2nd and 3rd week of gestation (36%), between 4th and 5th week – 32%; before 2nd week – 24%; and after 6th week of gestation less than 8%. Average doses were: up to 0,01 cGy in 46,2% patients; 0,01-0,15 cGy in 19,2% patients; 0,2-1 cGy in 26,9% and 1 cGy or more in 7,7% of patients.

None of the counseled patients had a medical indication for abortion, even though in a small percentage of patients abortion was a personal subjective decision. There was no evidence of radiation damage to the fetus in any of the routine diagnostic procedures performed in our study.

## PRENATALNA IZLAGANJA U DIJAGNOSTIČKOJ RADIOLOGIJI

**Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup>, Danijela ARANĐIĆ<sup>1,2</sup>, Predrag BOŽOVIĆ<sup>1,2</sup>,  
Sandra ČEKLIĆ<sup>2</sup>, ĐORĐE LAZAREVIĆ<sup>2</sup>**

1) Elektrotehnički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Srbija

2) Institut za nuklearne nauke Vinča, Univerzitet u Beograd, Srbija

ociraj@vinca.rs

### SADRŽAJ

*Dijagnostička primena x-zračenja koja ima za posledicu ozračivanje embriona ili fetusa može nastati nenamerno ili namerno, u slučaju urgentnih medicinskih stanja. U oba slučaja, procena doze i rizika za embrion ili fetus je od izuzetnog značaja. Rizik zavisi od faze trudnoće primljene doze i u opštem slučaju, nije značajan kada pregled ne obuhvata region abdomena. U ostalim slučajevima, ukoliko je doza za embrion ili fetus manja od 100 mGy, prekid trudnoće nije opravdan sa stanovišta radijacionog rizika. U radu je dat pregled nivoa doza i odgovarajućeg radijacionog rizika za embrion i fetus, pregled metoda za procenu doze za embrion i fetus uključujući i iskustva stečena tokom procenu doze za embrion i fetus tokom desetogodišnjeg perioda u Republici Srbiji i pregled metoda za optimizaciju radiološke prakse prilikom izlaganja trudnica jonizujućim zračenjima u medicini.*

### 1. Uvod

Trudnoća se smatra najznačajnijom kontraindikacijom za radiološke preglede koji se baziraju na primeni jonizujućih zračenja, imajući u vidu potencijalne radiobiološke efekte za embrion ili fetus. Međutim, dijagnostička primena x-zračenja kod pacijenata u reproduktivnom kapacitetu ili tokom trudnoće može nastati nenamerno ili sa namerom, u slučaju urgentnih medicinskih stanja. Prilikom izlaganja jonizujućim zračenjima u slučaju urgentnih stanja u obzir mora biti uzet benefit za majku i benefit za nerođeno dete, imajući u vidu da prisutvo trudnoće ne eliminiše potrebu za dijagnostičkom procedurom kada je korist veća od radijacionog rizika [1-6]. S druge strane, nenamerna izlaganja tokom trudnoće obično nastaju u ranoj fazi trudnoće, kod pacijenata koji su upućeni na radiološki pregled pre otkrivanja trudnoće [6]. U oba slučaja, procena doze i rizika za embrion ili fetus je od izuzetnog značaja. Rizik zavisi od faze trudnoće, primljene doze i u opštem slučaju, nije značajan kada pregled ne obuhvata region abdomena pacijenta [7,8]. Pojam embrion se koristi u ranoj fazi trudnoće, kada nastaju organi i tkiva. Krajem trećeg meseca ovaj proces se završava, pa se u daljem toku trudnoće koristi pojam plod ili fetus. Oba pojma, embrion i fetus, biće korišćen u ovom radu, imajući u vidu potrebu za porcenom doze tokom celokupnog perioda trudnoće. U radu je dat pregled nivo doza i odgovarajućeg radijacionog rizika za embrion i fetus, pregled metoda za procenu doze za embrion i fetus uključujući rezultate procene doze za embrion i fetus tokom desetogodišnjeg perioda u Republici Srbiji i pregled metoda za optimizaciju radiološke prakse prilikom izlaganja trudnica jonizujućim zračenjima u medicini.

### 2. Namerna medicinska izlaganja u trudnoći

U smislu osnovnih principa zaštite od zračenja definisanim u relevantnim međunarodnim standardima [1,4,5], kontola doze za embrion ili fetus koja nastaje kao posledica medicinskih izlaganja bazira se na sledećim elementima [9]:

- Opravdanost pregleda;
- Procena doze i rizika za embrion ili fetus;
- Inforimsanje pacijenta i njenog lekara o nivou doze i rizika;
- Optimizacija pregleda.

Kada je trudnoća potvrđena i kada pregled uz primenu jonizujućih zračenja ne može biti odložen do porođaja, potrebno je razmotriti mogućnost primene metoda za koje je karakteristična niska doza jonizujućih zračenja ili isključuju primenu jonizujućih zračenja. U proceni benefita i rizika potrebno je razmotriti sve rizike za majku i nerođeno dete, uključujući i rizik od odlaganja procedure, odnosno dijagnoze. Izlaganja embriona ili fetusa jonizujućim zračenjima može potencijalno prouzrokovati dve vrste efekata [3,6,7,8, 10,11]:

- Tkivne reakcije, u vezi oštećenja velikog broja ćelija, za koje postoji prag doze;
- Stohastički efekti, u vezi oštećenja pojedinačne ćelije, za koje ne postoji prag doze.

Tkivne reakcije nisu moguće na dozama manjim od 100 mGy [5], dok stohastički efekti mogu nastati na bilo kojoj dozi a obuhvataju nasledne efekte i razvoj karcinoma a njihova verovatnoća je srazmerna primljenoj dozi. Rizik za nasledne efekte je značajno manji u odnosu na rizik za karcinom. Prirodna incidenca za kongenitalne efekte iznosi 1-6 %, uključujući značajne i manje značajne malformacije, dok rizik za nasledne efekte koji su posledica doze od 25 mGy iznosi 0.012% i značajno je manji u odnosu na prirodnu incidencu ovih efekata [6].

**Tabela 1. Potencijalni zdravstveni efekti prenatalnih izlaganja isključujući karcinogenezu [10,11]**

Faza razvoja	Period gestacije (nedelja)	<50 mGy	50-100 mGy	>100 mGy
Blastogeneza	0-2	Nema efekta	Nema efekta	Nema efekta
	3-4	Nema efekta	Verovatno nema efekta	Moguć spontani prekid trudnoće (50% u slučaju doze od 1 Gy , 100% u slučaju doze od 5 Gy)
Organogeneza	5-10	Nema efekta	Potencijalni biološki efekti nisu klinički detektabilni	Kongenitalne malformacije, rizik raste sa porastom doze
Fetogeneza	11-17	Nema efekta	Potencijalni biološki efekti nisu klinički detektabilni	Rizik za smanjenje IQ ili mentalnu retardaciju
	18-27	Nema efekta	Nema efekta	Smanjenje IQ nije detektabilno u opsegu doza u dijagnostičkoj radiologiji
	>27	Nema efekta	Nema efekta	Nema efekta

Radijacioni rizik zavisi od faze trudnoće i doze za embrion ili fetus. Postoje brojne metode za procenu faze trudnoća i za procenu doze o kojima će biti reči u narednom poglavlju. Međutim, tačna procena doze nije uvek neophodna. Na primer, izlaganje tokom prve dve nedelje trudnoće ili u potpunosti prekida trudnoću ili nema posledica, tako da u ovoj fazi procena doze nije neophodna. Pored toga, procena doze nije neophodna, ili nije neophodna sa velikom tačnošću u slučaju kada je očekivana doza za embrion ili fetus manja od 10 mGy [3,4]. Značajnijom dozom u smislu radijacionog

rizika smatra se doza veća od 10 mGy [4].

**Tabela 2. Tipične vrednosti doze za embrion ili fetus i rizik za karcinom u detinjstvu kao posledica medicinskih izlaganja jonizujućim zračenjima [6]**

Procedura	Anatomska regija	Tipična doze za embrion ili fetus (mGy)	Rizik za karcinom
Radiografija	Glava	0.001-0.01	<10 <sup>-6</sup>
Radiografija	Zub		
Radiografija	Pluća		
Radiografija	Grudni deo kičme		
Radiografija	Mamografija		
CT	Glava	0.1-1.0	10 <sup>-5</sup> -10 <sup>-4</sup>
Radiografija	Abdomen		
Fluoroskopija	Želudac		
Radiografija	Karlica		
Radiografija	Kuk		
CT	Plevimetrija		
CT	Pluća i jetra	1.0-10	10 <sup>-4</sup> -10 <sup>-3</sup>
Fluoroskopija	Irigografija		
Radiografija/Fluoroskopija	Intrevenska urografija		
CT	Lumbalna kičma		
CT	Abdomen	10-50	10 <sup>-3</sup> - 2·10 <sup>-2</sup>
CT	Karlica		
CT	Karlica i abdomen		
CT	Karlica, abdomen i pluća		

Potencijalni radijacioni efekti za embrion i fetus prikazani su u Tabeli 1. Na osnovu rezultata dostupnih epidemioloških studija, smatra se da je rizik za karcinogenezu konstantan tokom celokupnog perioda trudnoće [10]. Na nivou doze za embrion ili fetus od 10 mGy, relativni rizik za razvoj karcinoma iznosi 1.4 u izloženoj u odnosu na neizloženu populaciju, ali je potrebno istaći da je rizik veoma mali i iznosi 0.06%. Za dozu od 100 mGy, rizik iznosi 0.6%, dok je za celokupan životni vek, rizik od izlaganja embriona ili fetusa jednak riziku od izlaganja u detinjstvu [3]. Ovi efekti se moraju posmatrati u kontekstu prirodne incidence karcinoma koja iznosi 1:500 [6].

### 3. Metodologija procene doze za embrion i fetus

Metode za procenu doze za fetus zavise od vrste dijagnostičke procedure i faze trudnoće [9,12-18], i generalno se zasnivaju na konverziji neke od specifičnih, direktno merljivih dozimetrijskih veličina u dozu za embrion i fetus. U konvencionalnoj radiografiji, koriste se konverzioni faktori iz kerme u vazduhu u dozu za embrion i fetus [17]. Različit set konverzionih faktora se koristi za prvi, drugi i treći trimestar trudnoće, a za procenu doze neophodna je informacija o radiografskoj tehnici (napon rendgenske cevi, rastojanje fokus-koža pacijenta), filtraciji snopa x-zračenja, veličini pacijenta, poziciji embriona ili fetusa i kermi u vazduhu na površini kože pacijenta.

Za potrebe procene doze za embrion ili fetus, fluoroskopski pregled se može razložiti na niz radiografskih projekcija. Ukupna doza za embrion ili fetus je tada zbir doza od pojedinih radiografskih projekcija. Pored toga, dostupni su i konverzioni faktori koji odgovaraju dozi za embrion ili fetus normiranoj na dozimetrijsku veličinu proizvod kerme i površine [12,17,18].

Postoji nekoliko razvijenih metoda za procenu doze za embrion ili fetus od pregleda u kompjuterizovanoj tomografiji (CT). Imajući u vidu specifičnosti CT pregleda i zavisnot doze od veličine i položaja embriona ili fetusa, za tačnu procenu doze za fetus neophona je infomacija o položaju i zapremini embriona ili fetusa koja pripada svakom preseku, infomacija o normiranom CT doznom indeksu i infomacija o protokolu CT uljučujući napon rendgenske cevi, jačinu struje i vreme rotacije [11,14-16].

Nakon procene doze, rezultati moraju biti prezentovani pacijentu i njenom lekaru. Infomacija mora sadržati relevantne podatke koji su korišćeni za porcenu doze, kratak opis primenjene metode, faktore rizika, izračunate vrednosti doze i referentne vrednosti iz relevantnih literaturnih izvora. Za razumevanje veličine rizika, korisno je poređenje dobijenih vrednosti sa dozom od prirodnog zračenja ili sa drugim rizicima koji prate trudnoću.

#### **4. Procena doze za embrion ili fetus u republici Srbiji**

U Republici Srbiji ne postoji jedinstven algoritam koji propisuje postupak u slučaju izlaganja trudnica ili žena u reproduktivnom kapacitetu jonizujućim zračenjima u medicini. Imajući ovo u vidu, verovatno je da velik broj slučajeva ostaje nedetektovan ili uskraćen za adekvatnu procenu doze i rizika. U periodu 2006-2015, prema podacima Laboratorije za zaštitu od zračenja Instituta za nuklearne nauke Vinča, bilo je 9 slučajeva u kojima je došlo do izlaganja embriona ili fetusa, od kojih je većina (7 od 9) klasifikovana kao akcidentalno izlaganje u medicini, s obzirom da status trudnoće prethodno pregledu nije proveren.

Procena doze u ovakvim situacijama obavljena je retrospektivno, na osnovu podataka o vrsti pregelda, radiografskoj tehnici i vrsti radiološke opreme. Doza za fetus procenjena je na osnovu sačinjenog dozimetrijskog zapisa i podataka o radijacionom izlazu i drugim značajnim parametriima rendgen-aparata. Za procenu doze za uterus korišćeni su softverski paketi NRPB SR 262 (NRPB, Chilton, UK) ili PCXMC Dose Calculation Software (STUK, Finland) [19,20]. Apsorbovana doze za fetus procenjena je na osnovu izračunate apsorbovane doze za uterus, imajući u vidu da je u svim navedenim slučajevima izlaganje jonizujućim zračenjima nastalo u ranoj fazi trudnoće, kada dimenzije embriona ili fetusa nisu značajne. Kada realni podaci o radiografskoj tehnici nisu bili dostupni, doza za uterus je procenejna konzervativno, uzimajući u obzir da su realni parametri ekspozicije manji od onih upotrebljenih za potrebe procene doze. Rezultatu procene doze za embrion ili fetus dati su u Tabeli 3.

#### **5. Optimizacija zaštite od zračenja**

Ukoliko je radiološki pregled tokom trudnoće opravdan u smislu koristi i rizika, on mora biti sproveden na optimalan način. Iako je doza za embrion ili fetus od konvencionalne radiografije mala, pravilnim izborom opreme i radiografske tehnike ona

može biti minimizirana a da pri tome nivo dijagnostičke informacije bude očuvan.

**Tabela3. Procenjene vrednosti doze za embrion ili fetus u Srbiji u periodu 2006-2015**

Procedura	Anatomska regija	U (kV)	It (mAs)	ESAK (mGy)	Doza za embrion/fetus (mGy/projeksija)	Doza za embrion/fetus (mGy/pregled)
Radiografija	Vratna kičma PA	63	28	0.40	<0.01	1.9
	Vratna kičma LAT	63	28	0.40	<0.01	
	Lumalna kičma AP	68	45	0.97	0.67	
	Lumbalna kičma LAT	85	56	2.6	0.40	
	Karlica	66	70	1.3	0.80	
Radiografija	Glava PA	81	10	0.54	<0.01	<0.05
	Glava LAT	81	10	0.54	<0.01	
	Vratna kičma AP	81	10	0.54	<0.01	
	Vratna kičma LAT	81	10	0.54	<0.01	
	Paranasalni sinusi	81	15	0.78	<0.01	
Radiografija	Pluća PA	70	-	0.6	<0.01	<0.02
	Pluća LAT	95	-	1.4	<0.01	
Radiografija	Podaktica (4 projekcije)	44	5	0.06	<0.01	<0.04
Radiografija	Pluća PA	60	15	0.3	<0.01	<0.01
Radiografija	Lumalna kičma AP	70	32	1.0		1.0
	Lumbalna kičma LAT	75	50	2.0		
	Karlica	75	32	1.32		
Procedura	Anatomska regija	Vreme ekspozicije (min)	Broj radiografija	KAP (Gy.cm <sup>2</sup> )	Doza za embrion/fetus (mGy/pregled)	
Interventna kardiologija	CA	0.8	0	1.45	<0.1	
Fluoroskopija	Retrogradna pielografija	1.5	0	40	8.7	
Procedura	Anatomska regija	U (kV)	Broj faza	CTDI (mGy)	DLP (mGy cm)	Doza za embrion/fetus (mGy/pregled)
CT	Glava	120	1	59	1060	<0.01

Faktori koji doprinose kontroli doze su kolimacija snopa, filtracija snopa, karakteristike rešetke za sprečavanje rasejanog zračenja, napon rendgenske cevi i radiografska projekcija. Vreme fluoroskopije i broj radiografija su najznačajniji parametri koji utiču na dozu za embrion ili fetus u fluoroskopiji i interventnim procedurama u radiologiji i kardiologiji. Pored navdenog, na dozu utiče i modalitet akvizicije slike, kolimacija, uvećanje slike, angulacija rendgenske cevi i tehnika izvođenja pregleda (radijalni, femoralni i brahijalni pristup). Najznačajniji faktor koji utiče na dozu za embrion ili

fetus u CT jeste dužina skenirane regije. Ukoliko je moguće, fetus treba da bude isključen iz primarnog snopa x-zračenja. Tahnički faktori ekpozicije kao što je jačina struje, pitch i broj faza takođe utiču na dozu za embrion ili fetus. Primena ličnih zaštitnih sredstva u većini slučajeva ima veoma limitiran značaj. Ukoliko je embrion ili fetus u primarnom snopu, zaštitno sredstvo ima negativne reperkusije na kavlitet slike. S druge strane, ukoliko je embrion ili fetus izvan primarnog snopa, primena ličnih zaštitnih sredstava ima veoma ograničen karakter jer doza u najvećoj meri potiče od interno rasejanog zračenja u telu pacijenta [9].

## 6. Prevencija akcidentalnog izlaganja

Nenamerna izlaganja embriona ili fetusa ubrajaju se u grupu akcidentalnih izlaganja u medicini. Prethodno ovakvim događajima trudnoća nije poznata, tako da alternativne dijagnostičke metode nisu uzete u obzir, radiografska tehnika nije prilagođena tako da doza za embrion ili fetus bude minimalna i nisu registrovani svi relevantni podaci za procenu doze. Iz navedenih razloga, veoma je bitno preduzeti sve neophodne mere za prevenciju nenamernih izlaganja u trudnoći i pouzdano proceniti mogućnost prisustva trudnoće prethodno radiološkom pregledu. Ispitivanje reproduktivnog statusa pacijenta je posebno značajno u slučaju pregleda koji obuhvataju anatomske region abdomena, kada je potencijalna doza za embrion ili fetus velika. U ovakvim situacijama, neophono je primeniti algoritam kao u Tabeli 4.

**Tabela 4. Primena dijagnostičkih procedura kod žena u reproduktivnom kapacitetu [6,11]**

Status trudnoće	Aktivnost	
Trudnoća isključena	Obaviti pregled	-
Trudnoća verovatna ili sigurna	Oceniti opravdanost pregleda (radiolog) i razmoriti mogućnost odlaganja pregleda do porođaja uzimajući u obzir korist za majku i nerpdno kete kao i rizik od odlaganja pregleda.	Ukoliko je pregled opravdan, modifikovati protokol da doza za embrion ili fetus bude minimalna u skladu sa dijagnostičkim zahtevima
Trudnoća ne može biti isključena a očekivana doza je niska (<10 mGy)	Menstruacija redovna	Obaviti pregled
	Menstruacija nije redovna, trudnoća se može smatrati verovatnom. Oceniti opravdanost pregleda (radiolog) i razmoriti mogućnost odlaganja pregleda do porođaja uzimajući u obzir korist za majku i nerpdno kete kao i rizik od odlaganja pregleda.	Ukoliko je pregled opravdan, modifikovati protokol da doza za embrion ili fetus bude minimalna u skladu sa dijagnostičkim zahtevima
Trudnoća ne može biti isključena a očekivana doza je visoka (>10 mGy)	Razmotirite alternativne mogućnoszi i dolaganje prgeda. Ove procedure uvećavaju rizik za karcinom u detinjstvu ali je u apsolutnom iznosu ovaj rizik i dalje mali.	-

Dostupnost infomativnog materijala u čekaonicama bolnica jeste od velike koristi u prevenciji nenamernih izlaganja u trudnoći [1,3,4].

## 7. Zaključak

Neophono je preduzeti sve neophone mere u cilju prevencije nenamernih izlaganja u trudnoći. U slučaju namernih izlaganja u trudnoći, izbor metode i radiografske tehnike mora biti takav da doza za embrion ili fetus bude minimalna. Doza za embrion ili fetus od većine dijagnostičkih procedura ne može prouzrokovati smrt fetusa, malformaciju ili



mentalnu retardaciju. U većini slučajeva, doza je manja od 1 mGy i imajući u vidu veoma mali rizik za razvoj karcinoma u detinjstvu (1:10 000), ove procedure, ukoliko su klinički opravdane, mogu biti realizovane uz primenu osnovnih principa zaštite od zračenja. Ukoliko je doza za fetus veća (1-10 mGy) i rizik za karcinom je veći, te ove procedure treba izbegavati ukoliko je trudnoća potvrđena. Međutim, ukoliko je pregled klinički opravdan, uvećan rizik za karcinom, koji je još uvek mali u apsolutnom iznosu (1:1000), ne može biti razlog za prekid trudnoće.

### **Zahvalnica**

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije u okviru projekata III43009.

### **8. Literatura**

- [1] International Atomic Energy Agency. Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards IAEA Safety Standards Series GSR Part 3, 2014. IAEA, Vienna.
- [2] European Commission. COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/EURATOM of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, Official Journal of the European Union. 17/1/2014
- [3] Annals ICRP. Pregnancy and medical radiation. Publication 84, 2000. Pergamon, UK
- [4] European Commission, DG XI (1999) Guidance for protection of unborn children and infants irradiated due to parental medical exposures. RP 100, Official Publications of the European Communities, Luxembourg
- [5] International Commission on Radiation Protection (ICRP). The 2007 Recommendations of the ICRP. ICRP Publication 103, Annals of ICRP. 2007. Elsevier
- [6] Protection of Pregnant Patients during Diagnostic Medical Exposure to Ionising Radiation. Advice from Health Protection Agency, The Royal College of Radiologists and College of Radiographers, HPA, 2009. Chilton, UK.
- [7] Wang PI, Chong ST, Kielar AZ, Kelly AM, Knoepp UD, Mazza MB, Goodsitt MM. Imaging of pregnant and lactating patients: part 1, evidence-based review and recommendations. *AJR Am J Roentgenol*. 198(4) (2012) 778-784.
- [8] Wang PI, Chong ST, Kielar AZ, Kelly AM, Knoepp UD, Mazza MB, Goodsitt MM. Imaging of pregnant and lactating patients: part 2, evidence-based review and recommendations. *AJR Am J Roentgenol*. 198(4) (2012) 785-792.
- [9] Damilakis J. Pregnancy and diagnostic x-rays. *Eur Radiol Syllabus*. 14 (2004) 33-39.
- [10] Nguyen, C and Goodman, L Fetal Risk in Diagnostic Radiology. *Semin Ultrasound CT MRI*. 33 (2012) 4-10.
- [11] Wieseler KM, Bhargava P, Kanal KM, Vaidya S, Stewart BK, Dighe MK. Imaging in Pregnant Patients: Examination Appropriateness. *Radiographics*. 30(5) (2010) 1215-1229.
- [12] Ciraj, O., Vukčević, M., Košutić, D. Procena doze za fetus u dijagnostičkoj radiologiji, Zbornik radova XXIII Simpozijuma društva za zaštitu od zračenja Srbija i Crne Gore, Donji Milanovac, 26-28 septembar 2005, 109-112.
- [13] Parmaksız A, Ataç GK, Bulgurlu F, Bulur E, Öncü T, İnal T. Unintentional

- irradiation of conceptus by diagnostic imaging examinations in Turkey. *Radiat. Prot. Dosim.* 162(3) (2014) 322-328.
- [14] Goldberg-Stein SA, Liu B, Hahn PF, Lee SI. Radiation dose management: part 2, estimating fetal radiation risk from CT during pregnancy. *AJR Am J Roentgenol.* 198(4) (2012) W352-356.
- [15] Huda W, Randazzo W, Tipnis S, Frey GD, Mah E. Embryo dose estimates in body CT. *AJR Am J Roentgenol.* 194(4) (2010) 874-880.
- [16] Angel E, Wellnitz CV, Goodsitt MM, Yaghmai N, DeMarco JJ, Cagnon CH, Sayre JW, Cody DD, Stevens DM, Primak AN, McCollough CH, McNitt-Gray MF. Radiation Dose to the Fetus for Pregnant Patients Undergoing Multidetector CT Imaging: Monte Carlo Simulations Estimating Fetal Dose for a Range of Gestational Age and Patient Size. *Radiology.* 249(1) (2008) 220-227
- [17] Damilakis J, Perisinakis K, Prassopoulos P, Dimovasili E, Varveris H, Gourtsoyiannis N. Conceptus radiation dose and risk from chest screen-film radiography. *Eur. Radiol.* 13 (2003) 406–412.
- [18] Damilakis J, Theoharopoulos N, Perisinakis K, Manios E, Dimitriou P, Vardas P, Gourtsoyiannis N. Conceptus radiation dose and risk from cardiac catheter ablation procedures. *Circulation.* 104 (2001) 893–897
- [19] Tapiovaara, M. and Siiskonen, T. 'PCXMC 2.0 User's Guide', STUK-TR 7/November 2008.
- [20] Hart, D., Jones, D. G. and Wall, B. F. Normalized organ doses for medical X-ray examinations calculated using Monte Carlo techniques. National Radiation Protection Board, Chilton NRPB SR262 (1994).

## EXPOSURE OF EMBRYO AND FOETUS IN DIAGNOSTIC RADIOLOGY

**Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup>, Danijela ARANĐIĆ<sup>1,2</sup>, Predrag BOŽOVIĆ<sup>1,2</sup>,  
Sandra ČEKLIĆ<sup>2</sup>, ĐORĐE LAZAREVIĆ<sup>2</sup>**

*1) School of Electrical Engineering, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

*2) Vinca Institute of Nuclear Science, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

*e-mail: ociraj@vinca.rs*

### ABSTRACT

Exposure of embryo or foetus due to application of x-rays in medicine may occur accidentally when pregnancy is unknown or because of clinical urgency. In these cases, estimation of the risk to the conceptus is of paramount importance. The risk is dependent on the gestational age and the radiation dose to embryo or foetus. Under normal operating conditions, conceptus doses from extra-abdominal examinations are lower than 1 mGy. When examinations involving the abdomen or pelvis, doses to the embryo or foetus may be higher, but even in these cases doses to the unborn child below 100 mGy should not be considered a reason for termination of pregnancy. The paper contains an overview of radiation dose and associated risks for embryo or foetus, including methods for dose assessment, dose assessment results emerged from 10 year experience in Serbia, as well as guidance for imaging of female patient of reproductive capacity.

# PRELIMINARNA ISPITIVANJA NIVOVA DOZE ZA PACIJENTE U INTRAORALNOJ STOMATOLOŠKOJ RADIOLOGIJI U REPUBLICI SRBIJI

**Zoran MIRKOV<sup>1</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>2,3</sup>**

- 1) *Institut za medicinu rada Srbije "Dr Dragomir Karajović", Beograd, Srbija,  
zoran.mirkov@institutkarajovic.rs*
- 2) *Univerzitet u Beogradu - Elektrotehnički fakultet, Beograd, Srbija*
- 3) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke Vinča, Beograd, Srbija,  
ociraj@vinca.rs*

## SADRŽAJ

*Radiografski pregledi u stomatologiji predstavljaju najmasovniju grupu radioloških pregleda. Iako je doza po jednom pregledu relativno mala, dozimetrijska merenja predstavljaju značajni ulazni podatak sa stanovništva procene doze za populaciju. Za potrebe ovog rada, vršena su ispitivanja incidentna kerma (incident air kerma) i proizvoda doze i površine (kerma area product – KAP) na 10 intraoralnih rendgenaparata na različitim lokacijama na teritoriji Republike Srbije. Srednje vrednosti izmerenih doza se kreću u rasponu od 1,2 mGy (48 mGycm<sup>2</sup>) za sekutiće donje vilice, do 7,9 mGy (267 mGycm<sup>2</sup>) za kutnjake gornje vilice, a treći kvartili od 1,6 mGy (32 mGycm<sup>2</sup>) do 7,9 mGy (267 mGycm<sup>2</sup>). Izmerene vrednosti doze su veće i do 3,5 puta od rezultata sličnih istraživanja.*

## 1. Uvod

Prema nezvaničnim podacima u Srbiji trenutno ima oko 650 intraoralnih stomatoloških rendgen uređaja [1] koji služe za pojedinačno snimanje zuba u dijagnostičkoj radiologiji i nad kojima se redovno obavlja kontrola kvaliteta. Ovaj broj je približno jednak broju rendgenaparata za snimanje i prosvetljavanje [1], ali su vrednosti nivoa doze za pacijente kod ovih drugih, trenutno, znatno bolje proučene [9, 11, 12 i 13]. Da bi praksa za obavljanje standardnih dijagnostičkih i tehničkih postupaka, u radu sa ovim uređajima, bila što bolje sprovedena [6] i da bi procesi optimizacije radijacione zaštite bili bolji (manje doze za pacijente), veoma bi pomoglo uspostavljanje nacionalnih dijagnostičkih referentnih nivoa (DRL) u ovom delu stomatološke radiologije [4]. Kao preludijum tome, izvršena su preliminarna ispitivanja, na ograničenom broju rendgenaparata, da bi se napravila približna slika o stanju doza za pacijente u Srbiji.

## 2. Metode

Uređaji koji su ispitivani se nalaze na različitim lokacijama u Republici Srbiji. Podaci o 10 ispitivanih rendgenaparata su dati u Tabeli 1. Starost rendgenaparata čiji je napon rendgenske cevi 50 kV prevazilazi 20 godina (period kada se prestalo sa proizvodnjom u Elektronskoj industriji u Nišu), ali je nepoznato koliko. Svi aparati su kao prijemnik slike koristili film.

Sva merenja su ponovljena po 5 puta a rezultati su statistički obrađeni.

Rendgenaparati za interoralna snimanja obično imaju fiksnu vrednost napona (ili mogućnost izbora između dve diskretne vrednosti), koji odgovara nazivnim naponu kao i fiksnu vrednost jačine struje. Operater ima mogućnost izbora vremena ekspozicije koje se određuje u sonosu na anatomsku lokaciju snimanja i karakteristike prijemnika slike. Vreme ekspozicije je odbrano automatski, i to za film klase E, ukoliko rendgen-

aparatus poseduje ovakvu opciju, ili ručno, u skladu s aperteporukama proizvođača, ukoliko automatska kontrola ekspozicije nije opcija na datom rendgen-aparatu [14].

Veličine koje su merene (pomoću kojih se mogu odrediti doze za pacijente [5]): proizvod kerme i površine (kerma area product – KAP) i incidentne kerme (incident air kerma) prilikom ekspoziranja sekutića, očnjaka i kutnjaka, gornje i donje vilice.

U tabelama 2, 3, 4 i 5 su prikazana vremena ekspozicije koja su korištena za svaki od merenih rendgen aparata, koji je detektor korišten za merenje određene veličine i rezultati merenja. Rezultati merenja KAP su prikazani dodatno sa sa izračunatim trećim kvartilom distribucije izmerenih vrednosti doze radi poređenja sa rezultatima sličnih ispitivanja [2,3,10 i 15].

Rezultati ispitivanja uređaja sa naponom od 60 kV su razdvojeni da bi se pokazala razlika u izmerenim vrednostima za DAP i incidentne kermekoja potiče od različitih vremena ekspozicije, kao i godinama proizvodnje.

**Tabela 1. Spisak ispitivanih stomatoloških intraoralnih rendgen-aparata**

Rendgen aparat	Nominalni napon rendgenske cevi (kV)	Jačine struje rendgenske cevi (mA)	Broj jedinica	Dimenzije cilindričnog tubusa (cm)		Starost uređaja (godine)
				dužina	prečnik	
Dent Ei Niš	<b>50</b>	<b>10</b>	<b>3</b>	<b>10</b>	<b>5</b>	- (preko 20 god.)
CS 2100 Carestream	<b>60</b>	<b>7</b>	<b>1</b>	<b>20</b>	<b>6</b>	<b>1</b>
Fiad	<b>60</b>	<b>8</b>	<b>1</b>	<b>20</b>	<b>6</b>	- (preko 10 god.)
Gotzen Oligate	<b>70</b>	<b>8</b>	<b>1</b>	<b>30</b>	<b>6</b>	-
Sirona Vario DG	<b>70</b>	<b>7</b>	<b>3</b>	<b>20</b>	<b>6</b>	<b>3-6</b>
Soredex Minray	<b>70</b>	<b>7</b>	<b>1</b>	<b>23</b>	<b>6</b>	<b>1</b>

Prilikom ispitivanja su korišćeni redovno etalonirani instrumenti, Barracuda dozimetar R100B (RTI Electronics AB, Sweden) i VacuDap (VacuTec Masstechnik GmbH, Germany). Za VacuDap je određen korekcionni faktor koji iznosi 1,4.

### 3. Rezultati i diskusija

Srednje vrednosti izmerenih doza se kreću u rasponu od 1,2 mGy (48 mGycm<sup>2</sup>) za sekutiće donje vilice, do 7,9 mGy (267 mGycm<sup>2</sup>) za kutnjake gornje vilice, a treći kvartili od 1,6 mGy (32 mGycm<sup>2</sup>) do 7,9 mGy (267 mGycm<sup>2</sup>).

Poređenjem rezultata ispitivanja koji su dati u tabelama 2, 3, 4 i 5, jasno se razlikuju rezultati merenja rendgen aparata Dent i Fiad od rezultata merenja u poslednje dve tabele. Rezultati merenja incidentne kerme i DAP u prve dve tabele prevazilaze rezultate u poslednje dve za skoro četiri puta, što je i bilo i za očekivati, jer se za istu vrstu pregleda koriste vremena ekspozicije koja su četiri puta duža, a dobija se ista dijagnostička informacija. Treba naglasiti da razlika u generatorima rendgenskog

zračenja (Dent ima monofazni generator (tehnološko stariji), dok ostali imaju visokofrekventni generator rendgenskog zračenja) doprinosi razlikama u merenim vrednostima. Rezultati merenja prikazani u tabeli 2 su u skladu sa merenjima obavljenim na istim uređajima [7].

Rezultati merenja prikazani u tabelama 3 i 4 su skladu sa rezultatima sličnih istraživanja [2, 3, 10 i 15], dok su rezultati prikazani u prve dve tabele veći od pomenutih istraživanja i do 3 puta.



**Slika 1. Pozicioniranje DAP detektora**

**Tabela 2. Rezultati ispitivanja: Dent Ei Niš**

Vreme t (s)	Sekutići	Očnjaci	Kutnjaci	
Gornja vilica	0,6	0,8	1	
Donja vilica	0,5	0,7	0,9	
detektor	Barracuda R100B			
Merena veličina: incidentna kerma (mGy)				
Merenje br.	Sr. vred ± Std. dev. (min - max)			
	Donja vilica		Gornja vilica	
sekutići	3,8 ± 0,1 (3,9 – 4,0)		4,6 ± 0,1 (4,4 – 4,7)	
Očnjaci	5,6 ± 0,1 (5,5 – 5,7)		6,2 ± 0,3 (5,6 – 6,8)	
Kutnjaci	6,8 ± 0,1 (6,7 – 6,9)		6,7 ± 0,7 (6,6 – 8,6)	
detektor	VacuDap			
Merena veličina: Proizvod doze i površine (dose area product DAP) (mGycm <sup>2</sup> )				
Merenje br.	Sr. vred ± Std. dev. (min - max)		Treći kvartil	
	Donja vilica	Gornja vilica	Donja vilica	Gornja vilica
sekutići	70 ± 1 (49 – 52)	46 ± 1 (44 – 47)	72	91
Očnjaci	71 ± 1 (71 – 73)	62 ± 3 (56 – 68)	101	143
Kutnjaci	97 ± 1 (96 – 100)	67 ± 7 (66 – 86)	139	150

**Tabela 3. Rezultati ispitivanja: Fiad**

Vreme t (s)	Sekutići	Očnjaci	Kutnjaci	
Gornja vilica	0,6	0,6	0,9	
Donja vilica	0,48	0,48	0,6	
detektor	Barracuda R100B			
Merena veličina: incidentna kerma (mGy)				
Sr. vred ± Std. dev. (min - max)				
Merenje br.	Donja vilica		Gornja vilica	
sekutići	4,24 ± 37 (16 – 125)		4,89 ± 37 (16 – 125)	
Očnjaci	4,22 ± 37 (16 – 125)		4,88 ± 37 (16 – 125)	
Kutnjaci	5,22 ± 37 (16 – 125)		7,92 ± 37 (16 – 125)	
detektor	VacuDap			
Merena veličina: Proizvod doze i površine (dose area product DAP) (mGycm <sup>2</sup> )				
Merenje br.	Sr. vred ± Std. dev. (min - max)		Treći kvartil	
	Donja vilica	Gornja vilica	Donja vilica	Gornja vilica
sekutići	141 ± 0 (141 – 141)	175 ± 0 (175 – 175)	141	175
Očnjaci	140 ± 0 (140 – 140)	175 ± 0 (175 – 175)	140	175
Kutnjaci	178 ± 0 (178 – 178)	267 ± 0 (267 – 267)	178	267

**Tabela 4. Rezultati ispitivanja: CS 2100**

Vreme t (s)	Sekutići	Očnjaci	Kutnjaci	
Gornja vilica	0,16	0,16	0,20	
Donja vilica	0,2	0,25	0,25	
detektor	Barracuda R100B			
Merena veličina: incidentna kerma (mGy)				
Sr. vred ± Std. dev. (min - max)				
Merenje br.	Donja vilica		Gornja vilica	
sekutići	1,2 ± 0,1 (1,2 – 1,2)		0,9 ± 0,1 (0,9 – 0,9)	
Očnjaci	1,5 ± 0,1 (1,4 – 1,5)		0,9 ± 0 (0,9 – 0,9)	
Kutnjaci	1,5 ± 0 (1,5 – 1,5)		1,2 ± 0 (1,2 – 1,2)	
detektor	VacuDap			
Merena veličina: Proizvod doze i površine (dose area product DAP) (mGycm <sup>2</sup> )				
Merenje br.	Sr. vred ± Std. dev. (min - max)		Treći kvartil	
	Donja vilica	Gornja vilica	Donja vilica	Gornja vilica
sekutići	32 ± 0 (32 – 32)	25 ± 0 (25 – 25)	32	25
Očnjaci	39 ± 0 (39 – 39)	25 ± 0 (25 – 25)	39	25
Kutnjaci	39 ± 0 (39 – 39)	32 ± 0 (32 – 32)	39	32

**Tabela 5. Rezultati ispitivanja: Gotzen Oligate, Sirona Vario DG i Soredex Minray**

Vreme t (s)	Sekutići	Očnjaci	Kutnjaci	
Gornja vilica	0,19-0,56	0,2-0,7	0,4-0,88	
Donja vilica	0,2-0,42	0,2-0,56	0,24-0,7	
detektor	Barracuda R100B			
Merena veličina: incidentna kerma (mGy)				
Merenje br.	Sr. vred ± Std. dev. (min - max)			
	Donja vilica		Gornja vilica	
sekutići	1,2 ± 0,6 (0,6 – 2,2)		1,4 ± 0,7 (0,7 – 2,7)	
Očnjaci	1,4 ± 0,7 (0,6 – 2,7)		1,7 ± 0,9 (0,7 – 3,3)	
Kutnjaci	1,7 ± 0,9 (0,7 – 3,3)		2,3 ± 1,1 (1,2 – 4,3)	
detektor	VacuDap			
Merena veličina: Proizvod doze i površine (dose area product DAP) (mGycm <sup>2</sup> )				
Merenje br.	Sr. vred ± Std. dev. (min - max)		Treći kvartil	
	Donja vilica	Gornja vilica	Donja vilica	Gornja vilica
sekutići	35 ± 1 (18 – 60)	43 ± 2 (22 – 80)	48	61
Očnjaci	43 ± 2 (22 – 80)	51 ± 2 (24 – 98)	61	75
Kutnjaci	54 ± 2 (29 – 99)	69 ± 2 (38 – 123)	76	96

#### 4. Zaključak

Preliminarni rezultati ispitivanja nivoa doza za pacijente pokazuju da bi zamenom starijih rendgen aparata (pogotovo Dent Ei Niš) novim, nivo doza za pacijente bio u skladu sa izmerenim vrednostima u razvijenijim zemljama [2, 3, 10 i 15]. Uvođenjem digitalnih senzora, kojima bi se znatno smanjilo vreme ekspozicije [7], pacijentne doze bi bile još manje.

I ako postoji raznolikost po pitanju geografske razmeštenosti aparata, potreban je veći broj uzoraka da bi se došlo do još boljih rezultata o nivoima doze za pacijente. Pored intraoralnih rendgen aparata ovakvom vrstom ispitivanja bi trebalo obuhvatiti sve ostale stomatološke rendgen-aparate.

#### 5. Literatura

- [1] D. Košutić, P. Božović. Rendgen aparati u dijagnostičkoj radiologiji na teritoriji Srbije u 2012. godini. *Zbornik radova, XXVII Simpozijum DZZ SCG 2.10-4.10.2013.* (2013) 197-200.
- [2] E. Kim, W. Han, J. Choi, Y. Jung, S. Yoon, J. Lee. Diagnostic reference levels in intraoral dental radiography in Korea. *Imaging Science in Dentistry.* (2012) 237-242.
- [3] B. Poppe, H.K. Looe, A. Pfaffenberger, F. Eenboom, N. Chofor, M. Sering, et al. Radiation exposure and dose evaluation in intraoral dental radiology. *Radiat. Prot. Dosim.* 123 (2007) 262-267.
- [4] International Commission on Radiological Protection. Radiological protection and safety in medicine. ICRP Publication No. 73. 1996. Pergamon.
- [5] M.T. Bahreyni Toosi, M. Nazery, H. Zare. Application of dose-area product compared with three other dosimetric quantities used to estimate patient effective dose in diagnostic radiology. *Iran. J. Radiat. Res.* 4 (1) (2006) 21-27.

- [6] Pravilnik o primeni izvora jonizujućih zračenja u medicini (Sl. Gl. RS 1/12 od 11.01.2012).
- [7] D. Arandžić, D. Košutić, Dj. Lazarević. Patient Protection in Dental Radiology: Influence of Exposure Time on Patient Dose. *Serbian journal of electrical engineering*, Vol. 6, No. 3 (2009) 489 – 494.
- [8] International Atomic Energy Agency (IAEA). *Dosimetry in Diagnostic Radiology: An International Code of Practice, Technical Reports Series No 457*, 2007. IAEA, Vienna.
- [9] O. Ciraj, S. Markovic, D. Kosutic. Patient dose from conventional diagnostic radiology procedures in Serbia and Montenegro. *Jour. Prevent. Med.* 12 (2004) 26-35.
- [10] D. Hart, M. C. Hillier and B. F. Wall. National reference doses for common radiographic, fluoroscopic and dental X-ray examinations in the UK. *The British Journal of Radiology*. 82 (2009) 1–12.
- [11] O. Ciraj, S. Markovic, D. Kosutic. Patient Dosimetry in Diagnostic Radiology. *Nucl. Technol. Radiat. Prot.* XVIII (2003) 36-42.
- [12] O. Ciraj, S. Markovic, D. Kosutic. First results on patient dose measurements from conventional diagnostic radiology procedures in Serbia and Montenegro, *Radiat. Prot. Dosim.* 113 (2005) 330-335.
- [13] Ciraj O, Markovic S, Kosutic D, Patient doses for barium meal examination in Serbia and Montenegro and potentials for dose reduction through changes in equipment settings, *Radiat. Prot. Dosim.* 114 (2005)158-163.
- [14] Uputstvo: Zubarski rendgen aparat DENT, ELEKTRONSKA INDUSTRIJA Fabrika rendgen aparata, Niš. 1977.
- [15] S. Han, B. Lee, G. Shin, J. Choi, J. Kim, C. Park, H. Park, K. Lee and Y. Kim. Dose area product measurement for diagnostic reference levels and analysis of patient dose in dental radiography. *Radiat. Prot. Dosim.* (2011) 1–9.

## **PRELIMINARY TESTING THE LEVEL OF PATIENT DOSES OF INTRAORAL DENTAL RADIOLOGY IN SERBIA**

**Zoran MIRKOV<sup>1</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>2,3</sup>**

- 1) *Serbian Institute of Occupational Health "Dr Dragomir Karajović", Belgrade, Serbia, zoran.mirkov@institutkarajovic.rs*
- 2) *University of Belgrade – School of Electrical Engineering, Belgrade, Serbia*
- 3) *Vinca Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, Serbia, Beograd, ociraj@vinca.rs*

*Radiographic examinations in dentistry represent the most massive group of radiological examinations. Although the dose per examination is relatively small, dosimetric measurements represent significant input from the point of dose assessment for the population. For the purposes of this study, the test dose at the end of the tube (cone end dose - CED) and the product of dose and area (dose area product - DAP) were carried out on 10 intraoral X-ray devices to different locations in the territory of the Republic of Serbia. Mean values of measured doses ranging from 1,2 mGy (48 mGycm<sup>2</sup>) for the incisors of the lower jaw, to 7,9 mGy (267 mGycm<sup>2</sup>) molars of the upper jaw, and the third quartile of 1,6 mGy (32 mGycm<sup>2</sup>) to 7,9 mGy (267 mGycm<sup>2</sup>). The measured values are higher doses up to 3,5 times from the results of similar studies.*



## PROCENA DOZE ZA OČNO SOČIVO KARDIOLOGA U INTERVENTIM PROCEDURAMA NA OSNOVU DOZE ZA CELO TELO

**Predrag BOŽOVIĆ<sup>1,2</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup>, Danijela ARANĐIĆ<sup>1,2</sup>,  
Katarina KARADŽIĆ<sup>1,2</sup>, Jelena STANKOVIĆ<sup>1,2</sup> i Sandra ČEKLIĆ<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>Elektrotehnički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija

<sup>2</sup>Institut za nuklearne nauke Vinča, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija

[bozovic@vinca.rs](mailto:bozovic@vinca.rs)

### SADRŽAJ

*Cilj ovog rada je da se upotrebom Monte Karlo simulacije odrede konverzioni faktori za korelaciju doze za očno sočivo i doze izmerene dozimetrom tokom rutinskog monitoringa celog tela u interventnim procedurama u radiologiji i kardiologiji i oceni efikasnost ličnih zaštitnih sredstava koja se koriste tokom ovih procedura. Monte Karlo simulacije su izvršene primenom MCNP6/X koda za tri najčešće korišćene angulacije rendgenske cevi (PA, LAO i RAO). Rezultati pokazuju najbolju korelaciju doza ako se dozimetar za celo telo nosi na centralnoj grudnoj poziciji, iznad zaštitne kecelje. Određeni faktori slabljenja ličnih zaštitnih sredstava se kreću u intervalu 1.3-170 i ukazuju na neophodnost korišćenja zaštitne opreme za različite pozicije tokom interventnih procedura.*

### 1. Uvod

Upotreba X – zračenja u interventnim procedurama u kardiologiji i radiologiji je porasla poslednjih decenija, a sa povećanjem složenosti procedura i produženim vremenom ekspozicije, doza za medicinsko osoblje je znatno veća u poređenju sa dozama osoblja u dijagnostičkim procedurama. Sa smanjenjem godišnje granice doze za očno sočivo sa 150 mSv na 20 mSv [1], došlo je do povećanja interesovanja za dozimetriju za očno sočivo. Raste i potreba za razvojem novih dozimetara i metoda za monitoring očnog sočiva i za implementacijom ovih metoda u svakodnevnoj praksi [2, 3].

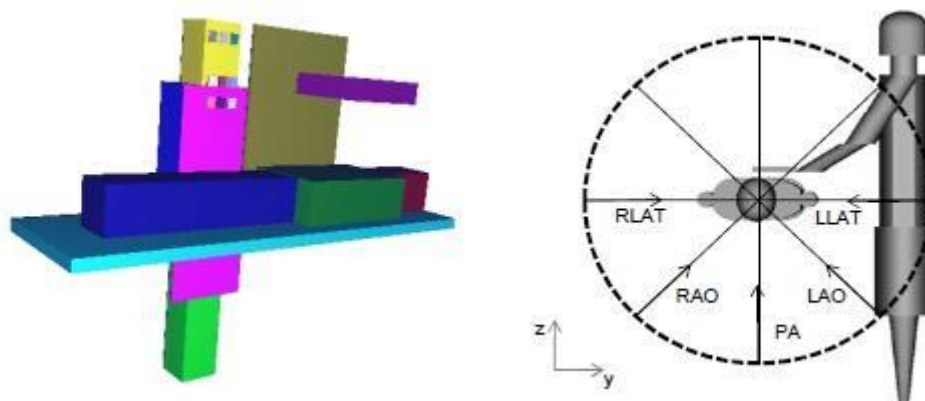
U interventim procedurama medicinsko osoblje nosi jedan dozimetar namenjen određivanju doze za celo telo (ispod ili iznad zaštitne kecelje), a u nekim slučajevima i dodatni dozimetar za takozvanu dvostruku dozimetriju, kada se jedan dozimetar nosi ispod zaštitne kecelje a drugi iznad, u visini grudi ili vrata. U nekim slučajevima, kada je izlaganje tela izrazito heterogeno, u upotrebi su i dozimetri za ekstremitete. Dalje, u cilju zaštite od zračenja, osoblja u interventnim procedurama nosi i set ličnih zaštitnih sredstava koji obuhvata olovne kecelje, štitnike za štitastu žlezdu i zaštitne (olovne) naočare. Lična zaštitna sredstva se koriste u kombinaciji sa kolektivnim zaštitnim sredstvima koja obuhvataju plafonske ekrane i zavesice od olovne gume. U cilju verifikacije usaglašenosti sa regulatornim nivoima doze u relativno komplikovanom radnom okruženju, postoji potreba za uspostavljanjem jednostavne procedure za monitoring doze za očno sočivo na praktičan i primenljiv način, bez povećanja broja dozimetara koje medicinsko osoblje već nosi za potrebe individualnog monitoringa.

Cilj ovog rada je da se ispita mogućnost procene doze za očno sočivo koristeći rezultate očitavanja dozimetara za celo telo nošenih preko olovne kecelje (ili u visini štitne žlezde), a uzimajući u obzir redukcione faktore zaštitnih sredstava koja se koriste.

## 2. Materijali i metode

Monte Karlo simulacijom su sračunati konverzioni faktori kako bi se odredila korelacija doze za očno sočivo sa očitavanjima dozimetara za celo telo i dozimetara pozicioniranih u visini štitne žlezde u interventnim procedurama. Za metod Monte Karlo simulacije pokrenut je program MCNP6/X verzije 1.6 [6, 7]. Geometrija simulacije je prikazana na Slici 1, a simuliran je rendgen – aparat za interventne procedure sa C – lukom za tri angulacije rendgenske cevi (PA, LAO i RAO). Spektar X – zračenja (uključujući anodni ugao i filtraciju) dobijen je upotrebom programa SpekCalc koji računa spektar X – cevi prema determinističkom (analitičkom) modelu proizvodnje X – zračenja [8, 9].

Doze za levo i desno očno sočivo sračunate su pomoću tri talije koje su simulirale termoluminescentne dozimetre postavljene na glavu kardiologa (levo, centar i desno). Korišćena je „F6 talija“ kojom se dobija apsorbovana energija po jedinici mase i po ulaznoj čestici u željenoj zapremini, koja je blisko povezana sa apsorbovanom dozom. Za doze za levo i desno sočivo uzete su usrednjene vrednosti leve i centralne talije i desne i centralne talije. Potom je izračunat odnos ove dve doze i doza izračunatih pomoću 6 talija postavljenih u visini grudni i u visini štitne žlezde. Na kraju su izračunate srednje vrednosti ovih odnosa, kao i koeficijenti varijacija za sve projekcije rendgenske cevi. Najbolja korelacija odgovara najmanjem koeficijentu varijacije.



Slika 1. Geometrija Monte Karlo simulacije i angulacije rendgenske cevi

## 3. Rezultati i diskusija

Odnos između doza za levo i desno očno sočivo i svih od šest talija (grudni i štitna žlezda) sa koeficijentima varijacije, prikazan je u Tabelama 1-3. Tabela 1 sadrži redukcijske faktore za zaštitna sredstva za koje treba primeniti zajedno sa konverzionim faktorima iz Tabela 2 i 3, za potrebe procene doze u interventnoj kardiologiji i radiologiji. Koeficijent varijacije za kardiologa kreće se od 0.16 do 0.55 i najmanji je i za levo i desno očno sočivo na centralnoj grudnoj poziciji. Najbolja zaštita je ostvarena kada su primenjena oba zaštitna sredstva (plafonski ekran i zaštitne naočare). Redukcioni faktori su u opsegu od 29 do 170 za različite projekcije rendgenske cevi, pri čemu najveći redukcijski faktor je za LAO projekciju (što daje da je LAO projekcija najgora za osoblje usled rasejanog zračenja od pacijenta). Takođe je uočeno da je plafonski ekran bolje zaštitno sredstvo od naočara u svim slučajevima osim u LAO projekciji i za desno očno sočivo u PA projekciji. Međutim, doza koju prima desno sočivo je niža od doze levog sočiva u PA projekciji, imajući u vidu da leva strane glave bliža izvoru zračenja.

**Tabela 1. Izračunati redukcionni faktori za različita zaštitna sredstva**

Angulacija X-cevi	PA		RAO		LAO	
Zaštitna sredstva	Levo	Desno	Levo	Desno	Levo	Desno
Zaštitne naočare	3.2	3.7	2.4	2.5	3.4	3.8
Plafonski ekran	52	1.6	67	4.2	11	1.3
Zaš. naoč. i plaf. ekran	131	8.0	170	15	29	5.9

**Tabela 2. Proračun konverzionih faktora za levo očno sočivo**

Visina		Štitna žlezda			Grudi		
Pozicija		Levo	Centar	Desno	Levo	Centar	Desno
Levo očno sočivo	Odnos PA	0.95	0.09	0.05	0.72	0.12	0.06
	Odnos RAO	0.48	0.10	0.05	0.44	0.12	0.05
	Odnos LAO	0.51	0.14	0.10	0.49	0.16	0.13
	Odnos	0.65	0.11	0.05	0.55	0.13	0.08
	SD	0.26	0.02	0.03	0.15	0.02	0.04
	COV	0.40	0.19	0.48	0.27	0.16	0.55

\*SD – standardna devijacija

\*\*COV – koeficijent varijacije

**Tabela 3. Proračun konverzionih faktora za desno očno sočivo**

Visina		Štitna žlezda			Grudi		
Pozicija		Levo	Centar	Pozicija	Levo	Centar	Pozicija
Desno očno sočivo	Odnos PA	2.82	0.28	0.14	2.16	0.35	0.17
	Odnos RAO	1.67	0.36	0.16	1.53	0.42	0.18
	Odnos LAO	0.99	0.26	0.19	0.96	0.30	0.25
	Odnos	1.83	0.30	0.16	1.55	0.36	0.20
	SD	0.93	0.05	0.03	0.6	0.06	0.05
	COV	0.51	0.17	0.16	0.39	0.16	0.23

\*SD – standardna devijacija

\*\*COV – koeficijent varijacije

#### 4. Zaključak

Cilj ovog rada je određivanje koeficijenata koji bi se koristili za procenu doze ocnog sočiva na osnovu doze za celo telo pomoću dozimetra namenjnog individualnom monitoringu celog tela. Rezultati pokazuju da najbolju korelaciju doze za celo telo i doze za očno sočivo daje dozimetar za celo telo nošen na centralnoj grudnoj poziciji. Redukcionni faktori pokazuju kako treba primenjivati zaštitna sredstva u različitim radnim položajima.

Detaljnija ispitivanja koja uključuju dodatne projekcije rendgenske cevi, različite parametre ekspozicije, različite položaje plafonskog zaštitnog ekrana kao i različite položaje ostalih članova medicinskog osoblja u interventnim procedurama daće detaljnije preporuke za procenu doze za očno sočivo i kako se ona može dalje smanjiti.

## Literatura

- [1] ICRP Publication 118, Ann. ICRP 41(1/2) 2012
- [2] Ciraj-Bjelac O et al, Risk for radiation-induced cataract for staff in interventional cardiology – Is there reason for concern? *Catheter Cardiovasc.Interv.* 76 (2010) 826-834.
- [3] Carinou E et al, Recommendations to reduce extremity and eye lens doses in interventional radiology and cardiology, *Radiat. Meas.* 46 (11) 1324-1329.
- [4] J. Farah et al., A correlation study of eye lens dose and personal dose equivalent for interventional cardiologist, *Rad. Prot. Dosim.* 157(4) (2013) 561-569.
- [5] Koukurava C et al, Study of the parameters affecting doses operator doses in interventional radiology using Monte Carlo simulations, *Radiat. Meas.* 46 (11) (2011) 1216-1222.
- [6] X-5 Monte Carlo Team, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code version 5 Volume 1 – Theory and overview, 2003
- [7] X-5 Monte Carlo Team, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code version 5 Volume 2 – Users guide, 2003
- [8] Poludniowski G., Landry G., DeBlois F., Evans PM, Varhaegen F., SpekCalc: a program to calculate photon spectra from tungsten anode x-ray tubes, *Phys. Med. Biol.* 54(19) (2009) N433-438.
- [9] Poludniowski GG, Calculation of x-ray spectra emerging from an x-ray tube. Part II. X-ray production and filtration in x-ray targets. *Med Phys.* 34(6) (2007) 2175-2186.

## Zahvalnica

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja kroz projekat broj III43009.

## ESTIMATION OF EYE LENS DOSE FROM WHOLE BODY DOSEMETERS FOR RADIOLOGISTS IN INTERVENTIONAL PROCEDURES

**Predrag BOZOVIC<sup>1,2</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup>, Danijela ARANDJIC<sup>1,2</sup>, Katarina KARADZIC<sup>1,2</sup>, Jelena STANKOVIC<sup>1,2</sup> and Sandra CEKLIC<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>*School of Electrical Engineering, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

<sup>2</sup>*Vinca Nuclear Science Institute, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

## ABSTRACT

*In the present study, Monte Carlo simulations were used to calculate conversion factors in order to correlate eye lens doses with whole body and thyroid doses during fluoroscopically guided interventional procedures in radiology and cardiology (IR/IC). Monte Carlo simulations were performed using MCNP6/X code for mono tube X-ray system for three tube projections (PA, LAO and RAO). Results show that eye lens and whole body dose best correlate if dosimeter is worn in center chest position. Reduction factors show how for different working positions in IR/IC room different protective equipment should be applied.*

# **ДОЗИМЕТРИЈА**

## PROCJENA PACIJETNE IZLOŽENOSTI U DIJAGNOSTIČKOJ RADIOLOŠKOJ PRAKSI CRNE GORE

**Aleksandra MILATOVIĆ<sup>1</sup>, Benard BERIŠAJ<sup>1</sup>, Slobodan JOVANOVIĆ<sup>2</sup>**

*1) Centar za ekotoksikološka ispitivanja, Podgorica, Crna Gora,  
milatovics@yahoo.com*

*2) Prirodno-matematički fakultet, Centar za nuklearna znanja i kompetentnost,  
Podgorica, Crna Gora*

### SADRŽAJ

*Analizirana je izloženost 723 odraslih pacijenata u 5 najvećih zdravstvenih ustanova u Crnoj Gori, pri čemu su sistematski mjerene vrijednosti fundamentalnih dozimetrijskih veličina, kerme na površini kože pacijenta i proizvoda kerme-površine. Pažnja je usmjerena na one dijagnostičke procedure i preglede koji najviše doprinose kolektivnoj dozi populacije. Nađeno je da je izloženost pacijenata nepotrebno visoka, često znatno iznad međunarodnih normi. Stručnom i konzistentnom primjenom relativno jednostavnih protokola, moguće je postići značajna smanjenja izloženosti, odnosno smanjiti kolektivnu dozu kod medicinskih aplikacija jonizujućih zračenja u Crnoj Gori.*

### 1. Uvod

Među antropogenim izvorima jonizujućeg zračenja, najveći doprinos dozi populacije je od medicinskih primjena. Savremena medicina nezamisliva je bez izvora jonizujućeg zračenja – koji imaju široku upotrebu i kao dijagnostička i kao terapijska oruđa: u radiologiji (neinvazivnoj i invazivnoj), nuklearnoj medicini (uz upotrebu radiofarmaceutika), radioterapiji (teleterapija, brahiterapija), hirurgiji, itd. Ovako široka upotreba izvora jonizujućeg zračenja nosi sa sobom i određene rizike, zbog mogućih štetnih posljedica, čija je vjerovatnoća pojavljivanja proporcionalna primljenoj dozi zračenja. Ti rizici se moraju ograničiti i svesti na minimum – primjenom standarda sigurnosti. Zaštita od zračenja u medicini zasniva se na dva osnovna principa: principu opravdanosti upotrebe (prakse) i principu optimizacije zaštite od jonizujućeg zračenja. Praktična primjena oba principa uključuje odgovarajuća mjerenja i proračune, uz adekvatno obezbjeđenje programa osiguranja kvaliteta.

U proces optimizacije zaštite od zračenja u dijagnostičkoj radiologiji veliki značaj ima program osiguranja kontrole kvaliteta. Takođe, u organizovanom sistemu zaštite od jonizujućeg zračenja veliki značaj pridaje se određivanju individualnih doza, kao osnovnih parametara zaštite. Direktiva Evropske Komisije EC 59/2013 EURATOM [1] pruža osnovne odrednice za zaštitu pacijenta, pri čemu je od suštinskog značaja činjenica da nisu postavljene granice individualnih doza [2].

I u Crnoj Gori je upotreba radioloških procedura u dijagnostici dominantna, nezamjenljiva i u stalnom porastu. Kad je riječ o optimizaciji zaštite od zračenja u dijagnostičkoj radiologiji u Crnoj Gori, konstatovano je da postoji značajan prostor za smanjenje pacijenatnih doza u skladu sa najnovijim preporukama Međunarodnog komiteta za zaštitu od zračenja (ICRP) i Evropske Unije (EU); ovim preporukama određuju se dijagnostički referentni nivoi (DRL) [2-4]. Glavni cilj je da se uspostavi infrastruktura zaštite od zračenja i harmonizuje domaća regulativa sa standardima kvaliteta ISO/IEC, IEC[5-7] i evropskim preporukama. Ovdje je neophodno naglasiti da u Crnoj Gori do sada nije bilo sistematskih istraživanja u ovoj oblasti.

## 2. Materijal i metode

Cilj rada je analiza izloženosti pacijenata u dijagnostičkoj radioloskoj praksi Crne Gore. Osnovna dozimetrijska veličina za procjenu izloženosti pacijenata kod konvencionalnih radiografskih procedura u dijagnostičkoj radiologiji jeste kerma na površini kože pacijenta (ESAK). Indirektnom metodom, ESAK je određena mjerenjem radijacionog izlaza na osnovu izraza (1):

$$ESAK = \frac{Y_d \cdot mAs \cdot D^2}{(L - (d + b))^2} \cdot BSF \quad (1)$$

Gdje je  $Y_d$  radijacioni izlaz na rastojanju  $D$  u jedinicama ( $\mu\text{Gy}/\text{mAs}$ ),  $I \cdot t$  je proizvod jačine struje i vremena ekspozicije,  $L$  rastojanje fokus-prijemnik slike,  $d$  debljina pacijenta,  $b$  rastojanje prijemnik slike-nosač pacijenta i faktor povratnog rasijavanja (BSF). Mjerenje radijacionog izlaza izvršeno je koristeći poluprovodnički dozimetar Barracuda, MPD (RTI Electronics, Sweden, kalibrisanim da mjeri kermu u vazduhu) u opsegu od 10 kVp na udaljenost od 1 m, za opseg od (50 – 120) kVp za sve posmatrane rendgenske cijevi. Izmjerene vrijednosti radijacionog izlaza su korigovane za realne vrijednosti rastojanja fokus-koža, napon i opterećenje rendgenske cijevi i faktor povratnog rasijavanja, za svakog pacijenta pojedinačno [8, 9].

U radu analizirana je izloženost 723 odraslih pacijenata oba pola, pri čemu su sistematski određivane vrijednosti kerme na površini kože pacijenta (Entrance Surface Air Kerma, ESAK) i proizvod kerme-površine (Kerma Area Product, KAP). Praćena je izloženost pacijenata za najfrekventnije dijagnostičke procedure i na preglede koji doprinose kolektivnoj dozi populacije. Analizom je obuhvaćeno 10 projekcija snimanja, pri čemu je posmatrano najmanje 10 pacijenata za svaki tip dijagnostičke procedure. Analize izloženosti su obuhvatile 6 dijagnostičkih sistema u pet različitim zdravstvenih ustanova, u tri grada (Podgorica, Nikšić i Bar). Svi parametri rendgen-aparata su prethodno provjereni i zadovoljili su osnovne vrijednosti definisane standardnim protokolima koji su korišćeni u ovom radu (vidi tabelu 1) [10].

**Tabela 1. Karakteristike radiografskih sistema u pet različitim zdravstvenih institucija**

Institucije	Proizvođač	Tip generatora	Output na 80 kVp (mGy/mAs)	HVL* na 80 kVp (mm Al)
A (soba 3)	Philips Bucky Diagnost	High frequency	0.08	3.2
A (soba11)	Philips Bucky Diagnost	High frequency	0.06	3.1
B	Villa Sistem Medicali	High frequency	0.10	2.6
C	Superix 1000	3-phase/6- pulse	0.05	2.8
D	Philips Duo Diagnost	High frequency	0.07	3.4
E	Superix 712 MP	3-phase/12pulse	0.08	3.0

HVL\* - Half Value Layer

### 3. Rezultati i diskusija

Detaljnije informacije o karakteristikama pacijenata i tehnici snimanja za svih šest analiziranih rendgen-aparata se nalaze u tabeli 2. Na osnovu ovih podataka i radijacionog izlaza rendgen-aparata, procijenjeni su dozimetrijski pokazatelji radiološke prakse tj. srednje vrijednosti, standardne devijacije i opsezi ESAK, KAP i DRL za spektar dijagnostičkih procedura se nalaze u tabeli 3.

**Tabela 2. Sumirani podaci o pacijentima i parametrima radiografskih tehnika za 10 projekcija u 5 zdravstvenih institucija**

Tip pregleda	Projekcija	Broj pacijenata	Starost pacijenta (god)	Tjelesna masa (kg)	U (kVp)	It (mAs)
Pluća	PA	149	57(16-89)	70(56-81)	87(70-141)	9(1.0-70)
	LAT	72	57(22-82)	73(56-83)	110(66-150)	64(1.0-125)
Karlica	AP	90	57(19-88)	73(58-86)	73(60-102)	40(10-80)
Vratni dio kičme	AP	84	49(17-80)	74(56-87)	71(55-85)	16(4.0-50.0)
	LAT				69(55-81)	12(4.0-32.0)
Grudni dio kičme	AP	57	49(15-75)	71(55-83)	74(58-110)	34(3.2-80)
	LAT				85(70-125)	37(3.2-80)
Slabinski dio kičme	AP	97	53(21-88)	73(56-85)	79(60-110)	40(5-125)
	LAT	113	53(21-88)	73(56-85)	90(70-136)	53(7-140)
Abdomen	AP	61	51(22-82)	78(59-85)	80(66-110)	43(10-125)

**Tabela 3. Distribucija izmjerenih vrijednosti ESAK-a i KAP-a za 10 radiografskih procedura iz pet zdravstvenih institucija u Crnoj Gori**

Tip pregleda	Projekcija	ESAK (mGy)				DRL (mGy)	KAP (Gy·cm <sup>2</sup> )
		Min	x±SD	Treći kvartil	Max.		
Pluća	PA	0.05	0.90±0.65	0.80	4.00	0.30	434±403
	LAT	0.06	1.95±1.40	3.10	4.90	1.50	1067±1081
Karlica	AP	0.40	4.70±3.50	6.30	14.8	10	2605±1398
Vratni dio kičme	AP	0.07	1.10±0.80	1.90	3.50	-	420±275
	LAT	0.07	1.00±0.70	1.30	2.70	-	333±216
Grudni dio kičme	AP	0.60	3.10±2.00	4.50	7.90	-	1714±404
	LAT	1.00	4.30±3.00	6.60	10.6	-	2359±716
Slabinski dio kičme	AP	0.70	4.50±1.50	6.00	13.6	10	2750±1050
	LAT	1.30	8.00±4.40	10.00	21.1	30	4230±2257
Abdomen	AP	1.10	4.00±1.80	4.90	11.0	10	3880±2130

Izmjerene vrijednosti ESAK-a se kreću od 0.9 mGy za radiografiju pluća PA do 8.0 mGy za pregled slabinskog dijela kičme u LAT projekciji. Faktor max/min vrijednosti ESAK-a u posmatranim bolnicama je 76 za PA projekciju snimanja pluća, 88 za LAT projekciju snimanja pluća, 29 za pregled vratnog dijela kičme AP, 34 za LAT pregled vratnog dijela kičme i 21 za AP projekciju slabinskog dijela kičme. Izuzev radiografije pluća (obje projekcije), pacijentne doze ne prelaze referentne nivoe, ali se može uočiti razlika u dozama za istu proceduru snimanja u jednoj bolnici.

Rezultati ukazuju na značajne varijacije u izloženosti pacijenta između posmatranih bolnica, a takođe i između dva tehnički slična rendgen-aparata. Pacijentne doze se



razlikuju i od odeljenja do odeljenja u istoj zdravstvenoj instituciji. Utvrđeno je i da u velikom broju slučajeva osoblje koje rukuje rendgen-aparatima (operateri) nema dovoljno saznanja o karakteristikama opreme koju koristi i o svojoj ulozi u optimizaciji radiološke prakse. Na pacijentnu dozu mogu da utiču niz faktora kao: vrsta generatora, nedovoljna filtracija snopa zračenja i ručno postavljanje uslova snimanja. U bolnicama u kojima se koristi ručna kontrola ekspozicije je često primijećena nedovoljna prilagođenost radiografske tehnike snimanja tjelesnoj masi pacijenta kao individue. Kod svih ovih radiografskih procedura pacijentna doza je u direktnoj vezi sa parametrima snimanja: proizvodom vremena i struje pri ekspoziciji ( $I.t$ ) i sa naponom rendgenske cijevi (kV). Vrijednosti pacijentnih doza su posledica kombinacije ovih parametara koji se mogu pratiti.

U tabeli 3 dati su rezultati mjerenja pacijentnih doza, što predstavlja osnovu za modifikaciju tehnike snimanja i optimizaciju zaštite od zračenja u dijagnostičkoj radiologiji. Rezultati mjerenja u ovom radu ukazuju na značajan potencijal za optimizaciju procedura u dijagnostičkoj radiologiji u Crnoj Gori.

#### **4. Zaključak**

Na osnovu rezultata ovog rada, radiološkoj praksi u Crnoj Gori je neophodna revizija procedura, odnosno, optimizacija prakse. Iz ovoga proističe da je dijagnostičkoj radiologiji Crne Gore neophodna, i to hitno, optimizacija prakse koja se postiže redovnim mjerenjem izloženosti pacijenata, ocjenom kvaliteta dijagnostičke slike, analizom neuspjelih (odbačenih) snimaka i uključujući pridruživanje/saopštavanje mjerne nesigurnosti svakog mjerenja. Neophodno je izvršiti edukaciju svih entiteta u procesu organizovanja programa osiguranja kvaliteta i uskladiti njihovu implementaciju sa QC programom.

Ovaj proces bi trebalo uskladiti sa međunarodnim preporukama i iskustvom drugih zemalja sa dugom i dobrom tradicijom Programa osiguranja i kontrole kvaliteta u dijagnostičkoj radiologiji.

#### **5. Literatura**

- [1] European Council Directive 2013/59/EURATOM on Laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation. The Official Journal of the European Union, Brussels, 2013.
- [2] Commission of the European Communities, European guidelines and quality criteria for diagnostic radiographic images in pediatrics, EUR 16261 EN eds. Carmicheael J, et al. CEC, Brussels, 1996.
- [3] International Commission on Radiological Protection, 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 60, 1991.
- [4] Commission of the European Communities, European guidelines and quality criteria for diagnostic radiographic images, EUR 16260 EN eds. Carmicheael J, et. Brussels, 1996.
- [5] ISO/IEC17025:2005 General requirements for the competence of testing and calibration Laboratories.
- [6] International Electrotechnical Commission, IEC 60601-Safety standard family of medical electrical equipment.
- [7] International Electrotechnical Commission, IEC 61223-Quality assurance standard family of diagnostic radiology equipment.
- [8] Muhogora E. W., Ahmed A.N., Almosabihi S. A., Alsuwaidi J., Beganovic A., Ciraj B. O., Kabuya K. F., Milakovic M., Mukwada G., Ramanandraibe J. M., Rehani M. M.,

Rouzitalab J., Shandorf C., Patient Doses in Radiographic Examinations in 12 Countries in Asia, Africa and Eastern Europe: Initial Results from IAEA Projects, *AJR*, 190, (2008) 1453-1461.

[9] Shrimpton, P.C. Wall, B.F. Jones, D.G. Doses to patients from routine diagnostic X-ray examinations in England. *Br. J. Radiol.* 59:749-58, 1986.

[10] International Electrotechnical Commission, IEC, Medical Electrical equipment- Part I: General Requirements for Safety-3: Collateral Standard: General Requirements for Radiation Protection in Diagnostic X- Ray Equipment, IEC 601-I-3, IEC, Geneva, 1994.

## **PATIENTS EXPOSURE ASSESSMENT IN DIAGNOSTIC RADIOLOGY PRACTICE OF MONTENEGRO**

**Aleksandra MILATOVIĆ<sup>1</sup>, Benard BERIŠAJ<sup>1</sup>, Slobodan JOVANOVIĆ<sup>2</sup>**

1) *Centre for Ecotoxicological Research, Podgorica, Montenegro*

2) *University of Montenegro, Centre For Nuclear Competence and Knowledge  
Management, Podgorica, Montenegro*

### **ABSTRACT**

723 adult patient exposures are analysed in 5 largest medical institutions in the country. Measurements were systematically made of two fundamental dosimetric quantities, skin surface kerma and kerma-to-surface product. Attention is focussed at diagnostic procedures which contribute most significantly to collective dose of the population. It is found that patient exposures are unnecessarily too high, often far above international norms. By knowledgeably and consistently applying some relatively simple protocols it is possible to considerably reduce patient exposures, i.e. collective dose from medical applications of ionizing radiation in Montenegro.

# ДОЗИМЕТРИЈСКЕ ВЕЛИЧИНЕ У ЗАШТИТИ ОД ЗРАЧЕЊА-ШТА МЕРИМО

**Славица ИВКОВИЋ, Стефан РАФАЈЛОВИЋ**

*Агенција за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије,  
Београд, ivkovic@srbatom.gov.rs, rafajlovic@srbatom.gov.rs*

## САДРЖАЈ

*У раду је дат преглед основних дозиметријских величина, подела на оперативне и величине које се примењују у заштити од зрачења, као и њихова међусобна повезаност. Назначено је добијање величина које се примењују у заштити од зрачења из основних физичких и оперативних дозиметријских величина. Циљ рада је јасно раздвајање дозиметријских величина, упућивање измерених величина на њихову практичну примену у заштити од зрачења, као и указивање на потребу термилошке усклађености у области.*

### 1. Увод

У свакој области у којој се врши процена ризика, неопходна су одговарајућа мерења и јасно дефинисане величине и мерне јединице. У систему дозиметријских величина две међународне организације су меродавне за њихово дефинисање и коришћење – Међународна комисија за радијационе јединице и мерења (ICRU) која се бави физичким аспектима дозиметрије и Међународна комисија за радиолошку заштиту (ICRP) која се бави проценом и квантификацијом биолошких ефеката зрачења доносећи препоруке и упутства за успостављање система заштите од зрачења [1,2]. Крајњи циљ система јединица и величина у дозиметрији зрачења је јасан начин изражавања процене ефеката зрачења на људски организам [3].

### 2. Дозиметријске величине<sup>1</sup>

Дозиметријске величине квантификују ефекте проласка јонизујућег зрачења кроз средину и има их доста, оне се мењају и уводе се нове у зависности од области примене зрачења. Јасно поимање дозиметријских величина умногоме помаже сагледавању последица и успостављању критеријума у заштити од зрачења.

**Основне физичке величине** које примарно одређују зрачење, и директно се мере су **флуенс (Ф) зрачења, керма (К) и апсорбована доза (D)**. Ове величине се директно одређују примарним стандардима у националним стандардним лабораторијама, и не носе у себи аспект заштите од зрачења. У зависности од врсте зрачења, а за даље прерачунавање дозиметријских величина, односно еталонирање дозиметара, одређују се: за неутронско зрачење-флуенс, за фотонско зрачење-керма и за бета зрачење-апсорбована доза.

Апсорбована доза је основна дозиметријска величина (D), дефинисана као средња вредност енергије зрачења  $d\bar{E}$  предате елементу средине јединичне масе  $dm$ . Апсорбована доза је изведена на основу стохастичке вредности предате енергије и не одражава флукуацију/расподелу депоновања енергије у средини. С обзиром на стохастичку природу интеракције зрачења са средином апсорбована доза одређује

---

<sup>1</sup>Физичке величине поменуте у тексту су дефинисане у прилогу [1,2,4,5]

интеракцију у некој тачки средине, применљива је на све врсте зрачења и средине, мерљива је величина за коју постоје примарни стандарди, а може се добити и рачунским путем [1].

Дозиметријске величине се делена величине које се примењују у заштити од зрачења, а повезане су са ризицима које пролазак зрачења представља за ткива и човекове органе и оперативне величине, које се користе у мониторингу животне средине и лица професионално изложених зрачењу. У ширем смислу све дозиметријске величине се одређују у циљу заштите од зрачења, али у овако постављеној подели преузетој из наведене литературе, термин "величине које се примењују у заштити од зрачења" се односи на средњу апсорбовану дозу у ткиву/органу ( $D_T$ ), еквивалент дозе ( $H_{T,R}$ ) и ефективну дозу ( $E$ ) - величине којима се процењује ризик које излагање зрачењу представља за људски организам и које служе за успостављање критеријума за примену мера заштите и ограничавања излагању.

Како се наведене величине не могу директно мерити, ICRU је увела оперативне величине, које се адекватно еталонираним инструментима/дозиметрима могу директно мерити и могу послужити за процену величина које се примењују у заштити од зрачења - за мониторинг радног или отвореног простора (амбијентални еквивалент дозе  $H^*(d)$ , усмерени амбијентални еквивалент дозе  $H'(d,\Omega)$ ), или за лични мониторинг у циљу контроле и ограничавања излагања лица које раде или бораве у пољу повећаног зрачења (лични еквивалент дозе  $H_p(d)$ ) [6]. Оперативне величине се дефинишу и односе на дозу у одређеној тачки ткивно еквивалентне ICRU сфере, док се калибрација дозиметара врши на одговарајућим моделима Међународне организације за стандарде (ISO фантоми облика блока, цилиндра и штапа).

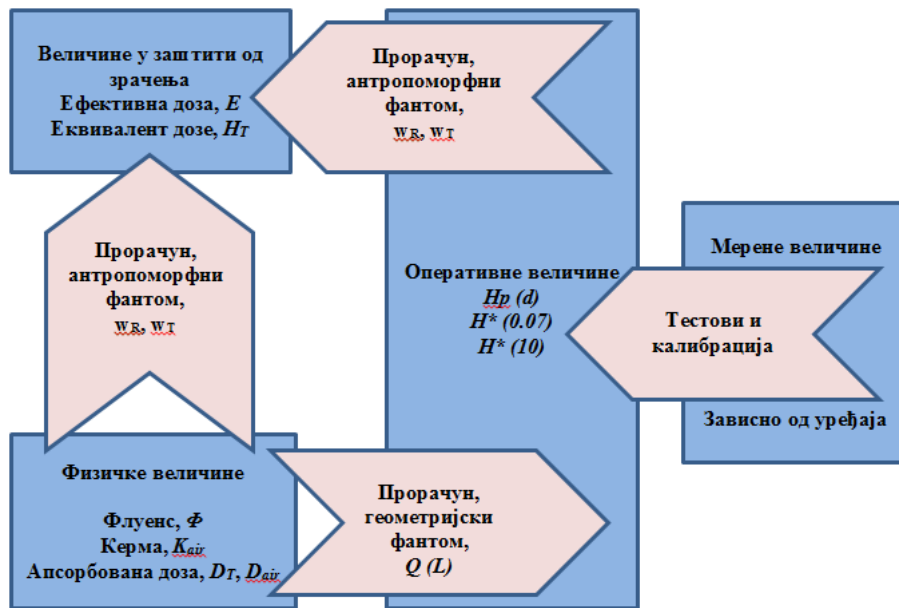
На слици 1. је дата подела дозиметријских величина [7].

У случајевима нуклеарног или радиолошкогакцидента, при вишим вредностима апсорбованих доза и јачина доза, за доношење одлука о примени заштитних мера у циљу спречавања односно умањивања детерминистичких ефеката зрачења секористи RBE усредњена апсорбована доза за ткиво или орган ( $AD_T$ ).

Оперативне дозиметријске величине које се добијају мерењима, могу послужити за израчунавање ефективне дозе која показује ризик и репрезентује стохастичке ефекте. На слици 2. је приказана повезаност дозиметријских величина - основних, оперативних и величина које се примењују у заштити од зрачења са назначеним факторима и начинима прерачунавања [6,7,8].



Слика 1. Подела дозиметријских величина



Слика 2. Веза између дозиметријских величина

Детаљније објашњење начина и метода прерачунавања наведених величина превазилази обим рада, као и објашњење промена у приступу факторима прерачунавања (фактор квалитета зрачења ( $Q$ ), релативна биолошка ефикасност ( $RBE_{R,T}$ ), радијациони и ткивни тежински фактори ( $w_R, w_T$ ), а чиме се бави ICRP публикација 92 [9].

### **Процена дозиметријских величина у заштити од зрачења изосновних физичких величина**

За процену ефективне дозе од спољашњег озрачивања, се из вредности керме Монте Карло симулацијом на одабраним моделима и геометрији озрачивања одређује расподела депоноване енергије по ткивима/органима и врши израчунавање средње апсорбоване дозе [2]. Из средње апсорбоване дозе ( $D_T$ ) се одређује еквивалент дозе ( $H_T$ ) за ткиво или орган (узимањем у обзир радијационог тежинског фактора ( $w_R$ ) за зрачење коме је ткиво изложено) и ефективне дозе ( $E$ ) за цело тело (узимањем у обзир ткивних тежинских фактора ( $w_T$ ) за поједине органе).

За процену ефективне дозе фотонског зрачења које потиче од природних радионуклида фактор прерачунавања ефективна доза/керма износи  $0.7-0.8 \text{ SvGy}^{-1}$ , што представља могућност брзе процене изложености популације основном зрачењу [7,10]. Исто важи за фотонско зрачење одређене енергије при мерењу амбијенталног еквивалента дозе.

### **Процена дозиметријских величина у заштити од зрачења из оперативних величина**

Ефективна доза професионално изложених лица услед спољашњег излагања при **равномерном излагању** целог тела без коришћења заштите може се изједначити са личним еквивалентом дозе  $H_p(10)$ . При **неравномерном излагању** или када се користе лична заштитна средства ефективна доза се може добити коришћењем два или више дозиметра [8].

Процена ефективне дозе из резултата мерења личног еквивалента дозе је такође могућа у случају познавања релација између показивања инструмента и керме или апсорбоване дозе у ваздуху.

Процена еквивалента дозе за органе – кожу, екстремитете или очно сочиво се може извршити на основу усмереног амбијенталног еквивалента дозе ( $H'(0,07,\Omega)$ ), или личног еквивалента дозе за тачке на дубини ткива  $0,07\text{mm}$  ( $H_p(0,07)$ , ређе одговарајуће величине за  $d=3\text{mm}$ ).

### **3. Закључак**

У раду је дат преглед основних дозиметријских величина које се користе у процени ефеката зрачења услед спољашњег излагања, као и веза између дозиметријских величина које се мере и које се процењују. Није обухваћена процена дозе услед унутрашњег излагања-инхалацијом и ингестијом, као ни веома сложен случај процене након излагања или унутрашње контаминације.

### **4. Литература**

[1] International Commission on Radiological Protection The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103. Ann, ICRP (2007).

[2] International Commission on Radiological Protection Conversion coefficients for use in radiological protection against external radiation. ICRP publication 74. Ann. ICRP 26 (3-4) (1997).

[3] Правилник о границама излагања јонизујућим зрачењима и мерењима ради процене нивоа излагања јонизујућим зрачењима ("Сл.гласник РС" број 86/2011)

- [4] IAEA Safetyglosary, Terminology used in nuclearsafety and radiation protection. 2007. IAEA, Vienna.
- [5] IAEA Safety standards, Radiation protection and safety of radiation sources: International basic safety standards. GSR part 3 2014. IAEA, Vienna.
- [6] IAEA, Safety reports series No 16, Calibration of radiation protection monitoring instruments. 2000. IAEA, Vienna.
- [7] Mats Isaksson Environmental Dosimetry – Measurements and Calculations, Radioisotopes - Applications in Physical Sciences. 2011.
- [8] EC Radiation Protection 160, Technical Recommendations for Monitoring Individuals Occupationally Exposed to External Radiation, Directorate General for Energy and Transport Directorate H-Nuclear energy Unit H.4- Radiation Protection 2009.
- [9] International Commission on Radiological Protection Relative Biological Effectiveness (RBE), Quality Factor (Q), and Radiation Weighting Factor ( $w_R$ ). ICRP publication 92. Ann. ICRP 26 (3-4) (2003).
- [10] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) Sources and effects of ionizing radiations. Report to General Assembly, with Scientific Annexes. 2000. UN, New York.

## Прилог:

### Физичке величине поменуте у тексту:

**флуенс зрачења,  $\Phi$**  – количник броја честица ( $dN$ ) и дела површине ( $da$ ) сфере кроз коју пролазе,  $\Phi = \frac{dN}{da} [m^{-2}]$

**керма,  $K$**  – количник збира кинетичких енергија ( $dE$ ) свих наелектрисаних честица ослобођених услед проласка зрачења и елемента средине масе ( $dm$ ),  $K = \frac{dE}{dm} [Gy]$

**апсорбована доза,  $D$**  – средња вредност енергије зрачења ( $d\bar{\epsilon}$ ) саопштене елементу средине масе ( $dm$ ),  $D = \frac{d\bar{\epsilon}}{dm} [Gy]$

**средња апсорбована доза у ткиву, орган доза,  $D_T = \frac{1}{m_T} \int_{m_T} D dm = \frac{\epsilon_T}{m_T}$** , где је  $m_T$  маса ткива или органа,  $D$  апсорбована доза у елементу масе  $dm$ , а  $\epsilon_T$  укупна предата енергија [ $Gy$ ]

**RBE усредњена апсорбована доза за ткиво или орган,  $AD_T$**  – производ средње апсорбоване дозе ( $D_{R,T}$ ) зрачења ( $R$ ) у ткиву или органу ( $T$ ) и релативне биолошке ефикасности ( $RBE_{R,T}$ ),  $AD_{T,R} = D_{T,R} \times RBE_{T,R} [Gy]$ ; уколико поље зрачења чине више врста зрачења тада је RBE усредњена доза,  $AD_T = \sum_R D_{R,T} \times RBE_{R,T} [Gy]$

**еквивалент дозе,  $H = D \times Q$** , производ апсорбоване дозе ( $D$ ) у тачки ткива или органа и фактора квалитета ( $Q$ ) за одређену врсту зрачења (Ова величина није поменута у тексту, али је потребна за дефиницију оперативних величина. За њу нема другог термина (јер је већ садржана у називу оперативних величина), осим као истог термина величине у заштити од зрачења ( $H_{T,R}$ ))

**амбијентални еквивалент дозе,  $H^*(d)$**  – еквивалент дозе зрачења произведен од одговарајућег проширеног и усмереног поља у тачки ICRU сфере на дубини  $d$  на радијусу који је попречно постављен на правац проширеног и усмереног поља [ $Sv$ ]

**лични еквивалент дозе,  $H_p(d)$**  – еквивалент дозе у тачки ткива на дубини  $d$  испод одговарајуће тачке људског тела [ $Sv$ ]

*усмерени амбијентални еквивалент дозе,  $H'(d, \Omega)$*  – еквивалент дозе који, у унутрашњости ICRU сфере на дубини  $d$  у правцу радијуса који се налази у просторном углу  $\Omega$ , производи одговарајуће проширено радијационо поље [Sv]  
*еквивалент дозе,  $H_{T,R}$*  – производ апсорбоване дозе зрачења ( $D_{T,R}$ ) ослобођене у ткиву или органу  $T$  и радијационог тежинског фактора ( $w_R$ ) зрачења типа  $R$ ,  $H_{T,R} = w_R \times D_{T,R}$  [Sv], када поље чини више врста зрачења еквивалент дозе је  $H_T = \sum_R w_R \times D_{T,R}$   
*ефективна доза,  $E$*  – збир производа еквивалентних доза ткива или органа ( $H_T$ ) и одговарајућег ткивног тежинског фактора ( $w_T$ ),  $E = \sum_T w_T H_T$  [Sv]

## DOSE QUANTITIES IN RADIATION PROTECTION-WHAT DO WE MEASURE

**Slavica IVKOVIĆ, Stefan RAFAJLOVIĆ**

*Serbian Radiation Protection and Nuclear Safety Agency*

### ABSTRACT

*In the paper the overview of main dose quantities were presented. The main purpose was clear distinguishing the operational/measurable quantities as opposed to radiation protection quantities which are important in the area of protection of human beings. There are shown the connection between them, as well as the way of using measurable quantities for the assessment of effective dose.*



## REZULTATI INTERKOMPARACIJE SERVISA ZA LIČNU DOZIMETRIJU

**Jelena STANKOVIĆ<sup>1,2</sup>, Jelica KALJEVIĆ<sup>2</sup>, Filip VANHAVERE<sup>3</sup>, Miloš ŽIVANOVIĆ<sup>2</sup>, Sandra ČEKLIĆ<sup>2,4</sup>, Danijela ARANĐIĆ<sup>1,2</sup> i Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>2</sup>**

1) Elektrotehnički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Srbija

2) Institut za nuklearne nauke Vinča, Univerzitet u Beograd, Srbija  
jelena.stankovic@vinca.rs

3) SCK•CEN, Belgian Nuclear Research Centre, Boeretang 200, B-2400 Mol, Belgija

4) Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Srbija

### SADRŽAJ

*U okviru bilateralnog projekta, SCK-CEN BESMEZ 2014-03, organizovana je interkomparacija ličnih dozimetara za procenu izloženosti celog tela u poljima rendgenskog i gama zračenja, koji se koriste u ovlašćenim servisima za ličnu dozimetriju u Belgiji i Srbiji. Cilj interkomparacije je bila verifikacija kompetentnosti servisa za ličnu dozimetriju pri određivanju ličnog ekvivalenta doze, Hp(10). U interkomparaciji su učestvovali Belgijski centar za nuklearna istraživanja, SCK-CEN i Institut za nuklearne nauke Vinča, Srbija. Trinaest dozimetara po servisu su ozračena u različitim kvalitetima zračenja: <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co i u snopu X-zračenja (N-60). Oba servisa koja su učestvovala koristila su isti materijal detektora, LiF: Mg, Ti. Rezultati interkomparacije su pokazali da oba servisa ispunjavaju Evropske tehničke preporuke za monitoring profesionalno izloženih lica.*

### 1. Uvod

Prema tehničkim preporukama za monitoring lica profesionalno izloženih jonizujućem zračenju [1], servisi za ličnu dozimetriju i/ili ovlašćeni servisi za ličnu dozimetriju bi trebalo da učestvuju u nacionalnim ili internacionalnim interkomparacijama. Ovakve provere rada servisa za monitoring omogućavaju visok kvalitet usluge i harmonizaciju među servisima za individualni monitoring u Evropi. Interkomparacije pomažu u pronalaženju grešaka u radu servisa kao i u poboljšanju performansi. U pojedinim zemljama kao što je i Srbija, učestvovanje u interkomparacijama i prijavljivanje rezultata istih je obavezan korak u procesu akreditacije laboratorija za ispitivanje prema zahtevima standarda SRPS IEC 17025:2006 i u procesu dobijanju ovlašćenja za rad [2,3].

U ovom radu su prikazani rezultati interkomparacije dva servisa za ličnu dozimetriju koji koriste termoluminescentne dozimetre (TLD), servisa iz Belgije i servisa iz Srbije. Ozračivanje i merenja su obavljena pod okriljem bilateralnog projekta, SCK-CEN BESMEZ 2014-03. Cilj interkomparacije je bila provera kompetentnosti prilikom određivanja ličnog ekvivalenta doze Hp(10) u polju fotonskog zračenja.

### 2. Materijal i metod

U okviru interkomparacije, po trinaest dozimetara iz oba autorizovana servisa za ličnu dozimetriju su ozračeni u tri kvaliteta snopa zračenja fotona. U servisu za ličnu dozimetriju VINCA koriste se dozimetri koje proizvodi Harshaw i koji se sastoje od dva termoluminescentna (TL) detektora LiF:Mg,Ti (TLD-100<sup>TM</sup>) dok servis SCK-CEN koristi dozimetre dizajnirane od strane TNO [4] sa 3 TL detektora od LiF:Mg, Ti.

Dozimetri su prikazani na Slici 1. TLD čitač koji se koristi u VINCA za očitavanje dozimetra je „Harshaw Model 6600 PLUS Automated TLD Reader” (Thermofisher Scientific, USA) i kalibracioni faktor mu je određen u  $^{137}\text{Cs}$ .

Čitač dozimetara koji se koristi u SCK-CEN je dizajniran od strane TNO i kalibracioni faktor je određen u  $^{60}\text{Co}$ . Oba servisa za ličnu dozimetriju su akreditovana prema ISO17025 [3] i autorizovana za obavljanje lične dozimetrijske kontrole od strane nacionalnih akreditacionih tela.

Dozimetri koji se koriste u servisima za ličnu dozimetriju u SCK-CEN Belgijskom nuklearnom institutu (SCK-CEN) i Institutu za nuklearne nauke Vinča (VINCA), su ozračeni u referentnim poljima  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  i  $N-60$ , tako što je po četiri dozimetra iz oba servisa ozračeno u kvalitetu  $^{60}\text{Co}$  (0.5 mSv i 5mSv), po tri dozimetra u kvalitetu  $^{137}\text{Cs}$  (0.5 mSv), a po 2 u kvalitetu  $N-60$  (1 mSv). Ozračivanje je izvršeno u Laboratoriji za zaštitu od jonizujućeg zračenja i zaštitu životne sredine Instituta Vinča koja poseduje sekundarni standard za merenje kerme u vazduhu čime je obezbeđena sledljivost do nacionalnog etalona.

Dozimetri iz VINCA su očitani 24h po ozračivanju i korigovani za dozu usled prirodnog zračenja, dok su dozimetri iz SCK-CEN očitani u Belgiji i korigovani na transportnu dozu i dozu usled prirodnog zračenja.



**Slika 1. (Levo) VINCA dozimetri; (Desno) SCK-CEN dozimetri (preuzeto sa <http://science.sckcen.be/en/Services/RDC/Dosimetry>)**

### 2.1. Određivanje referentne vrednosti

Za određivanje referentne vrednosti  $H_p(10)$  je korišćen fantom za telo (ISO SLAB) [5]. Ozračivanje je vršeno u horizontalnom snopu sa referentnim upadnim uglom od  $0^\circ$ . Kerma u vazduhu ( $K_{air}$ ) u referentnoj tački je izmerena sekundarnim standardnom, jonizacionom komorom PTW 32002 s/b 310. Nakon merenja  $K_{air}$ , referentna vrednost  $H_p(10)$  je dobijena izračunavanjem (1):

$$H_p(10) = h_p(10, E, 0^\circ) * K_{air}, \quad (1)$$

gde je:

-  $h_p(10, E, 0^\circ)$  konverzioni faktor za operativnu dozimetrijsku mernu veličinu, lični ekvivalent doze, na dubini od 10 mm, pri referentnom uglu od  $0^\circ$ , i pri energiji upadnih fotona,  $E$ . Usled različitih srednjih energija referentnih polja ( $E_{Cs}=662$  keV,  $E_{Co}=1,25$  MeV,  $E_{N60}=48$  keV),  $h_p(10, E, 0^\circ)$  je iznosio 1.21, 1.15 i 1.65, redom za izvore jonizujućeg zračenja  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  i  $N-60$  [6].

### 3. Rezultati i diskusija

U Tabeli 1 su prikazani rezultati doze dobijene očitavanjem svakog pojedinačnog dozimetra kao i relativne vrednosti odstupanja u očitavanju između dva servisa. Najveće odstupanje u očitavanjima se javlja za  $^{60}\text{Co}$  za dozu 0.5 mSv i iznosi do 40%. Srednje odstupanje od

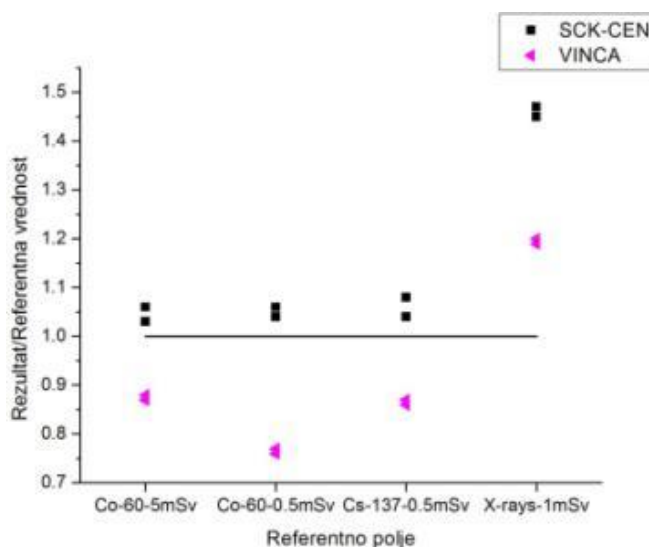
26% ukazuje na sistemsku razliku u načinu očitavanja TLD-a u posmatranim službama i može biti posledica kalibracije aparata u različitim poljima.

**Tabela 1: Rezultati očitavanja dozimetara iz SCK-CEN i VINCA.**

Polje	Referentna vrednost Hp(10) [mSv]	SCK-CEN		VINCA		SCK/VINCA
		Oznaka dozimetra	Rezultat [mSv]	Oznaka dozimetra	Rezultat [mSv]	
Co-60	5	P050 R 401	5.3	3703	4.37	1.21
Co-60	5	P050 R 405	5.13	3702	4.35	1.18
Co-60	5	P050 R 412	5.17	3700	4.35	1.19
Co-60	5	P050 R 420	5.28	3701	4.38	1.21
Co-60	0.5	P050 R 408	0.52	3699	0.39	1.35
Co-60	0.5	P050 R 411	0.53	3698	0.38	1.39
Co-60	0.5	P050 R 413	0.53	3696	0.39	1.37
Co-60	0.5	P050 R 415	0.53	3697	0.38	1.38
Cs-137	0.5	P050 R 403	0.54	3687	0.43	1.25
Cs-137	0.5	P050 R 404	0.52	3688	0.44	1.20
Cs-137	0.5	P050 R 406	0.54	3689	0.43	1.26
X-rays (N-60)	1	P050 R 402	1.45	3690	1.20	1.21
X-rays (N-60)	1	P050 R 414	1.47	3691	1.19	1.23

Na Slici 2. su prikazani relativni odzivi dozimetara prema referentnim dozama i poljima u kojima je ozračivanje izvršeno. Na slici se uočava da rezultati iz VINCA potcenjuju dozu u svim poljima osim u *N-60*. Maksimalno odstupanje VINCA rezultata je zabeleženo za polje zračenja  $^{60}\text{Co}$  i dozu od 0.5 mSv i iznosilo je 24%. Suprotno ovim rezultatima, SCK-CEN je na svim dozama i svim poljima imao precenjene vrednosti referentnih doza. Za  $^{60}\text{Co}$  i  $^{137}\text{Cs}$  rezultati su blago odstupali, i to za 8%, dok za *N-60* je zabeleženo veće odstupanje od 47%.

Svi dobijeni rezultati su u skladu sa procenjenom mernom nesigurnosti oba servisa za individualni monitoring i ispunjavaju Evropske tehničke preporuke [1] gde se nalaže da TL dozimetar pokazuje od 0.7 do 1.5 referentne vrednosti [7].



**Slika 2. Relativni odziv dozimetara**

#### 4. Zaključak

U radu su prikazani rezultati interkomparacije dva nacionalna servisa lične dozimetrije Belgije i Srbije. Veličina koja je merena je lični ekvivalent doze  $H_p(10)$ . Oba servisa koriste TL dozimetre i oba su prikazala rezultate u okviru prihvatljivih granica odstupanja. Zaključeno je da postoji sistemsko odstupanje u proseku od 26% između učesnica koje je najverovatnije posledica različitog načina kalibracije TLD čitača.

#### 5. Zahvalnica

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije u okviru projekata III43009, kao i od strane SCK•CEN projektom BESMEZ 2014-03.

#### 6. Literatura

- [1] “Technical Recommendations for Monitoring Individuals Occupationally Exposed to External Radiation”, European Commission, Luxembourg, RP no. 160, (2009).
- [2] Pravilnik o uslovima za dobijanje rešenja za obavljanje poslova iz oblasti zaštite od zračenja. *Sl. glasnik RS*, 61 (2011).
- [3] International Organization for Standardization. General Requirements for the competence and Calibration of testing Laboratories. ISO 17025, (2005).
- [4] Van Dijk, J. W. E., and Julius, H. W. (1990). Performance analysis of the TNO TLD individual monitoring service. *Radiat. Prot. Dosim.* 34 (1990) 171-174.
- [5] X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and dose-rate meters and for determining their response as a function of photon energy - Part 3: Calibration of area and personal dosimeters and the measurement of their response as a function of energy and angle of incidence, ISO 4037-3, (1999).
- [6] International Atomic Energy Agency, “Calibration of Radiation Protection Monitoring Instruments”, Vienna, Austria, Safety Reports Series No. 16, (2000).
- [7] Stadtmann, H., et al. EURADOS intercomparisons for individual monitoring services: results of the 2012 whole body intercomparison. *Radiat.Meas.* 71 (2014) 416-420.

## INTERCOMPARASION RESULTS OF PERSONAL DOSIMETERY SERVICES

**Jelena STANKOVIĆ<sup>1,2</sup>, Jelica KALJEVIĆ<sup>2</sup>, Filip VANHAVERE<sup>3</sup>, Miloš ŽIVANOVIĆ<sup>2</sup>, Sandra ČEKLIĆ<sup>2,4</sup>, Danijela ARANĐIĆ<sup>1,2</sup> i Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup>**

*1) School of Electrical Engineering, University of Belgrade, Serbia*

*2) Vinca Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Serbia,  
jelena.stankovic@vinca.rs*

*3) SCK•CEN, Belgian Nuclear Research Centre, Boeretang 200, B-2400 Mol, Belgium*

*4) Faculty of Physics, University of Belgrade, Serbia*

### ABSTRACT

Within the bilateral project SCK-CEN BESMEZ 2014-03, the intercomparison of personal dosimeters was organized. The dosimeters are in use at the authorized services for individual monitoring in Belgium and Serbia, for the assessment of whole-body dose due to X and gamma rays. The aim of this intercomparison was the verification of competences of personal dosimetry services to measure the personal dose equivalent,  $H_p(10)$ . The participants were SCK-CEN, Belgian Nuclear Research Centre (Belgium), and Vinca Institute of Nuclear Sciences (Serbia). Thirteen dosimeters per service were irradiated in different radiation qualities:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  and X-ray beam (quality N-60). Both services that participated use the same material for the detectors, LiF: Mg, Ti. The inter-comparison results showed that participating services meet European technical recommendations for monitoring of occupationally exposed persons.

## REZULTATI PRVE INTERKOMPARACIJE PASIVNIH DOZIMETARA ZA OČNO SOČIVO

**Jelica KALJEVIĆ<sup>1</sup>, Jelena STANKOVIĆ<sup>1,2</sup>, Miloš ŽIVANOVIĆ<sup>1</sup>, Đorđe LAZAREVIĆ<sup>1</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup>**

1) Institut za nuklearne nauke Vinča, Univerzitet u Beograd, Srbija

2) Elektrotehnički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Srbija

jkaljevic@vinca.rs

### SADRŽAJ

*U radu su prikazani rezultati određivanja doze za očno sočivo koji su postignuti u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta Vinča, a u okviru interkomparacije dozimetara za očno sočivo organizacije EURADOS. Dozimetri sa termoluminescentnim kristalom LiF:Mg,Cu,P čija je komercijalna oznaka DXT-100H su ozračeni u različitim kvalitetima snopa x i gama zračenja, definisanih standardom ISO 4037 kao i u RQR dijagnostičkim kvalitetima snopova definisanim standardom IEC 61267. Rezultati određivanja doze su iskazani kao dozimetrijska veličina lični ekvivalent doze  $H_p(3)$ . Rezultati su bili zadovoljavajući, s obzirom da je za sve kvalitete i konfiguracije snopa izmerena doza bila u skladu sa zadatim kriterijumima a odgovor dozimetra je bio u intrevalu 0.75-1.01. Imajući u vidu rastuću potrebu za rutinskim monitoringom doze za očno sočivo, ovakve interkomparacije je potrebno organizivati u redovnim vremenskim intrevalima.*

### 1. Uvod

Izloženost jonizujućim zračenjima može izazvati radijacione povrede oka koje mogu dalje prouzrokovati gubitak funkcije očnog sočiva i kataraktu. U Publikaciji 103, Međunarodna komisija za zaštitu od zračenja (ICRP) preporučuje reviziju efekta malih doza jonizujućih zračenja, pozivajući se na rezultate brojnih epidemioloških istraživanja koji su ukazali da katarakta nastaje na dozama koje su daleko manje od 2 Gy [1]. U Publikaciji 118 postavljen je novi prag za radijacione povrede oka koji sada iznosi 0.5 Gy, kako za akutna tako i za hronična izlaganja jonizujućim zračenjima [2]. Na osnovu toga, preporučeno je smanjenje granice doze za očno sočivo, tako da nova granica sada iznosi 20 mSv na godišnjem nivou, što je 7.5 manje u odnosu na ranije vežeću granicu doze od 150 mSv [3]. Nova granica doza nametnula je potrebu za razvojem novih dozimetara, dozimetrijskih metoda, metoda za etaloniranje pasivnih i aktivnih dozimetara kao i za obezbeđenje poverenja u tačnost dozimetrijskih merenja.

Organizacija EURADOS (European Radiation Dosimetry Group) redovno organizuje interkomparacije dozimetara koje koriste servise za individualni monitoring, a koje omogućavaju dozimetrijskim laboratorijama da uporede svoje performanse sa sličnim organizacijama i da planiraju poboljšanja svojih aktivnosti [4]. U kontekstu smanjenja granice doze za očno sočivo EURADOS je 2014. godine organizovao prvu međunarodnu interkomparaciju pasivnih dozimetara za očno sočivo [5]. Cilj ovog rada je da se prikažu rezultati određivanja doze za očno sočivo koji su postignuti u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta Vinča, a u okviru interkomparacije dozimetara za očno sočivo organizivane od strane organizacije EURADOS.

## 2. Materijal i metode

Interkomparacija je organizovana sa ciljem da se ispituju mogućnosti trenutno korišćenih pasivnih dozimetara za očno sočivo u pogledu određivanja dozimetrijske veličine  $H_p(3)$ . Organizator intrekomparacije bila je radna grupa 12 (WG 12) organizacije EURADOS koja je i definisala propozicije za učešće u ovoj interkomparaciji [5], u kojoj je učestvovalo ukupno 20 laboratorija iz 15 zemalja [5]. Ozračivanje dozimetara je obavljeno u četiri dozimetrijske laboratorije i to primenjujući nekoliko standardnih i jedan nestandardni kvalitet snopa. Dozimetri su ozračeni u S-Cs kvalitetu snopa definisanom u ISO 4037 standardu, ISO kvalitetima snopova N serije definisanim u istom standardu i u RQR dijagnostičkim kvalitetima snopova definisanim standardom IEC 61267 [6,7]. Pored toga, korišćen je i nestandardni "realistic" kvalitet snopa, koji predstavlja polje rasejanog zračenja u interventnoj radiologiji ili kardiologiji u visini glave operatera. Ozračivanja su obavljena koristeći cilindrični fantom, razvijen u okviru ORAMED projekta [8,9].

U skladu sa pravilima interkomparacije, u Laboratoriji za ličnu dozimetriju Instituta Vinča je pripremljeno i poslato ukupno 38 dozimetara, pri čemu je 20 ozračeno dozom koja je nepoznata za učesnika (po dva u svakom kvalitetu snopa), 6 su bili rezervni a ostali su namenjeni određivanju doze u tranzitu. Dozimetri su morali da zadovolje dva kriterijuma: da budu dovoljno osetljivi i da budu ergonomski prihvatljivi za korisnika, odnosno da ne umanjuju komfor tokom rada. U skladu sa ovim zahtevima, odabrani su dozimetri sa termoluminescentnim kristalom LiF:Mg,Cu,P čija je komercijalna oznaka DXT-100H. Ovi dozimetri su namenjeni za rutinski monitoring doze za ekstremitete, imaju male dimenzije i moguće ih je pomoću trake ili na drugi način fiksirati u blizini oka operatera. Pored toga, detektor sačinjen od LiF:Mg,Cu,P, je osetljiviji materijal u odnosu na rutinski korišćen materijal TLD-100 koji je namenjen za monitoring doze za celo telo. Dozimetri su kalibrisani u Laboratoriji za etaloniranje u okviru laboratorije za radijaciona merenja (Laboratorija za zaštitu od zračenja Instituta Vinča) koristeći homogeni cilindrični fantom od polimetilmetakirlata (PMMA) prečnika 16 cm. Kao referentni standard za kermu u vazduhu korišćen je merni sklop koji čine elektrometar UNIDOS T10002-20767 i jonizaciona komora TW 32002-0310, etaloniran u polju x-zračenja. Kao referentni kvalitet korišćen je ISO N-80 snop x-zračenja u nultoj angulaciji.

Dozimetrijska veličina  $H_p(3)$  je određena na osnovu konverzionih koeficijenata iz kerme u vazduhu u  $H_p(3)$  [10]. Referentni ekvivalent doze  $H_p(3)$  se određuje prema sledećoj jednačini:

$$H_p(3) = h_p(3, \alpha) \cdot K_{air} \quad (1)$$

gde je:  $h_p(3, \alpha)$  - konverzioni koeficijent iz kerme u vazduhu u  $H_p(3)$  za dati ugao,  $\alpha$ , za fotone i fantom za glavu,  $K_{air}$  - referentna kerma u vazduhu.

Sistem za merenje ličnog ekvivalenta doze  $H_p(3)$  za oko čine: komercijalni TLD DXT-RAD proizvođača Harshaw (Thermo Scientific, USA), čitač dozimetara Harshaw 6600 PLUS (Thermo Scientific, USA), softver WinREMS (Windows based Radiation Evaluation and Management System) i aparatura za montažu-demontažu dozimetara. TLD DXT-RAD pripada grupi pasivnih dozimetara i sastoji se iz: ringlete, plastičnog prstena i plastične kapice. Ringletu čini detektor u obliku tablete od termoluminescentnog materijala LiF:Mg,Cu,P u Kapton foliji označen 5-cifrenim identifikacionim brojem kao na Slici 1. Plastična kapica drži ringletu na plastičnom

prstenu. Sva merenje se vrše na automatskom TLD čitaču Harshaw 6600 PLUS koji se sastoji od programabilnog sistema za zagrevanje baziranog na brzom zagrevanju gasa (azota), i sistema fotomultiplikatora koji mere intenzitet termoluminescentne svetlosti. Program WinREMS omogućava kontrolu merenja i izračunava ekvivalentnu dozu u ringleti:

$$D = \frac{Q \cdot ECC}{RCF} \quad (2)$$

gde je: D - izmeren ekvivalent doze u smislu  $H_p(3)$ , Q- naelektrisanje na izlazu fotomultiplikatora, ECC - koeficijent kalibracije svakog pojedinačnog dozimetra, RCF - koeficijent kalibracije čitača. Koeficijenti ECC i RCF se dobijaju korišćenjem tri automatske kalibracione procedure programa „WinREMS“: i) izbor kalibracionih dozimetara, ii) kalibracija čitača i iii) kalibracija dozimetara. Za kalibraciju čitača i izračunavanje RCF koeficijenta, koriste se kalibracioni dozimetri, prethodno ozračeni u dozimetrijskoj laboratoriji, u skladu sa gore navedenom procedurom. Za određivanje koeficijenta kalibracije dozimetra, ECC, koristi se iradijator u samom čitaču ( $^{90}\text{Sr}$ ) i program „WinREMS“.



**Slika 1. Dozimetri DXT-RAD (Thermo Scientific, USA),**

Kriterijumi za evaluaciju rezultata definisano su od strane organizatora intrekomparacije a u skladu sa standardom ISO 14146 [11]. Rezultat intrekomparacije izražen je kao odgovor dozimetra (R), gde je R odnos doze izmerene u laboratoriji koja učestvuje u intrekomparaciji (korigovane za osnovni nivo zračenja i tranzit dozu) i doze kojom je dozimetar ozračen u referentnoj laboratoriji. Rezultati su analizirani koristeći sledeći kriterijum:

$$\frac{1}{F} \left( 1 - \frac{2H_o}{H_o + H_c} \right) \leq R \leq F \left( 1 + \frac{H_o}{2H_o + H_c} \right) \quad (3)$$

gde je  $H_c$  vrednost doze isporučena dozimetrima (conventional true value, CTV), F faktor koji ima vrednost 1.5 a  $H_o$  najniži nivo detekcije dozimetrijskog sistema, čija je vrednost u ovoj interkomparaciji bila 0.085 mSv [5].

### 3. Rezultati

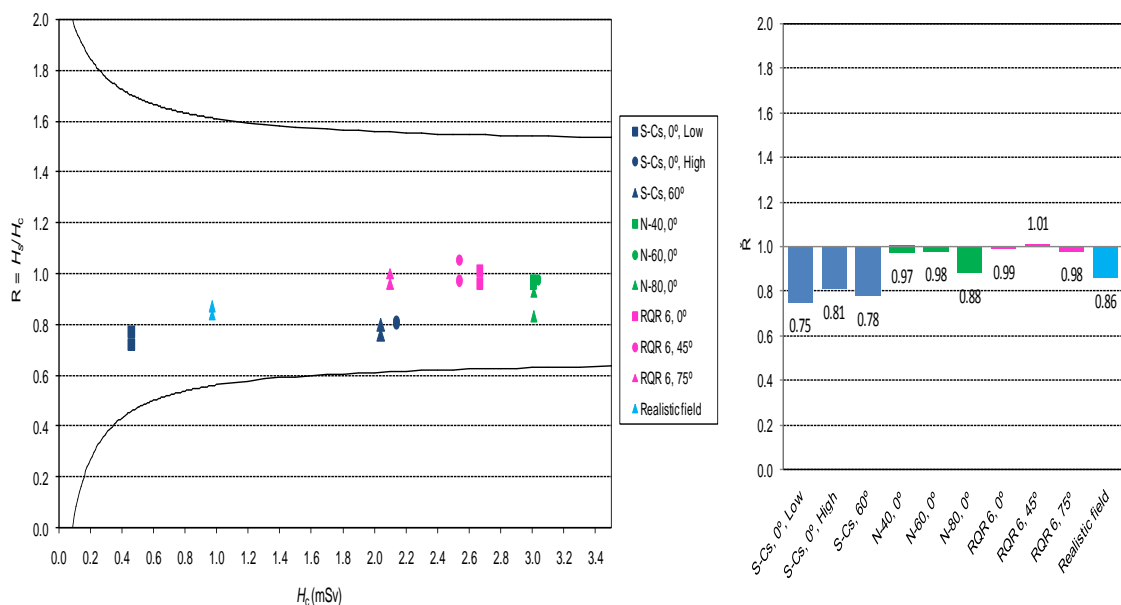
Rezultati interkomparacije ostvareni u Laboratoriji za zaštitu od zračenja Instituta Vinča su prikazani u Tabeli 1 i na Slici 2. Kao što je prikazano na Slici 2, rezultati intrekomparacije bili su unutar prihvatljivih vrednosti i u skladu sa zadatim



kriterijumima. Odstupanja se kreću od 1% do 25%, u skladu sa odgovorom koji se nalazi u intevalu od 0.75 do 1.01. Odstupanja su veća za konfiguracije snopova većih energija, što se može pripisati činjenici da je u postupku kalibracije dizimetara korišćen snop x-zračenja značajno nižih energija. Ovo ujedno ukazuje i na potrebu da dozimetri budu kalibrisani u kvalitetima snopa koji odgovaraju realnim uslovima korišćenja.

**Tabela 1. Standarni kavliteti snopa u kojima su dozimetri ozračeni, dodeljena doza, izmerena doza i rezultati interkomparacije ostvareni u Laboratoriji za zaštitu od zračenja Instituta Vinča. Rezultati su iskazani u dozimetrijskoj veličini  $H_p(3)$**

Kvalitet snopa	Oznaka dozimetra	CTV $H_p(3)_c$ (mSv)	Izmerene vrednosti		Odgovor (R)		Rezultati		
			$H_r$ (mSv)	$H_s$ (mSv)	$R = \frac{H_s}{H_p(3)_c}$	Ispunjenost ISO 14146 zahteva	$\bar{H}_s$ (mSv)	$\bar{R}$	CV (R) (%)
S-Cs, 0°, Low	XAK_1	0.46 ± 0.02	0.578	0.353	0.77	da	0.343	0.75	4.7
	XAK_2	0.46 ± 0.02	0.558	0.333	0.72	da			
S-Cs, 0°, High	XAK_3	2.14 ± 0.10	1.946	1.721	0.80	da	1.730	0.81	0.9
	XAK_4	2.14 ± 0.10	1.964	1.739	0.81	da			
S-Cs, 60°	XAK_5	2.04 ± 0.09	1.863	1.638	0.80	da	1.599	0.78	3.6
	XAK_6	2.04 ± 0.09	1.785	1.560	0.76	da			
N-40, 0°	XAK_7	3.01 ± 0.14	3.141	2.893	0.96	da	2.901	0.97	0.7
	XAK_8	3.01 ± 0.14	3.157	2.909	0.97	da			
N-60, 0°	XAK_9	3.04 ± 0.15	3.184	2.936	0.97	da	2.964	0.98	0.7
	XAK_10	3.04 ± 0.15	3.239	2.991	0.98	da			
N-80, 0°	XAK_11	3.01 ± 0.15	3.034	2.786	0.93	da	2.638	0.88	8.0
	XAK_12	3.01 ± 0.15	2.737	2.489	0.83	da			
RQR 6, 0°	XAK_13	2.67 ± 0.13	2.791	2.571	0.96	da	2.640	0.99	3.6
	XAK_14	2.67 ± 0.13	2.929	2.709	1.01	da			
RQR 6, 45°	XAK_17	2.54 ± 0.13	2.895	2.675	1.05	da	2.566	1.01	5.6
	XAK_18	2.54 ± 0.13	2.677	2.457	0.97	da			
RQR 6, 75°	XAK_15	2.10 ± 0.11	2.324	2.104	1.00	da	2.060	0.98	2.9
	XAK_16	2.10 ± 0.11	2.235	2.015	0.96	da			
Realistic	XAK_19	0.96 ± 0.04	1.066	0.840	0.87	da	0.825	0.86	2.5
	XAK_20	0.96 ± 0.04	1.036	0.810	0.84	da			



**Slika 2. Rezultati interkomparacije pasivnih dozimetara za očno sočivo**

#### 4. Zaključak

U radu su prikazani rezultati koje je ostvarila Laboratorija za zaštitu od zračenja Instituta Vinča u okviru prve intrekomparacije pasivnih dozimetara za očno sočivo. Rezultati su generalno zadovoljavajući, s obzirom da je za sve kvalitete i konfiguracije snopova izmerena doza bila u skladu sa zadatim kriterijumima. Imajući u vidu rastuću potrebu za rutinskim monitoringom doze za očno sočivo, ovakve intrekomparacije je potrebno organizirati u redovnim vremenskim intervalima.

#### 5. Literatura

- [1] ICRP. 2007. "The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection." Publication 103 ICRP 37: (2–4).
- [2] ICRP. 2012. "ICRP Statement on Tissue Reactions / Early and Late Effects of Radiation in Normal Tissues and Organs Threshold Doses for Tissue Reactions in a Radiation Protection Context." Publication 118 ICRP 41: (1/2).
- [3] Council Directive 2013/59/Euratom of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing Directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom. Official Journal L-13 of 17 January (2014).
- [4] Grimbergen, T. W. M., Figel, M., Romero, A. M., Stadtmann, H. and McWhan, A. F. EURADOS self-sustained programme of intercomparisons for individual monitoring services. *Radiat. Prot. Dosim.* 144(1–4) (2011) 266–274.
- [5] Clairand, M. Ginjaume, F. Vanhavere, E. Carinou, J. Daures, M. Denoziere, E. H. Silva, M. Roig, S. Principi and L. van rychehem, First EURADOS intercomparison exercise of eye lens dosimeters for medical applications, *Radiat. Prot. Dosim.* (2015) doi: 10.1093/rpd/ncv368
- [6] INTERNATIONAL ORGANIZATION FOR STANDARDIZATION, "X and

gamma reference radiation for calibrating dosimeters and dose rate meters and for determining their response as a function of photon energy”, Part 1: Radiation characteristics and production methods. International Standard ISO 4037-1. 1996. ISO, Geneva.

[7] International Electro Technical Commission (IEC). Medical diagnostic X-ray equipment—radiation conditions for use in the determination of characteristics. 61267 Ed. 2.0. 2005. IEC.

[8] Gualdrini, G. et al. A new cylindrical phantom for eye lens dosimetry development. *Radiat. Meas.* 46(11) (2011) 1231–1234.

[9] Vanhavere, F. et al. ORAMED: optimization of radiation protection of medical staff. EURADOS Report 2012-02, ISSN 2226-8057, ISBN:978-3-943701-01-2. Braunschweig (2012).

[10] Behrens, R. Air kerma to  $H_p(3)$  conversion coefficients for a new cylinder phantom for photon reference radiation qualities. *Radiat. Prot. Dosim.* 151(3) (2012) 450–455.

[11] International Organization for Standardization. Radiation protection—criteria and performance limits for the periodic evaluation of processors of personal dosimeters for X and gamma radiation. ISO 14146, 2000. ISO.

## RESULTS OF THE FIRST INTERCOMPARISON OF PASSIVE EYE LENS DOSIMETERS

**Jelica KALJEVIĆ<sup>1</sup>, Jelena STANKOVIĆ<sup>1,2</sup>, Miloš ŽIVANOVIĆ<sup>1</sup>, Đorđe LAZAREVIĆ<sup>1</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup>**

1) Vinca Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Serbia,

2) School of Electrical Engineering, University of Belgrade, Serbia

*jkaljevic@vinca.rs*

### ABSTRACT

The main objective of this work is to present results of Laboratory for Radiation Measurements of Vinca Institute of Nuclear Sciences, achieved under the first organized intercomparison of the passive eye lens dosimeters. The dosimeters were all composed of thermoluminescent detectors. The irradiations were carried out with several photon fields chosen to cover the energy and angle ranges encountered in medical workplace. Doses were reported in terms of  $H_p(3)$  using their routine protocol. The results provided by Laboratory for Radiation Measurements were compared with the reference delivered doses. Results were generally satisfactory, as 100% of the response was in accordance with the ISO 14146 standard requirements.

## КОНВЕРЗИОНИ КОЕФИЦИЈЕНТИ КЕРМЕ У ВАЗДУХУ У $H_p(3)$ ЗА ОДАБРАНЕ СТАНДАРДНЕ КВАЛИТЕТЕ СНОПА Х-ЗРАЧЕЊА

Зоран ЈОВАНОВИЋ<sup>1</sup>, Драгана КРСТИЋ<sup>1</sup>, Оливера ЦИРАЈ-БЈЕЛАЦ<sup>2</sup>, и Драгослав НИКЕЗИЋ<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Универзитет у Крагујевцу, Природноматематички факултет, Крагујевац, Србија, z.jovanovic@kg.ac.rs

<sup>2</sup> Универзитет у Београду, Институт за нуклеарне науке Винча, Винча, Србија, ociraj@vinca.rs

### САДРЖАЈ

Међународна комисија за заштиту од зрачења (ICRP) је 2012. смањила границу годишње еквивалентне дозе за очно сочиво са 150 mSv на 20 mSv. Оперативни величина  $H_p(3)$  дефинисана је за дозиметрију очног сочива, док је цилиндрични фантом који апроксимира облик људске главе предложен за еталонирање дозиметара у  $H_p(3)$ . Циљ рада је да се одреде конверзиони фактори за претварање керме у ваздуху у  $H_p(3)$ , ( $H_p(3)/K_a$ ) који би могли да допринесу побољшању процене дозе за очно сочиво и свеукупног квалитета заштите. У овом раду дати су коефицијенти  $H_p(3)/K_a$  (Sv/Gy), израчунати Монте Карло методом за стандардни квалитет снопа ISO 4037 N серије, за различите углове и погодни цилиндрични фантом. За углове од  $0^\circ$  до  $90^\circ$ , конверзиони коефицијенти  $H_p(3,0^\circ)/K_a$  су у опсегу 0.44-0.88 за N-40, 0.72-1.06 за N-60, 0.91-1.63 за N-80, 1.08-1.52 за N-100, 1.22- 1.62 за N-120 и 0.14-1.56 за N-150 квалитет снопа. Конверзиони коефицијенти  $H_p(3)/K_a$  у овом раду односе се на стандардне квалитета снопова који се рутински користе у лабораторијама за еталонирање и имају практични значај у процесу еталонирања дозиметара за очно сочиво који се користе за процену дозе за професионално изложена лица.

### 1. Увод

Бројне студије су показале да је очно сочиво осетљивије на јонизујуће зрачење него што се раније мислило; праг за радијационе повреде ока је знатно мањи од 2 Gy и латентни период за развој катаракте је обрнуто сразмеран примљеној дози [1-6]. Сходно томе, Међународна комисија за заштиту од зрачења (ICRP) предложила је смањење граничне дозе за очно сочиво са 150 mSv на 20 mSv на годишњем нивоу [7]. Ово 7,5 пута смањење границе дозе је привукла велику пажњу стручне и научне јавности и дозиметрија очног сочива је постала веома интензивна област истраживања, у смислу развоја и примене нових дозиметара за очно сочиво, развоја метода за еталонирање дозиметара, као и развоја практичних метода за мониторинг очног сочива у разним областима где долази до примене и изложености различитим врстама јонизујућим зрачењима [8-15]. Операционе величине за област индивидуалног мониторинга изложености спољним изворима су дефинисани од стране Међународне комисије за радијационе јединице и мере (ICRU). Величина  $H_p(3)$  је препоручена као операциона величина за мониторинг очног сочива. То је еквивалентна доза у ICRU сфери (меко ткиво) на дубини од 3 mm, испод одређеног тачке на људском телу [16-17]. Доза у очном сочиву није директно мерљива величина. Вредност дозе за очно сочиво може бити процењена на основу мерења величине  $H_p(3)$ , на одређеној локацији на глави појединца у

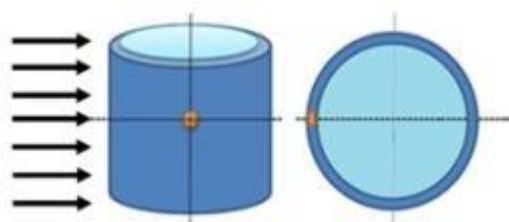
близини ока. Иако позната у дозиметријској теорији, ова величина није рутински коришћена, а нису постојали одговарајући дозиметри. Међутим, у светлу најновијих научних сазнања, прецизна дозиметрија представља важан фактор за изучавање корелације ефеката јонизујућих зрачења са дозом, као и за верификацију усклађености са регулаторним границама дозе.

Потреба за мониторингом дозе за очно сочиво интензивирала је истраживања у области развоја практичних метода за еталонирање дозиметара, укључујући и одређивање коефицијената за конверзију керме у ваздуху ( $Ka$ ) у дозиметријску величину  $Hp(3)$  за електроне, неутроне, а посебно за фотоне, који нису били доступни раније [13]. Истраживања у оквиру пројекта *ORAMED* (Optimization of radiation protection of medical staff) значајно су допринела обезбеђивању конверзионих коефицијената  $Hp(3)/Ka$  за моноенергетске фотоне, електроне и неутроне [8,9,14]. Поред тога, предложени су и нови фантоми за потребе симулације радијационих процеса у глави одраслог појединца, а један од њих је у облику цилиндра (пречника 20 cm), који се састоји од *ICRU* ткива које садржи 4 хемијска елемента и који служи за израчунавање коефицијената  $Hp(3)/Ka$  [13,15]. Цилиндрични облик фантома је ближи елиптичном облику главе и реалнији у погледу положаја ока и очног сочива у глави, што смањује разлику између коефицијената конверзије израчунатих у фантому који има облик квадра димензија 30 cm x 30 cm x 15 cm [13, 14]. Циљ рада је био да се обезбеди скуп конверзионих коефицијената  $Hp(3)/Ka$  за референтне вредности квалитета снопа дефинисаним у стандарду *ISO 4037* Међународне организације за стандардизацију (*ISO*) [19], који се обично користе у лабораторијама за еталонирање, а која би могла да допринесе побољшању свеукупног квалитета процене доза очног сочива на радном месту укључујући и излагање X-зрачењу.

## 2. Материјал и методе

За потребе израчунавања конверзионих коефицијената  $Hp(3)/Ka$  (Sv/Gy) коришћена је Монте Карло симулација транспорта честица, претпостављајући стандардни квалитет снопа X-зрачења и одговарајући цилиндрични фантом. Прорачуни су извршени помоћу *MCNP5/X* софтвера [18], симулирајући транспорт фотона од извора до запремине од интереса у цилиндричном фантому, као што је приказано на Слици 1. Димензије цилиндра су 20 cm у пречнику и 20 cm висине, са дебелином зида 0.5 cm, са основном структуром материјала од полиметил-метакрилат (*PMMA*), а унутрашња запремина је испуњена водом. Цилиндрични фантом је изабран – најбоља апроксимација људске главе, а у вези угаоне зависности на дубини од 3 mm, на којој је величина  $Hp(3)$  дефинисана, имајући у виду процес интеркције нискоенергетских фотона са ткиву еквивалнтним метаријалом [15].

Извор је моделиран квадратним обликом, чији је снап паралелан и димензија 20x20 cm<sup>2</sup>. Управљено и проширено поље фотона обезбеђује озрачивање фантома у геометрији напред-назад *AP* (*anterior-posterior AP*) на удаљености од 1 m од фантома. Прорачун транспорта фотона је извршен је у опсегу углова од 0° до 90°.



Слика 1. Цилиндрични фантом

За прорачун КЕРМЕ је коришћен је F6 излаз са најнижом енергијом од 1 keV . Укупан број симулација износио је  $10^8$ , а у циљу минимизације статистичке грешке симулације. Квалитет снопа који је коришћен за израчунавање конверзионих коефицијената  $H_p(3)/K_a$  представља стандардну серију за референтно фотонско зрачење дефинисано од стране Међународне организације за стандардизацију (ISO), објављених у публикацији ISO 4037 [19], као што је приказано у Табели 1.

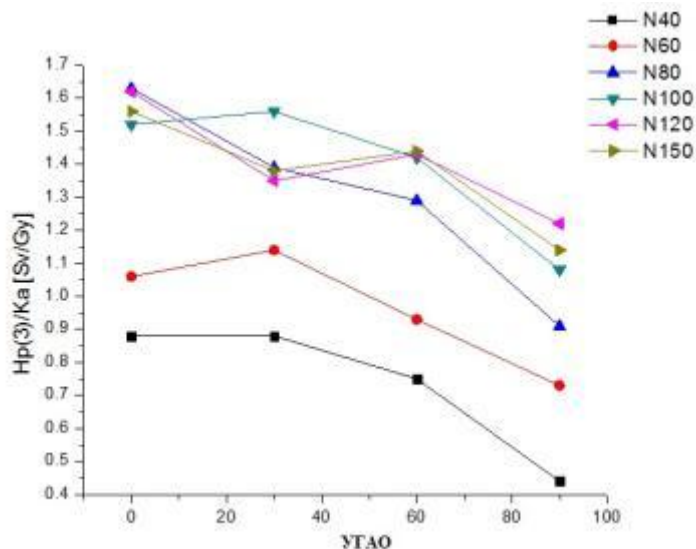
Прорачун конверзионих коефицијената  $H_p(3)/K_a$ , захтева независан прорачун  $K_a$  и  $H_p(3)$ . MCNP F6 излаз је коришћен за израчунавање КЕРМЕ у ваздуху на месту фантома. Имајући у виду да коефицијент квалитета зрачења за фотоне има јединичну вредност,  $H_p(3)$  је једнак апсорбованој дози у наведеним условима.

### 3. Резултати и дискусија

Конверциони коефицијенти  $H_p(3)/K_a$  за различите углове и различите квалитете снопа приказани су у Табели 1 и на Слици 2.

Табела 1. Конверциони коефицијенти  $H_p(3)/K_a$  за различите углове и различите квалитете снопа

Угао	$H_p(3)/K_a$ [Sv/Gy]					
	N 40	N 60	N 80	N 100	N 120	N 150
0°	0.88	1.06	1.63	1.52	1.62	1.56
30°	0.88	1.14	1.39	1.56	1.35	1.38
60°	0.75	0.93	1.29	1.42	1.43	1.44
90°	0.44	0.73	0.91	1.08	1.22	1.14



Слика 2. Конверзионни коефицијенти  $H_p(3)/K_a$  за различите квалитете снопа за различите углове

За калибрацију дозиметара који се користе у дијагностичкој радиологији и интервентним процедурама, веома је важно да се изабере одговарајући квалитет снопа за еталонирање, што је ближе могуће квалитетима снопа који се користе у реалним клиничким условима. Оваквом захтеву одговара коришћење стандардних квалитета снопова X-зрачења који се користе за калибрацију дозиметара у области заштите од зрачења, посебно N и W серије [15, 19]. Одређивање конверзионих коефицијената за ове квалитета снопова је од огромног практичног значаја, у односу на до сада доступне конверзине коефицијенте за моноенергетско фотонско зрачење [9]. Услови који одговарају коришћењу дозиметара у клиничкој пракси обухватају низ различитих режима аквизиције и различите ангулације рендгенске цеви, па је познавање конверзионих коефицијената за различите упадне углове од великог практичног значаја.

#### 4. Закључак

Фамилија конверзионих коефицијената ( $H_p(3)/K_a$ ) за цилиндрични фантом и стандардне квалитете снопова *ISO 4037N* серије је дата у овом раду. Конверзионни коефицијенти су намењени за калибрацију дозиметара за очно сочиво, а погодни за су за примену приликом еталонирања дозиметара и одређивање дозе за очно сочиво при професионалом излагања у медицини и индустрији.

**Захвалница:** Овај рад је подржан од стране Министарства просвете и науке Републике Србије [број 171021 и 43011].

## 5. Литература

- [1] Ainsbury, E., Bouffler, S., Dörr, W., Graw, J., Muirhead, J., Edwards, A., Cooper, C. Radiation Cataractogenesis: A Review of Recent Studies. *Radiat. Res.* 172 (2009) 1-9.
- [2] Shore, R.E., Neriishi, K., Nakashima, E. Epidemiological Studies of Cataract Risk at Low to Moderate radiation Doses: (Not) Seeing is Believing. *Radiat. Res.* 174 (2010) 889-894.
- [3] Ciraj-Bjelac, O, et al. Radiation-induced eye lens changes and risk for cataract in interventional cardiology. *Cardiology.* 123(3) (2012) 168-71.
- [4] Vano, E, et al Radiation cataract risk in interventional cardiology personnel. *Radiat Res.* 174(4) (2010) 490-495.
- [5] Ciraj-Bjelac, O., et al. Risk for radiation induced cataract for staff in interventional cardiology: Is there reason for concern? *Catheter. Cardiovasc. Interv.* 76 (2010) 826-834.
- [6] Jacob, S, et al. Interventional cardiologists and risk of radiation-induced cataract Results of a French multicenter observational study. *Int. J. Cardiol.* (2012) doi:10.1016/j.ijcard.2012.04.124
- [7] International Commission on Radiological Protection. ICRP Statement on Tissue Reactions/Early and Late Effects of Radiation in Normal Tissues and Organs – Threshold Doses for Tissue Reactions in a Radiation Protection Context. ICRP Publication 118. Ann. ICRP 41(1/2), 2012
- [8] Gualdrini, G, et al "Air kerma to Hp(3) conversion coefficients for photons from 10 keV to 10 MeV, calculated in a cylindrical phantom." *Radiat. Prot Dosim.* 154(4) (2013) 517-21.
- [9] Behrens, R. Air kerma to Hp(3) conversion coefficients for a new cylinder phantom for photon reference radiation qualities. *Radiat. Prot. Dosim.* 151(3) (2012) 450-455.
- [10] Donadille, L, et al. Staff eye lens and extremity exposure in interventional cardiology: Results of the ORAMED project. *Radiat. Meas.* 46 (2011) 1203-1209.
- [11] L. Struelens, E. Carinou, I. Clairand, L. Donadille, M. Ginjaume, C. Koukorava, S. Krim, H. Mol, M. Sans-Merce, F. Vanhavere. Use of active personal dosimeters in interventional radiology and cardiology: Tests in hospitals – ORAMED project. *Radiat. Meas.* 46 (11) (2011) 1258-1261.
- [12] I. Clairand, J.-M. Bordy, E. Carinou, et al. Use of active personal dosimeters in interventional radiology and cardiology: Tests in laboratory conditions and recommendations - ORAMED project. *Radiat. Meas.* 46 (11) (2011) 1252-1257.
- [13] J.M. Bordy, J. Daures, M. Denozière et al. Proposals for the type tests criteria and calibration conditions of passive eye lens dosimeters to be used in interventional cardiology and radiology workplaces. *Radiat. Meas.* 46 (11) (2011) 1235-1238.
- [14] Daures J, Gouriou J, Bordy JM. Monte Carlo determination of the conversion coefficients Hp(3)/Ka in a right cylinder phantom with 'PENELOPE' code. Comparison with 'MCNP' simulations. *Radiat. Prot. Dosim.* 144(1-4) (2011) 37-42.
- [15] Bordy JM, Gualdrini G, Daures J, Mariotti F. Principles for the design and calibration of radiation protection dosimeters for operational and protection quantities for eye lens dosimetry. *Radiat. Prot. Dosim.* 144(1-4) (2011) 257-61.
- [16] International Commission on Radiological Protection. Conversion coefficients for use in radiological protection against external radiation. ICRP Publication 74. 1998. Pergamon Press.



- [17] International Commission on Radiation Units and Measurements. Conversion coefficients for use in radiological protection against external radiation. ICRU Report 57. 1998. ICRU.
- [18] X-5 Monte Carlo Team (2003) MCNP—a General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 Vol. I: Overview and Theory. Los Alamos, NM: Los Alamos National Laboratory; LA- UR- 03- 1987
- [19] International Organization for Standardization, 1996. ISO 4037-3, X and gamma referenceradiations for calibrating dosimeters and dose rate meters and for determining their response as a function of photon energy, Part 3: Calibration of area and personal dosimeters and the measurement of their response as a function of energy and angle of incidence. ISO, Geneva.

### **AIR KERMA TO Hp(3) CONVERSION COEFFICIENTS FOR EXPOSURE OF THE HUMAN EYE LENS TO THE SELECTED STANDARD X-RAY BEAM QUALITIES**

**Zoran JOVANOVIĆ<sup>1</sup>, Dragana KRSTIĆ<sup>1</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>2</sup>  
and Dragoslav NIKEZIC<sup>1</sup>**

<sup>1</sup> *University of Kragujevac, Faculty of Science, Kragujevac, Serbia*  
*z.jovanovic@ kg.ac.rs*

<sup>2</sup> *Vinca Institute of Nuclear Science, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*  
*ociraj@ vinca.rs*

#### **ABSTRACT**

The recent statement on tissue reactions issued by the International Commission on Radiological Protection recommends a very significant reduction in the equivalent dose annual limit for the eye lens from 150 to 20 mSv/ y. This has stimulated a lot of interest in eye lens dosimetry in radiation protection community. The aim of the presented work was to provide a set of conversion coefficients that could contribute to improving the overall quality of eye lens dose assessment. The work investigated the air kerma to Hp(3) conversion coefficients, Hp(3)/Ka (in Sv/Gy), based on Monte Carlo simulations for a standard beam qualities, different angulations and suitable cylindrical phantom. For incident angles from 0° to 90°, the conversion coefficients Hp(3,0°)/Ka were in the range 0.44-0.88 for N-40, 0.72-1.06 for N-60, 0.91-1.63 for N-80, 1.08-1.52 for N-100, 1.22- 1.62 for N-120 and 0.14-1.56 for N-150 beam quality. Conversion coefficients Hp(3)/Ka in this paper refer to the standard beam qualities that are routinely used in laboratories for calibration and they have practical significance in the process of calibrating the dosimeters for the lens of the eye which they are use for assessment of doses for occupationally exposed persons.

## DOZNI PROFILI REFERENTNIH SNOPOVA X ZRAČENJA

**Sandra ČEKLIĆ<sup>1,2</sup>, Miloš ŽIVANOVIĆ<sup>1,3</sup>, Danijela ARANĐIĆ<sup>1,4</sup>, Predrag BOŽOVIĆ<sup>1,4</sup>, Jelena STANKOVIĆ<sup>1,4</sup>, Đorđe LAZAREVIĆ<sup>1,4</sup>**

1) Institut za nuklearne nauke Vinča, Univerzitet u Beogradu, Srbija

2) Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Srbija

3) Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu, Srbija

4) Elektrotehnički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Srbija

### SADRŽAJ

Karakterizacija referentnih polja predstavlja značajan element obezbeđenja povjerenja u kvalitet dozimetara. U ovom radu prikazani su rezultati ispitivanja doznih profila referentnih snopova X zračenja. Mjerenja su vršena u referentnoj ravni polja, duž horizontalne i vertikalne ose, koja je normalna na upadni snop X zračenja. Ispitivanja su vršena jonizacionom komorom dozimetrijske veličine kerma u vazduhu u tri kvaliteta snopova koji se koriste u dijagnostičkoj radiologiji. Rezultati pokazuju da vrijednost kerme u vazduhu rasejanog zračenja van direktnog snopa iznosi 1% vrijednosti kerme u centru snopa čime je ispunjen uslov propisan standardom. Mjerenja pokazuju da je 80-100% maksimalne doze nalazi u 70% površine radijacionog polja u referentnoj ravni.

### 1.Uvod

Porastom broja rendgen uređaja i njihovim ubrzanim razvojem došlo je do povećanja potrebe za dozimetrijskim mjerenjima u dijagnostičkoj i interventnoj radiologiji [1]. Iz tog razloga je postalo važno obezbediti sledljivost mjerenja u ovim oblastima i zadovoljavajuću dozimetrijsku tačnost. Međunarodna agencija za atomsku energiju (IAEA) u saradnji sa Svjetskom zdravstvenom organizacijom (WHO) obezbeđuje sledljivost mjerenja kroz mrežu Sekundarnih standardnih dozimetrijskih laboratorija (SSDL). Kako bi bila sprovedena adekvatna kontrola kvaliteta u dijagnostičkoj radiologiji neophodna je ispravna kalibracija dozimetara koji se koriste u te svrhe [2]. Bitan aspekt etaloniranja dozimetara jesu karakteristike referentnih polja kao i metode pomoću kojih metrološka laboratorija može da ostvari ova polja. Referentni snopovi X zračenja se opisuju parametrima kao što su: debljina poluapsorpcije (HVL), napon rendgenske cijevi i koeficijent homogenosti [3]. Takođe, kako bi pozicioniranje dozimetra koji se etalonira ili ispituje bilo adekvatno neophodno je poznavati homogenost radijacionog izlaza u referentnoj ravni poznato kao „field flatness”. Na homogenost polja utiču spektar X zračenja, konačne dimenzije fokusa, starost anode kao i Hilov (Heel) efekat uslijed kojeg dolazi do samoapsorpcije generisanog X zračenja unutar anode. Takođe, veliki uticaj imaju rastojanje dozimetra od fokusa rendgen cijevi i filtracija snopa [4]. Homogenost polja se može ispitati pomoću radiografskog filma ili pomoću odgovarajućeg detektora ukoliko je neophodno preciznije mjerenje. Ispitivanje homogenosti polja je do sada bio predmet istraživanja, posebno radioterapijskih snopova, što je važan aspekt prilikom planiranja radioterapije [5,6]. Cilj ovog rada jeste ispitivanje homogenosti radijacionog izlaza u referentnoj ravni polja X zračenja za tri različita kvaliteta snopa koji se koriste u dijagnostičkoj radiologiji.

## **2.Materijali i metode**

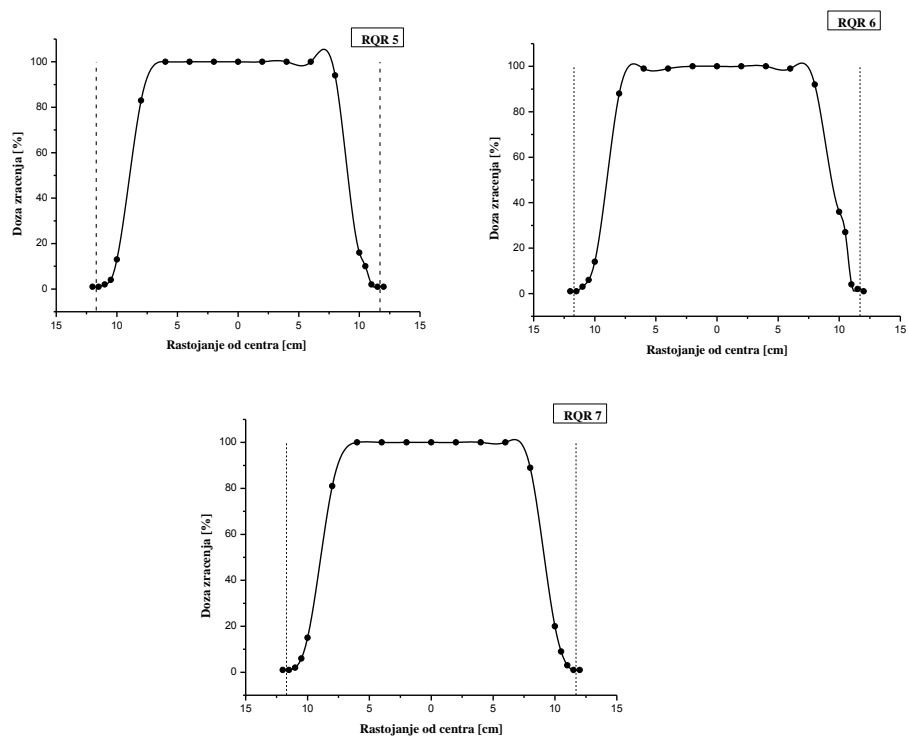
Mjerenja su izvršena u Laboratoriji za etaloniranje, Laboratorije za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta Vinča, koja pripada grupi Sekundarnih Standardnih Dozimetrijskih Laboratoriji (SSDL). Kao izvor X-zračenja korišćen je rendgen aparat Phillips MG320, napona 30-320kV, kojim su generisani dijagnostički kvaliteta snopova RQR5, RQR6 i RQR 7 koji su uspostavljeni u skladu sa standardom ISO 4037-1[3]. Ispitivanje je vršeno na referentnom rastojanju od 100 cm od fokusa rendgen cijevi gdje je poluprečnik kružnog radijacionog polja iznosio 11,7 cm. Mjerena je kerma u vazduhu jonizacionom komorom Exradin Magna A650 koja je sekundarni etalon za dozimetre koji se koriste u dijagnostičkoj radiologiji i ima sledljivost do primarnog standarda BIPM. Za korekciju fluktuacije izlazne veličine korišćena je monitorska komora smještena između dvije aperture. Mjerenja su vršena u geometrijskom centru radijacionog polja, a zatim je komora pomjerana duž horizontalne (x) i vertikalne (y) ose sa pomacima od 2 cm duž obje ose do 10 cm od centra snopa, odnosno sa pomacima od 5 mm u opsegu od 10cm do 12 cm od centra snopa tj. blizu ivice polja.

## **3.Rezultati**

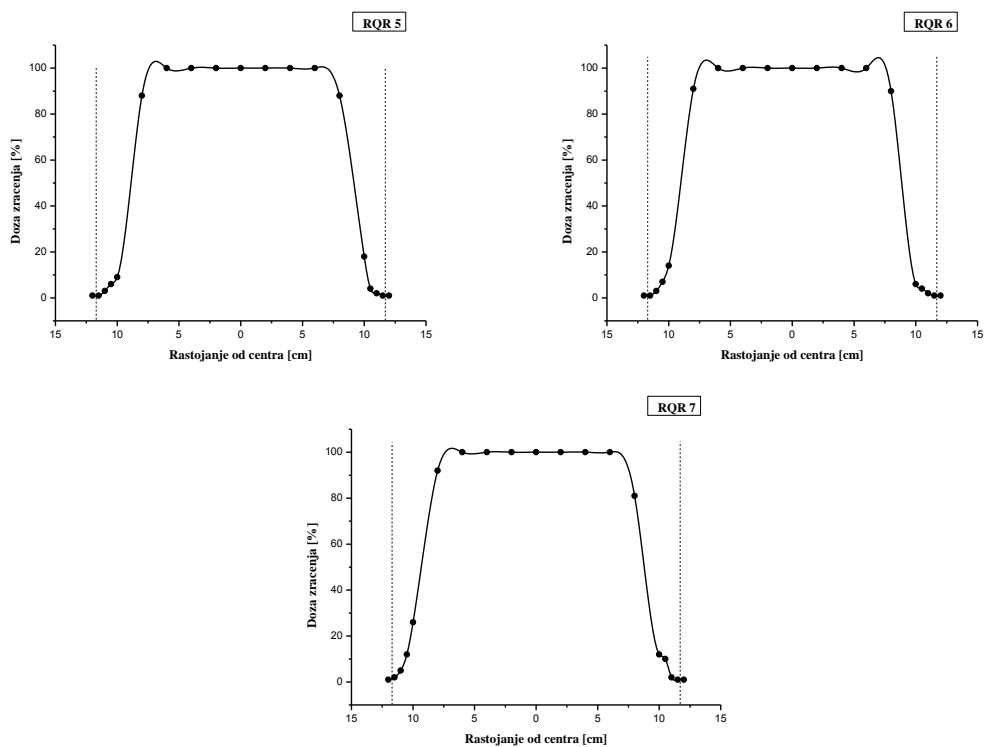
Na slici 1 prikazani su dozni profili dijagnostičkih kvaliteta snopova RQR5, RQR6 i RQR 7 duž horizontalne ose. Vertikalna isprekidana linija na slikama predstavlja granicu radijacionog polja koja je izračunata na osnovu veličine kolimatora koji je postavljen na odgovarajućem rastojanju. Utvrđeno je da na tim ivicama polja kod svih ispitivanih kvaliteta doza zračenja iznosi 1% maksimalne doze. Takođe, kod sva tri kvaliteta snopa doza u opsegu od 80-100% maksimalne doze pokriva 70% površine radijacionog polja koje smo izračunali na osnovu poznatog poluprečnika. Poluprečnik radijacionog polja u kojem se nalazi 80-100% maksimalne doze iznosi 8,3 cm kod sva tri kvaliteta. S obzirom da je polje simetrično približne rezultate smo dobili mjereći homogenost polja duž vertikalne ose što je prikazano na slici 2. Kod sva tri kvaliteta 80 -100% maksimalne doze se nalazi na udaljenost 8,3 cm od centra po vertikalnoj osi.

## **4.Zaključak**

Kako bi kalibracija dozimetara bila adekvatna veoma je važno da budu ispunjeni svi uslovi propisani standardom. Rezultati pokazuju da vrijednost kerme u vazduhu van direktnog snopa iznosi manje od 5% čime je propisan uslov propisan standardom ISO 4037-1 [3]. Takođe je ispunjen uslov da kerma u vazduhu u referentnoj tački ne varira više od 5% duž cijele osjetljive zapremine detektora. Procjenjena mjerna nesigurnost mjerenja iznosi 1,6% sa faktorom pokrivanja  $k=2$  prilikom čega najveću grešku u rezultat unosi pozicioniranje jonizacione komore. Preciznije rezultati se mogu postići mjerenjem jonizacionom komorom manje zapremine što može biti predmet daljeg ispitivanja.



**Slika 1. Dozni profili ispitivanih snopova duž horizontalne ose**



**Slika 2. Dozni profili ispitivanih snopova duž vertikalne ose**

## 5.Literatura

- [1 ] O. Ciraj-Bjelac, S. Marković, D. Košutić, Patient dosimetry in diagnostic radiology, *Nucl. Technol. Radiat. Prot.* 1 (2003) 36-41
- [2] Technical Report Series No. 457, *Dosimetry in diagnostic radiology: An international Code of Practice*, 2007. IAEA
- [3] International standard, X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and doserate meters and for determing their response as a function of photon energy , ISO 4037-1, 1996.
- [4] John F. Kennedy, Glyn O. Philips, Peter A. Wiliams, *Sterilisation of tissues using ionisation radiation*, 2000. ISBN:1855738384
- [5] Paulo Mârcio C. Oliveira, Peterson L. Squair, Maria do S. Nogueira, Teógenes A. da Silva, Uniformity and filed size of filtered X-ray beams, International Nuclear Atlantic Conference, 2007. ISBN: 978-85-99141-02-1
- [6] Fayez H.H.Al-Ghorabie, A theoretical design of a flattering filter to improve field uniformity of a superficial therapeutic x-ray beam, *Journal of King Abdulaziz University*, Vol 13 (2001) 85-98.

## DOSE PROFILES OF REFERENCE X RAY BEAMS

**Sandra ČEKLIĆ<sup>1,2</sup>, Miloš ŽIVANOVIĆ<sup>1,3</sup>, Danijela ARANDIĆ<sup>1,4</sup>, Predrag BOŽOVIĆ<sup>1,4</sup>, Jelena STANKOVIĆ<sup>1,4</sup>, Đorđe LAZAREVIĆ<sup>1,4</sup>**

1) *Vinca institute of nuclear sciences, University of Belgrade, Serbia*

2) *Faculty of physics, University of Belgrade, Serbia*

3) *Faculty of physical chemistry, University of Belgrade, Serbia*

4) *School of Electrical Engineering, University of Belgrade, Serbia*

## ABSTRACT

In this paper the dose profile of reference X radiation beams, in terms of filed flatness, were investigated. The measurements were taken in the reference level fields, along the horizontal and vertical axis, which is perpendicular to the incident X radiation beam. We measured kerma in air using the ionization chamber for tree radiation qualities used in diagnostic radiology. The results show that the value of kerma in the air scattered radiation out of the direct beam is 1% of the kerma in the center of the beam which fulfills the requirement prescribed by standard. Measurements show that the 80-100% of the maximum dose is in the 70% of the area of the radiation field in the reference plane.

# ISPITIVANJE KARAKTERISTIKA RENDGEN-APARATA KOJI SE KORISTE U VETERINARSKOJ RADIOLOGIJI U SRBIJI

**Zoran MIRKOV**

*Institut za medicinu rada Srbije "Dr Dragomir Karajović", Beograd, Srbija,  
zoran.mirkov@institutkarajovic.rs*

## SADRŽAJ

*Prilikom redovne godišnje dozimetrijske kontrole rendgen-aparata koji se koriste u veterini, ispitana je ponovljivost i tačnost napona rendgenske cevi, ponovljivost ulazne kerme u vazduhu, debljina poluslabljenja i ukupna filtracija na 12 visokofrekventnih pokretnih rendgen-aparata. Dobijeni rezultati ispitivanja bili su u okviru zakonskih granica.*

### 1. Uvod

Prema važećoj zakonskoj regulativi, merenja radi kontrole sistema upravljanja kvalitetom mera zaštite od jonizujućih zračenja rendgen-aparata u veterinarskoj primeni nisu obavezna, već se samo potražuju izveštaji o dozimetrijskim merenjima radi dobijanja licence i rešenja za obavljanje radijacione delatnosti [1, 2]. Cilj ovog rada je da se utvrdi da li karakteristike pokretnih, visokofrekventnih rendgen-aparata koji se koriste u veterinarskoj radiologiji u Srbiji, odstupaju od zakonski propisanih granica koje se primenjuju na rendgen-aparate za klasična snimanja u medicini.

### 2. Metode

Osnovna namena ispitivanih rendgen-aparata je radiografsko snimanje u veterini, na terenu, ali se u Srbiji zbog zakonske regulative [1, 2] moraju koristiti kao fiksni uređaji u posebno pripremljenim prostorijama. Pomenuti uređaji se koriste najvećim delom za snimanje manjih životinja. Starost većine rendgen aparata je ispod 7 godina, a za one za koje se ne zna, pretpostavlja se da nisu stariji od 20 godina. Učestanost snimanja na ovim aparatima je u proseku 10 puta mesečno, što je utvrđeno na osnovu anketiranja zaposlenih tokom redovnih dozimetrijskih kontrola.

Ispitane su karakteristike 12 visokofrekventnih rendgen-aparata koji se koriste u veterini, datih u tabeli 1.

Za potrebe ovog istraživanja/studije ispitani su sledeći parametri:

- ponovljivost (pri naponu od 60 kV, koji se najčešće koristi pri snimanju u praksi) i tačnost napona rendgenske cevi (za vrednosti 50, 60, 70 i 80 kV);
- ponovljivost radijacionog izlaza rendgenske cevi (60 kVp, 5 mAs)
- debljina poluslabljenja i totalne filtracije rendgenske cevi (80 kVp, 10 mAs).

Prilikom merenja, rastojanje fokus-detektor iznosilo je 100 cm. Sva merenja su ponovljena po 5 puta a rezultati su statistički obrađeni.

Merenja su vršena instrumentom: Multimetar Barakuda sa detektorom MPD (sb 12010053) (RTI Electronics AB, Sweden), koji je prethodno propisno etaloniran.

### 3. Rezultati i diskusija

Rezultati merenja karakteristika rendgen-aparata prikazani su u tabelama 2, 3, i 4. Ponovljivost (za vrednosti 60 kV) je veoma zadovoljavajuća i ne prelazi 2%. Vrednosti merenja ponovljivosti radijacionog izlaza i vrednosti merenja debljine poluslabljenja i

totalne filtracije rendgenske cevi, kao i ostali rezultati merenja se nalaze u dozvoljenim granicama odstupanja rendgen-aparata za snimanje [2].

**Tabela 1. Osnovne karakteristike ispitivanih visokofrekventnih rendgen-aparata**

Tip rendgena	Maks. napon (kVp)	Proizvod jačine struje i vremena (mAs)	Broj uređaja
Gierth HF 80 (Nemačka)	<b>80</b>	<b>30</b>	<b>3</b>
Gierth HFX 90 (Nemačka)	<b>90</b>	<b>40</b>	<b>1</b>
Gierth HF 200 (Nemačka)	<b>100</b>	<b>80</b>	<b>1</b>
ATOMSCOPE 100PR (Japan)	<b>100</b>	<b>80</b>	<b>3</b>
PORTA 100 HF (Japan)	<b>100</b>	<b>30</b>	<b>2</b>
ORANGE 1060HF (Koreja)	<b>100</b>	<b>60</b>	<b>2</b>



**Slika 1. Prikaz postavke rendgen uređaja ORANGE 1060HF**

**Tabela 2. Izmerene vrednosti napona za zadatih 60 kV.**

rastojanje fokus – detektor (cm)	100
U(kV)	60
proizvod jačine struje i vremena (mAs)	5
Uređaj	Sr. Vred. $\pm$ Std. Dev (min - max)
Gierth HF 80 (Nemačka)	60,22 $\pm$ 1,19 (58,86 – 61,70)
Gierth HFX 90 (Nemačka)	63 $\pm$ 0 (63 – 63)
Gierth HF 200 (Nemačka)	61,51 $\pm$ 0,17 (61,29 – 61,74)
ATOMSCOPE 100PR (Japan)	61,68 $\pm$ 0,97 (60,55 – 63,35)
PORTA 100 HF (Japan)	59,93 $\pm$ 0,32 (59,56 – 60,25)
ORANGE 1060HF (Koreja)	62,31 $\pm$ 0,77 (61,55 – 63,05)

**Tabela 3. Vrednosti merenja ponovljivost radijacionog izlaza K/It ( $\mu\text{Gy/mAs}$ ).**

rastojanje fokus – detektor (cm)	100
proizvod jačine struje i vremena (mAs)	5
napon rendgenske cevi (kV)	60
Uređaj	Sr. Vred. $\pm$ Std. Dev (min - max)
Gierth HF 80 (Nemačka)	59,22 $\pm$ 2,76 (55,60 – 62,72)
Gierth HFX 90 (Nemačka)	52,06 $\pm$ 0,94 (50,38 – 52,50)
Gierth HF 200 (Nemačka)	61,19 $\pm$ 0,09 (61,05 – 61,30)
ATOMSCOPE 100PR (Japan)	59,42 $\pm$ 0,44 (58,90 – 60,00)
PORTA 100 HF (Japan)	59,16 $\pm$ 0,41 (58,75 – 59,55)
ORANGE 1060HF (Koreja)	56,38 $\pm$ 0,11 (56,22 – 56,50)

**Tabela 4. Vrednosti merenja debljine poluslabljenja i totalne filtracije rendgenske cevi.**

rastojanje fokus – detektor (cm)		100
proizvod jačine struje i vremena (mAs)		10
napon rendgenske cevi (kV)		80
Uređaj	Veličina	Sr. vred. $\pm$ Std. dev (min – max)
Gierth HF 80 (Nemačka)	HVL (mm Al)	2,8 $\pm$ 0,3 (2,5 – 3,2)
	Ukupna filtracija (mm Al)	3,1 $\pm$ 0,2 (2,8 – 3,5)
Gierth HFX 90 (Nemačka)	HVL (mm Al)	2,6 $\pm$ 0,0 (2,6 – 2,6)
	Ukupna filtracija (mm Al)	2,9 $\pm$ 0,0 (2,9 – 2,9)
Gierth HF 200 (Nemačka)	HVL (mm Al)	2,7 $\pm$ 0,0 (2,7 – 2,7)
	Ukupna filtracija (mm Al)	2,9 $\pm$ 0,0 (2,9 – )
ATOMSCOPE 100PR (Japan)	HVL (mm Al)	2,9 $\pm$ 0,1 (2,8 – 2,9)
	Ukupna filtracija (mm Al)	2,9 $\pm$ 0,3 (2,9 – 3,1)
PORTA 100 HF (Japan)	HVL (mm Al)	2,6 $\pm$ 0,0 (2,6 – 2,6)
	Ukupna filtracija (mm Al)	2,9 $\pm$ 0,0 (2,9 – 2,9)
ORANGE 1060HF (Koreja)	HVL (mm Al)	2,6 $\pm$ 0,0 (2,6 – 2,6)
	Ukupna filtracija (mm Al)	2,9 $\pm$ 0,0 (2,9 – 2,9)

Prilikom potrage za literaturom koja se bavi ispitivanjem rendgen-aparata koji se koriste u veterini, nije pronađen ni jedan članak. Rezultati koji su prikazani u tabelama 2, 3 i 4 mogu se porediti sa ranije publikovanim podacima iz ove oblasti [3, 4, 5 i 6]. Ova poređenja treba uzeti sa rezervom, jer je uzorak ispitivanih rendgen-aparata znatno manji od onih prikazanih u publikacijama [3, 4, 5 i 6].

Odstupanje izmerenog napona prikazanog u tabeli 3. je maksimalno 3%, dok odstupanja u nekim od pomenutih publikacija, preko 10% zastupljena i do 45% slučajeva [3].

Poredeći rezultate merenja prikazanih su u tabeli 4. i rezultate merenja veličine debljine poluslabljenja snopa rendgenskog zračenja u slučaju publikacija [3, 4, 5 i 6], prikazano



je da je kod svih rendgen-aparata (tabela 4) konstatovana dovoljna filtracija, što nije slučaj sa merenjima datim u [3] gde je polovina ispitivanih rendgen-aparata imala nedovoljnu filtraciju (Debljina poluslabljenja za napon od 80 kV mora biti  $\geq 2,3$  mmAl [1]).

#### 4. Zaključak

Poslednjih godina, postoji značajan porast prijavljenih korisnika rendgen-aparata u veterini (evidencija Odeljenja za dozimetriju, Centra za radiološku zaštitu, IMRS "Dr Dragomir Karajović"), što je i omogućilo ovakvu vrstu ispitivanja. Iako se vrednosti rezultata merenja ispitivanih visokofrekventnih rendgen-aparata nalaze u dozvoljenim granicama odstupanja rendgen-aparata za snimanje, to nije celokupna slika o stanju rendgen-aparata koji se koriste u veterini. Veći broj ispitivanih rendgen-aparata i širi izbor ispitivanih parametara dao bi bolju sliku o opštem stanju uređaja koji se koriste u veterini, kao i mogućnost poređenja ispitivanja ove vrste uređaja sa ispitivanjem koje bi priredile druge ustanove u zemlji ili inostranstvu.

#### 5. Literatura

- [1] Pravilnik o primeni izvora jonizujućih zračenja u medicini (Sl. Gl. RS 1/12 od 11.01.2012)
- [2] Pravilnik o uslovima za dobijanje licence za obavljanje radijacione delatnosti (Sl. gl. RS 61/11 od 19.08.2011)
- [3] O.Ciraj, D. Košutić, J. Bošnjak, R. Gromilić, S. Marković. Karakteristike rendgendijagnostičke opreme u republici srpskoj - preliminarni rezultati. *Zbornik radova XLVI Konf za ETRAN*. Banja Vrućica – Teslić, 4 – 7 juna 2002. Tom IV (2002) 73–76.
- [4] A. Milatović. Metrološko obezbeđenje kvaliteta u medicinskoj primeni izvora jonizujućih zračenja. *Doktorska disertacija*. Novi Sad, 2011.
- [5] G. Korir, J. Wambani, I. Korir. Establishing a quality assurance baseline for radiological protection of patients undergoing diagnostic radiology. *SA JOURNAL OF RADIOLOGY*. 15 (3) (2011) 70-79.
- [6] O. Ciraj, D. Košutić, S. Marković. Quality control of conventional diagnostic radiology equipment in serbia and Montenegro. *IRPA 2003*. Bratislava (Slovakia), 22-26 Sep 2003. (2003)1-4

### PERFORMANCE TESTING OF X-RAY MACHINES USED IN VETERINARY RADIOLOGY IN SERBIA

**Zoran MIRKOV**

*Serbian Institute of Occupational Health "Dr Dragomir Karajović", Belgrade, Serbia, [zoran.mirkov@institutkarajovic.rs](mailto:zoran.mirkov@institutkarajovic.rs)*

#### ABSTRACT

*During the regular annual dosimetric control X-ray devices used in veterinary medicine were examined for reproducibility and accuracy of the X-ray tube voltage; repeatability incident kerma in the air, and the total thickness poluslabljenja filtration of X-ray tubes in 12 high-frequency mobile X-ray devices. The test results are within the legal limits.*

# **БИОЛОШКИ ЕФЕКТИ ЈОНИЗУЈУЋИХ ЗРАЧЕЊА**

# ZDRAVSTVENI NADZOR NAD LICIMA PROFESIONALNO IZLOŽENIM IZVORIMA JONIZUJUĆIH ZRAČENJA U MEDICINSKOJ I INDUSTRIJSKOJ PRIMENI

**Sladana VUKOVIĆ, Milenko ĐUKIĆ i Srdan BORJANOVIĆ**

*Institut za medicine rada Srbije "Dr Dragomir Karajović", Beograd, Republika Srbija  
[sladjana.vukovicimrs@gmail.com](mailto:sladjana.vukovicimrs@gmail.com), [djukicmilenko@gmail.com](mailto:djukicmilenko@gmail.com), [borjanovics@gmail.com](mailto:borjanovics@gmail.com)*

## SAŽETAK

*U skladu sa zakonskom regulativom lica profesionalno izložena jonizujućim zračenjima upućuju se na godišnje periodične preglede. Cilj ovog rada je analiza zdravstvenog stanja lica profesionalno izloženih izvorima jonizujućih zračenja u medicinskoj i industrijskoj primeni utvrđenog na periodičnom pregledu. Pregledano je ukupno 52 radnika i to 25 radioloških tehničara (grupa I) i 27 zaposlenih na eksploataciji sirove nafte (grupa II). Godišnje ekvivalentne doze na osnovu termoluminiscentne dozimetrije bile su u nivou prirodnog fona. Utvrđeno je ukupno 79 oboljenja i stanja, 35 u grupi I i 44 u grupi II, bez statistički značajne razlike u zastupljenosti nađenih oboljenja između grupa. Najčešće je uočena hiperlipoproteinemija (29,1%), zatim refrakcione anomalije (12,7%) i arterijska hipertenzija (8,9%). Zbog slabe medikamentne regulacije hipotireoze jedan ispitanik I grupe je imao privremenu zabranu rada do uspostavljanja adekvatne supstitucije. U tri slučaja je registrovana leukocitoza u II grupi ispitanika, a kod jednog radnika I grupe registrovana je leukopenija i trombocitopenija koja je bila razlog privremene zabrane rada u zoni jonizujućih zračenja.*

Ključne reči: morbiditet, jonizujuće zračenje, eksploatacija nafte, radiološki tehničar

## 1. Uvod

U poređenju sa drugim štetnostima sa kojima se zaposleni sreće samo na svom radnom mestu, delovanju jonizujućih zračenja zaposleni se izlažu i van radnog mesta (izlaganje prirodnim izvorima, medicinsko izlaganje,..). Možemo da razlikujemo šest kategorija profesionalne ekspozicije jonizujućim zračenjima: povećana izloženost prirodnom zračenju pri obavljanju profesije (letačko osoblje, astronauti), rad u nuklearnim postrojenjima, upotreba izvora u medicinske svrhe (konvencionalna i interventna dijagnostička radiologija, nuklearna medicina, radioterapija, teleterapija,...), industrijska primena izvora (industrijska radiografija, proizvodnja izotopa, primena izvora u geološkim istraživanjima,...), vojna aktivnost i upotreba izvora u naučnoistraživačke svrhe [1]. U svim slučajevima izlaganja jonizujućim zračenjima efekti su isti, a njihova jačina ispoljavanja uslovljena je veličinom doze (ukoliko se radi o determinističkim efektima) odnosno samo verovatnoćom da će doći do štetnih posledica (ukoliko se radi o stohastičkim efektima). Iz tih razloga još od Prvog kongresa lekara radiologa 1925. godine kada je formirana Međunarodna komisija za radiološke jedinice (ICRU) i Drugog kongresa lekara radiologa 1928. godine kada je formirana Međunarodna komisija za zaštitu od jonizujućih zračenja (ICRP) sprovode se istraživanja u cilju ispitivanja bioloških efekata i zaštite radnika od štetnog delovanja jonizujućih zračenja [2].

U skladu sa The Safety Guide RS-G-1.1 zaposleni se pre početka rada sa izvorima jonizujućih zračenja i kasnije periodično (na godinu/dve godine) upućuju na lekarske

preglede koji se baziraju na opštim principima medicine rada i ispitivanju radiosenzitivnih organa [3].

Elementi prethodnog i periodičnog pregleda lica koji rade i rukuju izvorima jonizujućih zračenja definisani su i u skladu sa našom zakonskom regulativom [4,5]. Svrha ovih pregleda je da se utvrde i najmanja oštećenja usled dejstva jonizujućih zračenja u cilju u cilju prevencije profesionalnih bolesti i prevremenog invalidiziranja radnika.

## **2. Cilj rada**

Istraživanje je planirano kao studija preseka sa ciljem da se na osnovu analize zdravstvenog stanja na periodičnom pregledu utvrdi da li postoje razlike u morbiditetu između lica profesionalno izloženih izvorima jonizujućih zračenja u medicinskoj i industrijskoj primeni.

## **3. Materijal i metod rada**

Podaci su dobijeni iz preventivnih kartona ispitivanih radnika koji se nalaze u kartoteci Centra za radiološku zaštitu Instituta za medicinu rada Srbije. Analiza je rađena nakon obavljenih periodičnih pregleda u 2014. godini i to za dve grupe radnika. Prva grupu (N = 25) sastojala se od viših radioloških tehničara zaposlenih na poslovima konvencionalne rendgen dijagnostike u tercijarnoj zdravstvenoj ustanovi. Druga grupa (N = 27) bili su radnici na poslovima eksploatacije sirove nafte (tehničari za CH i OH merenja i operateri-manipulanti) koji su rukovali zatvorenim izvorima jonizujućih zračenja: gama emiter Cs-137 i mešoviti gama-beta emiter Am-241-Be. Prema Projektu mera radijacione sigurnosti i bezbednosti obe grupe radnika spadaju u kategoriju izloženosti „A“ i upućuju se na periodični pregled svake godine.

Kod svih radnika uzeta je anamneza i obavljen fizikalni pregled. Urađene su laboratorijske hematološke analize (broj leukocita sa leukocitarnom formulom, broj eritrocita, hemoglobin, hematokrit, broj trombocita), biohemijske analize krvi (glikemija, feremija, s-holesterol, s-trigliceridi), elektrokardiogram, spirometrija, oftalmološki pregled i analiza mikronukleusa u binuklearnim limfocitima. Prosečne godišnje ekvivalentne doze na osnovu termoluminiscentne dozimetrije kretale su se od 1,42 mSv do 2,75 mSv, što je u nivou prirodnog fona.

Deskripcija numeričkih obeležja urađena je klasičnim metodama deskriptivne statistike. Podaci su obrađeni SPSS programom verzija 11.0

## **4. Rezultati i diskusija**

Ispitivani radnici se ne razlikuju značajno u prosečnim godinama života, prosečnoj dužini ukupnog i ekspozicionog radnog staža (osnovne karakteristike ispitanika prikazane su na tabeli 1). Najveći broj pregledanih pripada životnoj dobi od 31 do 40 godina (40,4%, tj.36,8%), a najveći broj sa izvorima jonizujućih zračenja radi u intervalu 6-15 godina (30,8%, tj. 34,2%).

Kod 14 ispitanika (9 pripadnika I grupe, a 5 pripadnika II grupe), od ukupno 52 pregledana, nisu utvrđena nikakva patološka stanja. Kod ostalih ispitanika utvrđeno je ukupno 79 oboljenja i patoloških stanja prema Međunarodnoj klasifikaciji bolesti - X revizija (1996), a njihova distribucija prikazana je u tabeli 2. U prvoj grupi ispitanika utvrđeno je 35, a u drugoj grupi 44 oboljenja i stanja, bez statistički značajne razlike u zastupljenosti nađenih oboljenja između grupa. ( $\chi^2=14,347$ ;  $p=0,111$ ).

**Tabela 1. Osnovne karakteristike ispitanika**

Osnovne karakteristike (u godinama)	Prosečna vrednost		SD		Min		Max	
	I grupa	II grupa	I grupa	II grupa	I grupa	II grupa	I grupa	II grupa
Starost	42	45	10	11	29	24	64	61
Ukupni radni staž	16	19	10	11	1	1	34	37
Ekspozicioni radni staž	14	13	10	10	1	1	31	34

**Tabela 2. Distribucija utvrđenih dijagnoza prema grupama bolesti**

Grupa bolesti	I grupa		II grupa		Ukupno	
	N	%	N	%	N	%
Tumori	1	2,9	/	/	1	1,3
Bolesti krvi	2	5,7	3	6,8	5	6,3
Endokrine bolesti i bolesti metabolizma	14	40	14	31,8	28	35,4
Bolesti oka	6	17,1	5	11,4	11	13,9
Bolesti kardiovaskularnog sistema	4	11,4	4	9,1	8	10,1
Osteomuskularne bolesti	3	8,6	/	/	3	3,8
Bolesti gastrointestinalnog trakta	1	2,9	1	2,3	2	2,5
Urođene malformacije	1	2,9	/	/	1	1,3
Simptomi i znaci	3	8,6	17	38,7	20	25,4
Ukupno	35	100	44	100	79	100

Od grupa bolesti najzastupljenije su endokrine bolesti i bolesti metabolizma sa stopom prevalencije 40 % u prvoj grupi i 31,8 % u drugoj grupi. U najvećem broju slučajeva radi se o nalazima koji bitno ne ugrožavaju zdravlje i radnu sposobnost radnika, a to su poremećaji metabolizma masti (hiperlipoproteinemije), povišen arterijski pritisak i povišena glikemija koji zahtevaju dalje ispitivanje i kontrolu. Slede bolesti oka u smislu refrakcionih anomalija koje zahtevaju adekvatnu korekciju. Kod jednog radiološkog tehničara dijagnostikovana je katarakta kongenitalne etiologije Pet ispitanika I grupe

imaju endokrine bolesti: hipotireoza (3) i dijabet tipa II (2) Zbog slabe regulacije hipotireoze jedan ispitanik je imao privremenu zabranu rada u zoni jonizujućih zračenja do uspostavljanja adekvatne supstitucije. Jednom radiološkom tehničaru potrebna je redovna dermatološka kontrola zbog praćenja intradermalnog nevusa (tabela 3).

**Tabela 3 Distribucija utvrđenih oboljenja i stanja u ispitivanim grupama**

Oboljenja i stanja	I grupa		II grupa		Ukupno	
	N	%	N	%	N	%
Poremećaj metabolizma masti	9	25,7	14	31,8	23	29,1
Hipotireoza	3	8,6	/	/	3	3,8
Insulin nezavisni dijabetes	2	5,7	/	/	2	2,5
Leukocitoza	/	/	3	6,8	3	3,8
Leukopenija	1	2,9	/	/	1	1,3
Trombocitopenija	1	2,9	/	/	1	1,3
Refrakcione anomalije oka	5	14,3	5	11,4	10	12,7
Glaukom	1	2,9	/	/	1	1,3
Kongenitalna katarakta	1	2,9	/	/	1	1,3
Arterijska hipertenzija	4	11,4	3	6,8	7	8,9
Poremećaj ritma srca	/	/	1	2,3	1	1,3
Diskus hernija	3	8,6	/	/	3	3,8
Hiperplazija prostate	1	2,9	1	2,3	2	2,5
Nevus intradermalis	1	2,9	/	/	1	1,3
Hiperglikemija	2	5,7	2	4,5	4	5,1
Povišen arterijski pritisak, bez dijagnoze	/	/	4	9,1	4	5,1
Drugi patološki nalazi u krvi i urinu	1	2,9	11	25,1	12	14,9
Ukupno	35	100	44	100	79	100

Oštećenja hematopoeznog sistema nisu bila značajnije zastupljena u obe ispitivane grupe. Kod jednog radiološkog tehničara zabeležene su trombocitopenija i leukopenija, što je bio razlog privremene zabrane rada u zoni jonizujućih zračenja. U drugoj grupi ispitanika kod tri radnika uočena je leukocitoza praćena poremećajem u leukocitarnoj formuli, koja je zahtevala kontrolnu analizu bez zabrane rada. Ostali ispitivani parametri bili su u granicama referentnih vrednosti (tabela 4), bez statistički značajne razlike za sve ispitivane parametre, izuzve količine hemoglobina čija je vrednost bila značajno manja u I grupi ( $t = - 2,877$ ;  $p=0,06$ ).

**Tabela 4. Karakteristike hematoloških parametara**

Hematološke analize	Prosečna vrednost		SD		Min		Max	
	I grupa	II grupa	I grupa	II grupa	I grupa	II grupa	I grupa	II grupa
Eritrociti (milijon)	4,7	4,8	0,4	0,3	4,1	4,1	5,9	5,7
Hemoglobin (g/l)	143	153	15	9	119	137	169	178
Hematokrit	0,423	0,452	0,043	0,028	0,363	0,395	0,494	0,524
Leukociti (hiljadu)	6,8	7,5	1,7	1,5	3,4	5,2	9,7	12,1
Neutrofilni granulociti (%)	54,5	57,7	8,7	6,7	35,4	43,4	67,7	75
Limfociti (%)	33,1	32,1	7,2	6,2	24,5	18,7	53,2	47,6
Trombociti (hiljadu)	241	249	51	44	113	164	369	350

Kod svih ispitivanih radnika u okviru citogenetičkog ispitivanja urađen je mikronukleus test. Svi rezultati ovog testa bili su u granicama referentnih vrednosti za profesionalno izložena lica (očekivana incidencija mikronukleusa za profesionalno izložena lica je od 0 do 25 na 1000 binuklearnih limfocita). Prosečna vrednost mikronukleusa je 10 na 1000 pregledanih binuklearnih limfocita sa intervalom od 2 do 25. Ovi rezultati prikazani su na tabeli 5. Među ispitivanim grupama nije bilo statistički značajne razlike za ispitivani parametar.

**Tabela 5 Analiziran broj mikronukleusa na 1000 binuklearnih limfocita**

Broj binuklearnim limfocitima	mikronukleusa u	Prosečna vrednost	SD	min.	max.
I grupa		11	5	3	24
II grupa		10	6	2	25
Ukupno		10	6	2	25

## 5. Zaključak

U okviru zdravstvenog nadzora lica profesionalno izloženih izvorima jonizujućih zračenja pored opšteg zdravstvenog stanja, posebna pažnja se posvećuje kontroli radiosenzitivnih tkiva i organa [6]. U tom smislu akcenat se stavlja na hematološke i citogenetičke analize, pregled kože i očnog sočiva. Iako ispitanici I i II grupe rukuju

različitim izvorima jonizujućih zračenja, nije nađena statistički značajna razlika u zastupljenosti nađenih oboljenja i stanja između grupa. U obe grupe prosečne godišnje ekvivalentne doze kretale su se u nivou prirodnog fona. Ovakav nalaz ukazuje na sličan rizik od izloženosti jonizujućem zračenju kod obe vrste primene izvora. Potreban je kontinuirani zdravstveni nadzor i praćenje svih efekata profesionalne ekspozicije malim dozama jonizujućeg zračenja u ovim primenama. Pažljivo planirana prospektivna studija, može potvrditi ili odbaciti ovaj preliminarni zaključak.

## 6. Literatura:

- [1] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Sources and effects of ionizing radiation, available at: [http://www.unscear.org/docs/reports/2008/09-86753\\_Report\\_2008\\_GA\\_Report\\_corr2.pdf](http://www.unscear.org/docs/reports/2008/09-86753_Report_2008_GA_Report_corr2.pdf)
- [2] Tomašević M. Jonizujuća zračenja. U: Vidaković A, ur. Medicina rada I. Beograd. Udruženje za medicinu rada Jugoslavije. (1996) 256.
- [3] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Occupational Radiation Protection, IAEA Safety Standards Series No. RS-G-1.1, 1999. IAEA, Vienna.
- [4] Pravilnik o uslovima za dobijanje licence za obavljanje radijacione delatnosti, Beograd: Službeni glasnik Republike Srbije; 2011. br.61
- [5] Pravilnik o prethodnim i periodičnim lekarskim pregledima zaposlenih na radnim mestima sa povećanim rizikom, Beograd: Službeni glasnik Republike Srbije; 2007. br.120
- [6] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION, ICRP Statement on Tissue Reactions / Early and Late Effects of Radiation in Normal Tissues and Organs – Threshold Doses for Tissue Reactions in a Radiation Protection Context, ICRP Publication 118, Ann. ICRP 41(1-2) 2012. Elsevier.

## HEALTH SURVEILLANCE OF WORKERS OCCUPATIONALLY EXPOSED TO IONIZING RADIATION IN MEDICAL AND INDUSTRIAL USE

**Sladana VUKOVIĆ, Milenko ĐUKIĆ and Srđan BORJANOVIĆ**

*Serbian Institute of Occupational Health "Dr Dragomir Karajović", Belgrade, Serbia*

Persons occupationally exposed to ionizing radiation are referred to the annual periodic examinations in accordance with the health and radiation safety legislation. The aim of this paper was to analyze the difference in frequency and prevalence rate of observed diseases between 25 radiology technicians (group I) and 27 oil extraction workers (group II) after the annual periodic examination. According to thermoluminescent dosimetry, the subjects in both groups received year doses equal to natural background level. A total of 79 diseases and conditions were found, 35 in radiation technicians and 44 in oil extraction workers. The most frequent diseases observed were hyperlipoproteinemia (29.1%), followed by refractive errors (12.7%) and hypertension (8.9%). The access restriction to ionizing radiation area was issued to one subject from group I due to hypothyreosis. In three subjects from group II registered leukocytosis. In one of the workers from group I was leucopenia and thrombocytopenia, which was the reason for the ban from work in ionizing radiation area.

Keywords: morbidity, ionizing radiation, oil extraction, radiation technicians



## OCENA RADNE SPOSOBNOSTI PROFESIONALNO IZLOŽENIH LICA JONIZUJUĆIM ZRAČENJIMA OBOLELIH OD KATARAKTE

**Milenko ĐUKIĆ, Slađana VUKOVIĆ, Dušan MIRKOVIĆ, Jelena PAJIĆ i Boban RAKIĆ**

*Institut za medicine rada Srbije "Dr Dragomir Karajović", Beograd, Rpublika Srbija,  
[djukicmilenko@gmail.com](mailto:djukicmilenko@gmail.com), [sladjana.vukovicimrs@gmail.com](mailto:sladjana.vukovicimrs@gmail.com),  
[mirkovicdusan66@yahoo.com](mailto:mirkovicdusan66@yahoo.com), [jejapajic@gmail.com](mailto:jejapajic@gmail.com), [rakicboban@yahoo.co.uk](mailto:rakicboban@yahoo.co.uk)*

### SAŽETAK

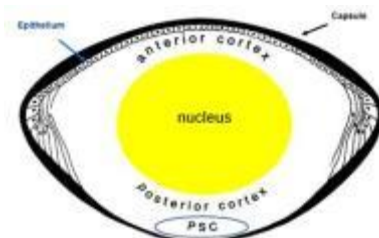
*Katarakta predstavlja zamućenje sočiva oka koje dovodi do smanjenja vidne oštrine ili potpunog gubitka vida. Očno sočivo je prepoznato kao jedno od najradiosenzitivnijih tkiva ljudskog organizma. Radiaciona katarakta se smatra podjednako determinističkim i stohastičkim efektom jonizujućih zračenja. Važno je uzeti u obzir pretpostavku da svaka doza može dovesti do oštećenja očnog sočiva, te da trenutne granice doza mogu biti neodgovarajuće. Najveća grupa radnika koja zahteva redukciju granice doze za očno sočivo su: zdravstveni radnici (pri fluoroskopskim i CT kontrolisanim interventnim procedurama, poslovi sa ciklotronom, priprema radiofarmaceutika, PET/CT, upotreba beta izvora), radnici zaposleni u nuklearnim postrojenjima i radnici na industrijskoj radiografiji. U skladu sa The Safety Guide RS –G-1.1 zaposleni se pre početka rada sa izvorima jonizujućih zračenja i kasnije periodično upućuju na lekarske preglede. Oftalmološkim pregledom na široku zenicu mogu se detektovati početne promene na očnom sočivu pre nego što prouzrokuju smanjenje vidne oštrine. Merriam-Focht skor je dizajniran da detektuje veoma rane promene na posteriornom delu sočiva, kao što su fleke, tačke i vakuole. Identifikuju se 4 stadijuma, a stadijum 2 i veći je povezan sa smanjenjem vidne oštrine. Registrovanje zamućenja na prethodnom pregledu ne predstavlja kontraindikaciju za rad u zoni jonizujućih zračenja ukoliko oštrina vida zadovoljava zahteve radnog mesta. Promene se identifikuju radi praćenja evolucije tokom radnog veka. Ukoliko dođe do progresivnog smanjenja vidne oštrine dalje lečenje je operativno. Po završenom oftalmološkom lečenju zaposleni može da se vrati u zonu jonizujućih zračenja, ukoliko nema drugih kontraindikacija za rad. Posebna pažnja poklanja se zaposlenima koji mogu da prime dozu u predelu sočiva veću od 0,5Gy.*

### 1. Definicija i etiologija katarakte

Katarakta predstavlja zamućenje prirodnog sočiva oka koje dovodi do smanjenja vidne oštrine ili potpunog gubitka vida. Ona je vodeći uzrok slepila širom sveta i na taj način utiče na radnu i životnu sposobnost obolelog [1,2]. Najčešće se javlja u drugoj polovini života (senilna katarakta), ali može biti i urođena (kongenitalna katarakta), posledica drugih bolesti (bolesti oka, šećerna bolest,..), mehaničkih povreda oka, upotrebe lekova (kortikosteroidi,..), izloženosti ultravioletnom i jonizujućim zračenjima i drugih etioloških faktora. Jedina terapija katarakte je hirurško lečenje (ultrazvučnom ili konvencionalnom operacijom). Morfološki, katarakte mogu biti različite, od sitnih tačkastih zamućenja do totalnog zamućenja sočiva. Postoje tri glavna oblika katarakte: kortikalna, nuklearna i posteriorna subkapsularna katarakta (PSC).

Očno sočivo je deo oka čija je funkcija prelamanje svetlosnih zraka. U toku čitavog života prednje epitelne ćelije sočiva se u predelu ekvatora sočiva izdužuju u vlakna koja se koncentrično slažu čineći nukleus. Gubitkom vode ova vlakna smanjuju zapreminu i

sklerotišu. Sočivo nema krvnih sudova ni nerava, a glavni deo čine belančevine (slika 1) [2]. Kataraktogeno radijaciono oštećenje počinje u prednjem delu sočiva, gde se epitelne ćelije izdužuju u kristalno-proteinska vlakna i migriraju prema zadnjem polu sočiva u posteriorni subkapsularni region.



Slika 1. Građa očnog sočiva

## 2. Patogeneza radijacione katarakte

Očno sočivo je prepoznato kao jedno od najradiosenzitivnijih tkiva ljudskog organizma. Radijaciona oštećenja nastala različitim mehanizmima dovode do morfoloških promena u epitelnim ćelijama sočiva i nepravilnog slaganja kristalno-proteinskih vlakana što rezultira njegovim zamućenjem. Ranije je smatrano da su ova PSC zamućenja tipične lezije uzrokovane radijacijom, ali poslednji podaci govore da radijacija može uzrokovati zamućenja i u korteksu sočiva. Početna zamućenja sočiva obično ne dovode do smanjenja vidne oštine, ali jačina ovih promena se progresivno povećava sa primljenom dozom. Latentni period za nastanak ovih promena je obrnuto proporcionalan primljenoj dozi [3,4].

Svi sada aktuelni standardi u zaštiti od zračenja polaze od pretpostavke da je radijaciona katarakta deterministička po prirodi svoga nastanka i dozno zavisna. Kako najnovija istraživanja pokazuju da radijaciona katarakta može biti i posledica stohastičkih događaja, veoma je važno uzeti u obzir pretpostavku da svaka doza može dovesti do oštećenja očnog sočiva, te da trenutne granice doza i standardi za eksponovana lica i opštu populaciju mogu biti neodgovarajući. Prema poslednjim ICRP preporukama iz 2011. godine, pri profesionalnoj ekspoziciji granica ekvivalentne doze za očno sočivo je 20 mSv za godinu dana, odnosno 100 mSv za 5 godina, s tim da ni u jednoj godini ne pređe 50 mSv. Istim preporukama zahtevan je individualni monitoring u predelu oka [5,6].

## 3. Rizične grupe radnika za nastanak radijacione katarakte

Prepoznate su tri kategorije radnika koje mogu da prime značajnu dozu u predelu očnog sočiva:

- radnici kod kojih je celo telo izloženo relativno uniformom radijacionom polju
- radnici eksponovani neuniformom radijacionom polju u kome sočivo oka može biti prevashodno eksponovano (oni koji mogu da štite telo ali ne i glavu, oni kod kojih je glava u blizini izvora, oni koji su izloženi beta radijaciji)
- radnici eksponovani slabom penetrantnom zračenju kao što su beta čestice ili fotoni niske energije (ispod 15 keV) koji značajno doprinose ekvivalentnoj dozi sočiva, ali ne i efektivnoj dozi.

Najveća grupa radnika koja zahteva redukciju granice doze za očno sočivo su:

- zdravstveni radnici (pri fluoroskopskim interventnim procedurama, CT kontrolisanim interventnim procedurama uključujući biopsiju, poslovi sa ciklotronom, poslovi u nuklearnoj medicini kao što su priprema radiofarmaceutika, PET/CT i upotreba beta izvora)

- radnici zaposleni u nuklearnim postrojenjima (rad na dekomisiji, rukovanje plutonijumom ili osiromašenim uranijumom).

- radnici na industrijskoj radiografiji (približno 20% zaposlenih na ovim poslovima je imalo akcidentalnu situaciju) [7].

Regularna i adekvatna upotreba zaštitne opreme je najznačajniji put prevencije oštećenja očnog sočiva. Upotreba samo olovniha naočara redukuje dozu za sočivo za faktor 5-10, upotreba samostalno zaštitnih ekrana redukuje dozu za faktor 5-25, a istovremena upotreba oba zaštitna sredstva redukuje dozu za faktor 25 i više. Pravilna upotreba ovih zaštitnih sredstava vodi dobroj kontroli rizika za radijacionu kataraktu [3,8].

#### **4. Preventivni pregledi i ocena radne sposobnosti**

U skladu sa The Safety Guide RS –G-1.1 [7] zaposleni se pre početka rada sa izvorima jonizujućih zračenja i kasnije periodično (na godinu/dve godine) upućuju na lekarske preglede koji se baziraju na opštim principima medicine rada i ispitivanju radiosenzitivnih organa. Radijaciona katarakta, u skladu sa našom zakonskom regulativom, može se pod određenim uslovima priznati za profesionalno oboljenje [9]. Odsustvo poznatih faktora rizika na nastanak katarakte omogućava postavljanje uzročno-posledične veze između katarakte i ekspozicije jonizujućim zračenjima.

Za dijagnostikovanje katarakte potreban je oftalmološki pregled na široku zenicu. Na taj način se mogu detektovati početne promene na očnom sočivu, kao što su fleke, tačke i vakuole. Merriam-Focht tehnika je našla praktičnu primenu u praćenju progresije katarakte [10]. Biomikroskopom detektovane promene se klasifikuju u 4 stadijuma. Od drugog stadijuma počinje i smanjenje vidne oštine (slika 2).

Ranije je smatrano da svako lice sa izraženom monokularnom ili binokularnom kataraktom dijagnostikovanom pri prvom pregledu treba oglasiti nesposobnim za rad u zoni jonizujućih zračenja. Samo osobe sa minimalnom traumatskom kataraktom koja ne progredira ili minimalnim kongenitalnim zamućenjima sočiva mogle su na prethodnom pregledu da se proglase sposobnim za rad u zoni jonizujućih zračenja. Ako je katarakta dijagnostikovana u toku rada, na periodičnom pregledu, a promena je početna i monokularna dalji rad je dozvoljen uz češću oftalmološku kontrolu (na 6 meseci) radi praćenja evolucije postojećih promena. Ukoliko su promene bile binokularne, osobe sa presenilnom kataraktom nisu sposobne za dalji rad sa kataraktogenim agensima, bez obzira na oštećenje vidne oštine. [11]. Mada je rizik za smanjenje oštine vida i nastanak slepila kod akumulirane doze nešto iznad 0,5 Gy mali, zdravstveni efekti treba da se identifikuju radi praćenja evolucije promena na očnom sočivu tokom radnog veka. Mora se računati da će, najverovatnije, vidna oštrina postepeno opadati i da će na kraju doći do operacije katarakte. Operacija je potrebna kada je zbog katarakte smanjena oštrina vida u toj meri da se i pored upotrebe optičkih pomagala remeti način života i obavljanje svakodnevne radne i druge životne aktivnosti. Ranije je operacija katarakte bila praćena češćim postoperativnim komplikacijama, ali napretkom u oblasti oftalmologije i operativnog lečenja katarakte ove komplikacije su svedene na minimum. U skladu sa razvojem novih tehnika operativnog lečenja i dobrim postoperativnim

rezultatima, kao i višegodišnjim iskustvom Instituta za medicinu rada Srbije u oftalmološkom praćenju lica koja rade sa izvorima jonizujućih zračenja, predlaže se izmena kriterijuma za ocenu radne sposobnosti profesionalno izloženih lica obolelih od katarakte.

SCORE	APPEARANCE			DESCRIPTION
	Anterior	Posterior	Sagittal	
0				Transparent Lens...NO opacities or dots discernible posteriorly OR anteriorly
0.5				Anterior OR posterior region* has ≤ 4 dots AND the other is transparent
1.0				Anterior OR posterior region has > 4 dots AND the other is transparent
1.5				One region has > 4 AND the other ≤ 4 dots
2.0				Both anterior AND posterior have > 4 dots
2.5				"Cloudy Skies". Vitreous visible through scattered anterior opacification
3.0				Posterior viewable but not vitreous AND anterior has scattered opacification
3.5				Total posterior opacity AND anterior near totally opaque with only occasional breaks
4.0				Anterior cortex completely opaque preventing viewing beyond superficial layers

\* Anterior Region is defined as the superficial cortex, which includes the Posterior Subcapsular (PSC) area.

**Slika 2. Merriam-Focht skala za stepenovanje katarakte**

Registrowanje zamućenja sošiva na prethodnom pregledu ne predstavlja kontraindikaciju za rad u zoni jonizujućih zračenja ukoliko oština vida zadovoljava vidne zahteve radnog mesta. Evidentiranje svih vrsta zamućenja očnog sošiva pre početka profesionalne ekspozicije jonizujućim zračenjima je značajno, kako bi se pratila evolucija tih promena i kako se te promene u sledećim periodičnim pregledima ne bi protumačile kao posledice profesionalne ekspozicije. Ukoliko dođe do progresivnog smanjenja vidne oštine i/ili slepila dalje lečenje je operativno. Indikacija za operaciju se bazira na stepenu umanjenja vidne oštine procenjene Snellen tablicama, a indikaciju za operativno lečenje postavlja specijalista oftalmologije. Posle operacije katarakte postoji privremena sprečenost za rad u trajanju od 3-4 nedelje. Po završenom oftalmološkom lečenju zaposleni može da se vrati u zonu jonizujućih zračenja, ukoliko nema drugih kontraindikacija za rad. Posebna pažnja poklanja se zaposlenima koji mogu da prime dozu u predelu sošiva veću od 0,5Gy [7,12].

## 5. Prikaz slučaja

Ispitanik star 59 godina, po zanimanju radiolog, prvih 20 godina je radio na poslovima klasične rendgendijagnostike (grafije i skopije), a poslednjih 10 godina na poslovima ultrazvučne i CT dijagnostike. U Institutu za medicinu rada Srbije sporadično su obavljani periodični pregledi u periodu 1986-2013. godine. Uvidom u karton periodičnih pregleda, u decembru 2005. godine, nakon obavljenog oftalmološkog

pregleda dijagnostikovana je početna desnostrana kortikalna katarakta, sa lako smanjenom vidnom oštrinom desno (VOD: 0,6-0,7) i očuvanom vidnom oštrinom levo (VOS: 0,9-1,0). Donet je zaključak da je ispitanik sposoban za rad u zoni jonizujućih zračenja. Zahtevano je dalje oftalmološko praćenje, pri čemu je uočeno progresivno smanjenje vidne oštrine desno koje je u decembru 2009. godine rezultiralo kompletnim zamućenjem očnog sočiva desnog oka (VOD:4/60). Postavljena je indikacija za operativno lečenje istog, a zbog očuvane vidne oštrine levog oka (VOS:0,9-1,0) nije bilo kontraindikacije za rad u zanimanju. Lečen je operativno u junu 2010. godine. Privremena nesposobnost za rad u zanimanju trajala je mesec dana nakon operativnog lečenja. Potom je ocenjen sposobnim za rad u zoni jonizujućih zračenja, jer je postoperativna vidna oštrina zadovoljavala vidne zahteve zanimanja.

## 6. Zaključak

Imajući u vidu nove poglede o radiosenzitivnosti očnog sočiva i da se kataraktogeneza smatra podjednako i stohastičkim efektom jonizujućih zračenja, poseban značaj pridaje se edukaciji profesionalno izloženih lica i značaju primene svih mera zaštite uz redovnu oftalmološku kontrolu i redovni individualni monitoring sa procenom ekvivalentne doze za očno sočivo.

## 7. Literatura:

- [1] Visual Disorders and Social Security Disability Benefit - available at: <http://www.disabled-world.com/disability/types/vision/comment.php>
- [2] Frank W. Newell. Ophthalmology principles and concepts. St. Louis: The C.V. Mosby Company, 1982.
- [3] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Radiation and cataract:Staff protection, available at: <https://rpop.iaea.org/RPOP/RPoP/Content/InformationFor/HealthProfessionals>
- [4] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION, The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 103, Ann. ICRP, 37(2-4), Elsevier, (2007).
- [5] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. Statement on tissue reactions. April 2011. available at: <http://www.icrp.org/docs/ICRP>
- [6] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION, ICRP Statement on Tissue Reactions / Early and Late Effects of Radiation in Normal Tissues and Organs – Threshold Doses for Tissue Reactions in a Radiation Protection Context, ICRP Publication 118, Ann. ICRP 41(1-2), Elsevier, (2012).
- [7] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Implications for Occupational Radiation Protection of the New Dose Limit for the Lens of the Eye, IAEA TECDOC Series No. 1731, IAEA, Vienna (2013).
- [8] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Occupational Radiation Protection, IAEA Safety Standards Series No. RS-G-1.1, IAEA, Vienna (1999).
- [9] Pravilnik o utvrđivanju profesionalnih bolesti, Beograd: Službeni glasnik Republike Srbije; 2003. br.105
- [10] Merriam, G. and Focht, E. A clinical study of radiation cataracts and the relationship to dose. Am. J. Roentgenol. 1957; 77: 759-785

- [11] Mirković D. Ocenjivanje radne sposobnosti osoba sa najčešćim oboljenjima organa vida. U: Pavlović M, Vidaković A, ur. Ocenjivanje radne sposobnosti. Lazarevac: Grafičko izdavačko preduzeće „Elvod-print“, 2003:473-5.
- [12] Optometric Clinical Practice Guideline. Care of the Adult Patient with Cataract. St. Louis: American Optometric association, 1995, reviewed 2004.

## **CATARACT AS WORK DISABILITY IN PERSONS OCCUPATIONALLY EXPOSED TO IONIZING RADIATION**

**Milenko ĐUKIĆ, Sladana VUKOVIĆ, Dušan MIRKOVIĆ, Jelena PAJIĆ and Boban RAKIĆ**

*Serbian Institute of Occupational Health “Dr Dragomir Karajović”, Belgrade, Serbia*

### **ABSTRACT**

A cataract is any opacity in the crystalline lens and reduce visual acuity persons. The lens of the eye is one of the most radiosensitive tissues in the body. Radiation cataract are deterministic and that may be even stochastic. This is an important distinction since, if radiation cataract has zero threshold, then current threshold dose may be inadequate. The largest groups of such workers potentially affected by the reduction in the dose limit for the lens of the eye are in: the medical sector (fluoroscopy and CT-guided interventional procedures, working with cyclotrons, preparation of radiopharmaceuticals, PET/CT, if beta-radiation sources are used), workers in nuclear facilities and industrial radiographers. The Safety Guide RS –G-1.1 states that there should be examinations before radiation work commences and periodic reviews thereafter. Merriam-Focht scoring was designed to detect very early lens changes, such as stains, dots and vacuoles. At least four readily distinguishable stages. The stages 2 and higher are associated with visual disability. Health effects should be identified due to starting radiation work and appropriately monitored to determine their evolution with time. Surgery is only indicated when lens opacity progresses to a stage to cause visual disability. Even if opacities are detected in a worker, this should not be regarded as a reason for removing that worker from working with radiation, provided that worker is fit to undertake the job. Special attention have the workers who could receive accumulated doses of 0,5 Gy or higher.

## FENOMEN PREVREMENE SEGREGACIJE CENTROMERA U LIMFOCITIMA PERIFERNE KRVI KOD LICA PROFESIONALNO IZLOŽENIH MALIM DOZAMA ZRAČENJA

**Jelena PAJIC<sup>1</sup>, Boban RAKIĆ<sup>1</sup>, Dubravka JOVIČIĆ<sup>2</sup>, Vojislav ANTIĆ<sup>3</sup>**

1) Institut za medicinu rada Srbije "Dr Dragomir Karajović", Beograd, Srbija,  
[boban.rakic@institutkarajovic.rs](mailto:boban.rakic@institutkarajovic.rs), [jelena.pajic@institutkarajovic.rs](mailto:jelena.pajic@institutkarajovic.rs)

2) Univerzitet Singidunum, Fakultet za primenjenu ekologiju (FUTURA), Beograd,  
Srbija, [dubravka.jovicic@futura.edu.rs](mailto:dubravka.jovicic@futura.edu.rs)

3) Klinički centar Srbije, Beograd, Srbija, [antic.vojislav@gmail.com](mailto:antic.vojislav@gmail.com)

### SAŽETAK

Zdravstveni rizik hronične ekspozicije radionuklidima uključuje promene u genomu (hromozomske aberacije i mikronukleuse) koje povećavaju hromozomsku nestabilnost. Postoje i drugi fenomeni koji se pojavljuju sa većom učestalošću u metafazama eksponovanih osoba - prevremena deoba centromera. Cilj studije bio je utvrđivanje korelacije između pobrojanih citogenetičkih promena kod osoba profesionalno izloženih radionuklidima i testiranje dijagnostičke vrednosti parametara prevremene centromerne deobe u razdvajanju eksponovanih od neeksponovanih ispitanika.

Eksponovana grupa sastavljena je od 50 profesionalno izloženih osoba, a kontrolna od 40 neeksponovanih ispitanika. Hromozomske aberacije, mikronukleusi i prevremena centromerna deoba analizirani su u skladu sa standardnim protokolom. Srednje vrednosti analiziranih citogenetičkih promena bile su značajno više u grupi eksponovanih. Pozitivna korelacija između ovih parametara konstatovana je u grupi eksponovanih. Parametar prevremene centromerne deobe PCD<sub>5-10</sub> izdvojen je kao posebno pogodan za razdvajanje grupa.

Identifikacija drugih fenomena povezanih sa izlaganjem radionuklidima, osim dobro poznatih, može razjasniti aktuelne probleme u radiobiologiji koji se odnose na biološki odgovor na male doze zračenja i eventualne posledice.

### 1. Uvod

Zdravstveni rizik povezan sa profesionalnom ekspozicijom jonizujućim zračenjima (JZ) uključuje promene u genomu koje povećavaju hromozomsku nestabilnost [1-3]. Genomska nestabilnost indukovana malim dozama zračenja manifestuje se kroz aneuploidiju, mikronukleuse, hromozomske aberacije, oksidativni stres i povećanu učestalost apoptoze [2, 4]. Citogenetičke studije profesionalno izloženih zdravstvenih radnika pokazuju povećanu bazalnu učestalost hromozomskih aberacija (CA) i mikronukleusa (MN) u odnosu na opštu populaciju [5-8]. Osim ovih, dobro proučenih, postoje i drugi fenomeni, vidljivi na citogenetičkom nivou, koji se pojavljuju sa većom incidencijom u metafazama eksponovanih ispitanika. Jedan od njih je svakako prevremena deoba centromera (PCD) [9], koja se karakteriše hromatidama razdvojenim već u metafazi ćelijskog ciklusa. Disfunkcija centromera za krajnji rezultat ima aneuploidiju i genomsku nestabilnost [10, 11]. PCD je do sada proučavana kao posledica ekspozicije genotoksičnim hemikalijama [12], te svaka studija koja uključuje ispitivanje incidence ovog fenomena među licima profesionalno izloženim JZ (posebno zaposlenim u nuklearnoj medicini i interventnim granama) ima poseban značaj.

Cilj ove studije bio je da utvrdi postoji li korelacija u učestalosti CA, MN and PCD u metafazama osoba profesionalno izloženih radionuklidima i da testira dijagnostičke

vrednosti parametara prevremene centromerne deobe u razdvajanju eksponovanih od neeksponovanih ispitanika.

## 2. Materijali i metode

Eksponovana grupa sastavljena je od 50 ispitanika profesionalno izloženih radionuklidima  $Y^{90}$  and  $I^{131}$  (dnevna, kontinuirana ekspozicija). Kontrolnu grupu je činilo 40 ispitanika koji nikad nisu bili izloženi jonizujućim zračenjima, niti hemijskim mutagenima na radnom mestu i životnom okruženju (Tabela 1).

**Tabela 1. Opšte karakteristike izučavane populacije**

	<b>Grupe</b>	<b>N</b>	<b>Srednja vrednost</b>	<b>SD</b>	<b>Min-Max</b>
<b>Pol</b>	eksponovani kontrola	50 (29 f; 21 m) 40 (20 f; 20 m)			
<b>Starost (godine)</b>	eksponovani kontrola	50 40	45.24 44.40	8.37 6.21	27-59 34-60
<b>Pušenje (broj pušača)</b>	eksponovani kontrola	26 (12 žp; 14 mp) 17 (8 žp; 9 mp)			
<b>Pušački status (trajanje u godinama)</b>	eksponovani kontrola		16.14 14.28	3.28 2.56	10-20 8-17
<b>Pušački status (broj cigareta dnevno)</b>	eksponovani kontrola				15-20 15-20
<b>URS (godine)</b>	eksponovani kontrola	50 40	21.94 19.67	8.00 6.17	5-35 13-36
<b>ERS (godine)</b>	eksponovani kontrola	50 40	17.96 0.00	8.12 0.00	5-35 0.00
<b>ED<sub>5</sub> (mSv)</b>	eksponovani kontrola	50 0	9.87 .	6.84 .	0.16-47.38 0.00
<b>ED<sub>1</sub> (mSv)</b>	eksponovani kontrola	50 0	2.19 .	1.41 .	0.00-10.10 0.00
<b>Zaštitne rukavice</b>	eksponovani kontrola	20 0			
<b>Zaštitna keclja</b>	eksponovani kontrola	15 0			
<b>Zaštitne naočare</b>	eksponovani kontrola	30 0			

ž-ženski pol; m-muški pol; žp-žene pušači; mp-muškarci pušači; URS-ukupni radni staž; ERS-ekspozicioni radni staž; ED<sub>5</sub>-efektivne doze u zadnjih 5 godina; ED<sub>1</sub>- efektivne doze u poslednjoj godini

Lični dozimetri korišćeni su za procenu eksterne ekpozicije [13]. Svi ispitanici su bili podvrgnuti citogenetičkim ispitivanjima u okviru prethodnih i periodičnih lekarskih pregleda, obavljenih u Centru za radiološku zaštitu Instituta za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“. Organizacija citogenetičkih ispitivanja, komunikacija sa ispitanicima, uzorkovanje krvi, postupci pri rukovanju uzorcima krvi u laboratorijskim uslovima, kao i postupanje sa dobijenim rezultatima, sprovedeni su u skladu sa etičkim načelima i smernicama pretpostavljenim za biomonitoring ljudskih populacija [14].



Hromozomske aberacije, PCD i mikronukleusi u limfocitima periferne krvi analizirani su u skladu sa standardnim protokolom [5].

Statistička analiza izvedena je pomoću SPSS 17.0 softvera (SPSS Inc.).

### 3. Rezultati

Ukupno je analizirano 18000 metafaznih ćelija na prisustvo CA i PCD: 8 000 (kontrolna) i 10 000 (ekspozovana grupa) i 90 000 BN ćelija u cilju detekcije oštećenja genetičkog materijala akumuliranog u mikronukleusima – 40 000 u kontrolnoj i 50 000 u ekspozovanoj grupi. Rezultati su prikazani u Tabeli 2. U poređenju sa učestalostima u kontrolnoj grupi, učestalosti ćelija sa aberacijama/mikronukleusima veće su 2 puta za PCD<sub>1-5</sub>, ΣMN i CB, 3 puta za iCB i PCD<sub>5-10</sub>, 5 puta za DIC, 7 puta za ACE i 8.5 puta za parametar tPCD. Nijedna ćelija sa ring hromozomom nije nađena u kontrolnoj grupi, a u ekspozovanoj je uočen odnos 1 ring na 2500 ćelija.

**Tabela 2. CA, PCD i MN u kontrolnoj i ekspozovanoj grupi**

CAs, PCDs, MN	Kontrola	Ekspozovani	Odnos
DIC	1/1600	1/303.03	5x
ACE	1/533	1/75.75	7x
RING	/	1/2500	
CB	1/615	1/294	2x
iCB	1/1143	1/400	2.85x
tPCD	1/800	1/94.33	8.5x
PCD <sub>1-5</sub>	1/49	1/23.53	2x
PCD <sub>5-10</sub>	1/116	1/43.1	2.7x
ΣMN	1/117,30	1/48.26	2.43x

DIC – dicentrični hromozom, ACE - acentrični fragment, RING – ring hromozom; CB –hromatidni prekid; iCB – izohromatidni prekid; tPCD – broj metafaza sa 11 ili više hromozoma sa PCD, PCD<sub>1-5</sub> – broj metafaza sa 1-5 hromozoma sa PC; PCD<sub>5-10</sub> – broj metafaza sa 6-10 hromozoma sa PCD; ΣMN – ukupan broj mikronukleusa

Srednje vrednosti CA, PCD and MN parametara bile su statistički značajno veće u grupi ekspozovanih ispitanika.

Pol i starost bili su bez uticaja na numeričke varijable u obe grupe ispitanika, osim za parametre CBMN testa, čije su vrednosti bile više kod žena i osoba starijih od 45 godina.

U cilju testiranja PCD kao novog genotoksičnog događaja i biomarkera ekspozicije, analizirane su korelacije između CA, PCD i MN, pomoću Spearmanovog testa na celom uzorku. Nađene su pozitivne linearne korelacije samo u ekspozovanoj grupi između određenih CA i PCD, kao i PCD i MN parametara.

Ekspozicioni radni staž pozitivno je korelirao sa tAC, ACE, ΣMN kao i parametrima distribucije MN: MN<sub>1</sub> i MN<sub>2</sub>. Dalje, pozitivna korelacija je utvrđena između ERS i svih parametara PCD. Ovo međutim nije bio slučaj sa podacima fizičke dozimetrije (ED<sub>1</sub> i ED<sub>5</sub>) i parametrima PCD, niti sa drugim citogenetičkim parametrima (CA i MN). Tabela 3 prikazuje značajne korelacije svih pobrojanih parametara za grupu ekspozovanih ispitanika.

**Tabela 3. Spearmanove korelacije (grupa eksponovanih)**

	tAC	DIC	RING	ACE	CB	iCB	tPCD	PCD <sub>1-5</sub>	ΣMN	MN <sub>1</sub>	MN <sub>3</sub>	ERS
tAC												.768
ACE												.753
iCB	0.448											
tPCD		0.515	0.293	0.556	0.318							.647
PCD <sub>1-5</sub>				0.348			0.524					.659
PCD <sub>5-10</sub>		0.330			0.295		0.437	0.388				.670
ΣMN	0.312					0.539						.818
MN <sub>1</sub>						0.408			0.749			.761
MN <sub>2</sub>	0.345					0.355			0.533			.610
MN <sub>3</sub>			0.298			0.296			0.592			
MN <sub>4</sub>							0.364		0.438		0.449	

Kako je cilj studije bio utvrđivanje korelacija između ekspozicije radionuklidima i pojave PCD u metafazama eksponovanih osoba, primenjena je ROC analiza kao osnovno sredstvo za evaluaciju dijagnostičkih testova. Među pobrojanim varijablama, PCD<sub>5-10</sub> se pokazao najboljom. ROC analiza je izdvojila vrednost od 3, 50 ćelije (na 200 analiziranih), sa 6 do 10 hromozoma sa PCD, kao tačku preseka. Senzitivnost ove vrednosti je 75.0%, a specifičnost (sposobnost da razdvoji eksponovane od neeksponovanih osoba) je 87.5%. Površina pod krivom (area under the curve -AUC) je 90.8% za ovu vrednost. Figura 1 prikazuje ROC analizu za parametar PCD<sub>5-10</sub>.

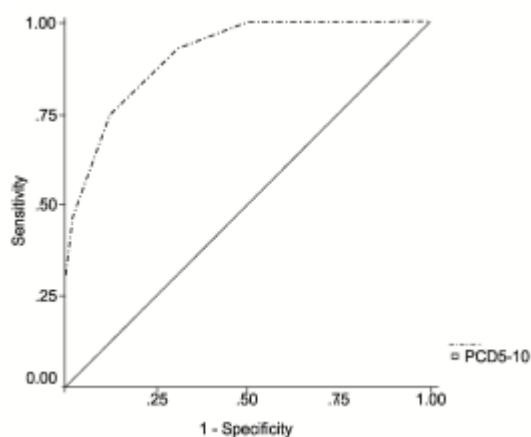


Figura 1. ROC analiza za parametar PCD<sub>5-10</sub>

#### 4. Diskusija

Profesionalno izlaganje je posebno delikatna oblast istraživanja u kojoj efekti hronične ekspozicije malim dozama igraju značajnu ulogu u razmatranju biološkog odgovora na JZ [1, 2, 4, 7]. Osim što je uvek korisno istražiti nove biomarkere hronične ekspozicije vidljive na prvom, citogenetičkom nivou, informacija o efektima zračenja može se razmatrati i u kontekstu rizika od kancerogeneze [26], s obzirom na skorašnje dokaze da

male doze zračenja vrše kako supresiju, tako i indukciju neoplastične transformacije [17].

Rezultati ove studije pokazuju značajno višu incidencu svih citogenetički vidljivih parametara: CA, PCD i MN u metafazama osoba eksponovanih malim dozama zračenja (opsega od 0 – do oko 10 mSv godišnje) u odnosu na neeksponovane. Autori su takođe nalazili povećane učestalosti CA i MN kod profesionalno izloženih zdravstvenih radnika [5-8]. Slična zapažanja, potvrđena primenom fluorescentne hibridizacije in situ, otkrivena su kako za CA tako i za PCD [9].

Naši rezultati pokazali su da starost i pol ispitanika nemaju uticaja na CA i PCD. Ovakav nalaz očekivan je za analizirane CA (dicentrike i ringove) pošto je njihovo formiranje uzrokovano skoro isključivo JZ [18, 19]. Citogenetička studija izvedena na zdravim neeksponovanim ispitanicima takođe je potvrdila da starost i pol nisu značajni prediktori hromozomskih aberacija [20]. Takođe, autori [21] su povezali PCD akrocentričnih hromozoma i aneuploidiju nekih hromozoma i pokazali da je spontana aneuploidija X hromozoma u korelaciji sa PCD [22]. Svi CBMN parametri su bili značajno povišeni kod žena i osoba starijih od 45 godina. Iz literature je poznato da na bazalnu frekvencu mikronukleusa mogu uticati pol i starost [23-25]

Korelaciona analiza otkrila je pozitivnu korelaciju između CA i PCD parametara kao i nekih parametara CBMN testa i PCD u eksponovanoj grupi. I drugi autori [9, 12] pokazali su postojanje PCD-a kod osoba kod kojih su nađene i CA, te su sugerisali da ova dva fenomena ne isključuju jedan drugog niti zavise jedan od drugog. Ekspozicioni radni staž (ERS) i incidence PCD promena su takođe u pozitivnoj korelaciji. Pozitivna korelacija je takođe nađena između ERS i ukupnog broja aberantnih ćelija i acentričnih fragmenata od parametara CA, kao i ukupnog broja mikronukleusa i parametara distribucije mikronukleusa  $MN_1$  i  $MN_2$ . Ovaj nalaz sugerise da hronična izlaganja sa većom verovatnoćom indukuju neke od citogenetički vidljivih promena u genomu i PCD nego kratkotrajna izlaganja. Međutim, nije nađena povezanost između podataka fizičke dozimetrije (izražena  $ED_1$  i  $ED_5$  u grupi eksponovanih) i PCD parametara, niti drugih analiziranih citogenetičkih parametara (CA i MN). Ovi podaci fizičke dozimetrije odnose se na eksternu ekpoziciju, dok su ispitanici uključeni u studiju bili eksponovani radionuklidima koji su mogli biti uneti u organizam, te biološki markeri, nađeni u statistički značajno većem procentu kod eksponovanih osoba predstavljaju bolje pokazatelje ekspozicije. Naši rezultati potvrđuju sugestije nekih autora [26], da PCD nije artefakt, već posledica genotoksičnih događaja, s obzirom da je konstatovana značajno niža incidence PCD parametara u neeksponovanoj grupi. Šta više, primenjena ROC analiza, osnovno oruđe u evaluaciji dijagnostičkih testova u medicini, jasno je označila jedan od testiranih parametara prevremene segregacije, centromera,  $PCD_{5-10}$ , kao najbolji za razdvajanje eksponovanih od neeksponovanih osoba: sa vrednošću Waldovog koeficijenta od 3, 50 ćelije (na 200 analiziranih) sa 6 do 10 hromozoma sa PCD dao je visoku senzitivnost (75%) i specifičnost (87.5%).

Ovi nalazi mogu se objasniti DNK strukturom humanih centromernih regiona i njihovim uticajem na vreme započinjanja i odigravanja segregacije centromera [27-29]. Mutacije u ovim regionima, izazvane potentnim genotoksičnim agensima kakvo je JZ, mogu promeniti vreme replikacije centromera, uzrokovati njihovu ranu replikaciju i raniju separaciju centromernih regiona – već u metafazi ćelijskog ciklusa [30-32]. Viša incidence metafaza sa već razdvojenim centromerama može biti i rezultat defekata na molekularnom nivou, u kontrolnim tačkama ćelijskog ciklusa i takođe može biti uzrokovana potentnim mutagenim agensom kakvo je JZ [33-37].

Pronalaženje novih fenomena povezanih sa ekspozicijom zračenjima može razjasniti probleme u radiobiologiji, koji se odnose na biološki odgovor na male doze zračenja i njihove posledice. Jedan od takvih fenomena, koji bi trebalo dalje istraživati, na većim uzorcima i drugim kvalitetima zračenja (u cilju biomonitoringa), ali i u laboratorijskim *in vitro* uslovima (u cilju otkrivanja događaja koji ga uzrokuju na molekularnom nivou) je svakako prevremena segregacija centromera.

## 5. Literatura

- [1] J.H.J. Hoeijmakers Genome maintenance mechanisms for preventing cancer. *Nature* 411(2001)366-74.
- [2] W.F. Morgan Non-targeted and delayed effects of exposure to ionizing radiation: I. Radiation-induced genomic instability and bystander effects in vitro. *Radiat Res* 159 (2003) 567-80.
- [3] C. Mothersill, C.B. Seymour Radiation-induced bystander effects-implications for cancer. *Nat Rev Cancer* 4 (2004)158-64
- [4] A.B. Engin, M.A. Ergum, E. Yurtcu, D. Kan, G. Sahin Effect of ionizing radiation on the pteridine metabolic pathways and evaluation of its cytotoxicity in exposed hospital staff. *Mutat Res* 585 (2005) 184–92
- [5] M. Ballardini, A. Antonelli, M. Cipollini, P. Fallahi, R. Scarpato, A. Tomei, et al Induction of chromatid-type aberrations in peripheral lymphocytes of hospital workers exposed to very low doses of radiation. *Mutat Res* 626 (2007) 61-8
- [6] J.F. Barquinero, L. Barrios, M.R. Caballin, R. Miro, A. Subias, J. Egozeue Cytogenetic analyses of lymphocytes from hospital workers occupationally exposed to low levels of ionizing radiation. *Mutat Res* 286 (1993) 275-9
- [7] D. Jovičić, S. Milačić, N. Milić, N. Bukvić, D.T. Vukov Chromosomal Aberrations in Subjects Exposed to Ionizing Radiation. *J Environ Pathol Toxicol Oncol* 28 (2009) 75-82
- [8] Sari-Minodier, T. Orsière, P. Auquier, F. Martin, A. Botta Cytogenetic monitoring by use of micronucleu assay among hospital workers exposed to low doses of ionizing radiation. *Mutat Res* 629 (2007) 111-21
- [9] D. Jovičić, S. Milačić, T.D. Vukov, B. Rakić, M. Stevanović, D. Drakulić, et al Detection of premature segregation of centromeres in persons exposed to ionizing radiation. *Health Physics* 98 (2010) 717-27
- [10] T. Litmanovic, M.M. Altras, A. Dotana, L. Avivi Asynchronous replication of homologous alfa-satellite DNA loci in man is associated with nondisjunction. *Cytogen Cell Genet* 81(1998) 26-35
- [11] B.K.Vig, J. Wodnicki Separation of sister centromeres in some chromosomes from cultured human leukocytes. *J Hered* 65 (1974) 149-52
- [12] J. Major, M.G. Jakab, A. Tompa The frequency of induced premature centromere division in human populations occupationally exposed to genotoxic chemicals. *Mutat Res* 445 (1999) 241-9
- [13] U. German, B. Ben-Shachar, M. Weinstein Twenty five years of TL-dose measurements at the NRC-NEGEV. *Proceedings of IRPA-10; Hiroshima, Japan: Internat Radiat Protect Assoc*: (2000) CD ROM paper p3b-168.
- [14] R.J.Albertini, J.A.Nicklas, J.P. O’Neill. Future research directions for evaluating human genetic and cancer risk from environmental exposures. *Environ health Persp* 104 (Suppl 3) (1996) 503-510

- [15] International Atomic Energy Agency (IAEA) Cytogenetic analysis for radiation dose assessment. International Atomic Agency Technical Report Series 405. Vienna: IAEA(2001)
- [16] R.J. Preston Bystander effects: Genomic instability, adaptive response and cancer risk assessment for radiation and chemical exposures. *Toxicol Appl Pharmacol* 207 (2005) 550–6
- [17] M. Ko, X.Y. Lao, R. Kapadia, E. Elmore, J.L. Redpath Neoplastic transformation in vitro by doses of ionizing radiation: Role of adaptive response and bystander effects. *Mutat Res* 597 (2006) 11–7
- [18] E.A. Ainsbury, E. Bakhanova, J.F. Barquinero, et al Review of retrospective dosimetry techniques for external ionising radiation exposures. *Radiat Prot Dosim* 147(2011) 573–92
- [19] R. Rozgaj, V. Kosuba, D.T. Simic The frequency of dicentrics and acentrics and the incidence of rogue cells in radiation workers. *Mutagenesis* 17(2002) 135-9
- [20] G.Stephan, S. Pressl Chromosomal aberrations in peripheral lymphocytes from healthy subjects as detected in the first cell division. *Mutat Res* 446(1999) 231–7
- [21] B.K. Vig, L. Keith, L. Sternes, N. Paweletz Centromere structure and function in neoplasia. *Cancer Genet Cytogen.* 43(1989) 151-78
- [22] B. Spremo-Potparevic, L. Zivkovic, N. Djelic, V. Bajic Analysis of premature centromere division (PCD) of the X chromosome in Alzheimer patients through cell cycle. *Exper Geront* 39(2004) 849-54
- [23] A.C. Antunes, V. Martins, J. Cardoso, L. Santos, O. Monteiro Gil The cytokinesis-blocked micronucleus assay: Dose estimation and inter-individual differences in the response to  $\gamma$  radiation. *Mutat Res* 760 (2014) 17-22
- [24] M. Fenech, S. Bonassi The effect of age, gender, diet and lifestyle on DNA damage measured using micronucleus frequency in human peripheral blood lymphocytes. *Mutagenesis* 26 (2011) 43–49
- [25] H. Nefic, I. Handzic The effect of age, sex, and lifestyle factors on micronucleus frequency in peripheral blood lymphocytes of the Bosnian population. *Mutat Res* 753 (2013) 1-11
- [26] E.M., Bühler, R. Fessier, C. Beutler, G. Gargano Incidental finding of double minutes (DM), single minutes (SM), homogenously staining regions (HSR), premature chromosome condensation (PCC) and premature centromere division (PCD)? *Ann Genet (Paris)* 30 (1987) 75-9
- [27] M.G. Shueller, A. Higgins, M.K. Rudd, K. Gustashaw, H.F. Willard Genomic and genetic definition of functional human centromere. *Science* 294 (2001) 109-15
- [28] J.S. Way, H.F. Willard Nucleotide sequence heterogeneity of alpha satellite repetitive DNA: A survey of alphoid sequences from different human chromosomes. *Nucl Acid Res* 15 (1987) 7549-69
- [29] H.F. Willard Chromosome specific organization of human satellite DNA. *Am J Hum Genet* 37 (1985) 524-32
- [30] K. Sankaranarayanan, R. Taleei, S. Rahmanian, H. Nikjoo Ionizing radiation and genetic risks. XVIII. Formation mechanisms underlying naturally occurring DNA deletions in the human genome and their potential relevance for bridging the gap between induced DNA double-strand breaks and deletions in irradiated germ cells. *Mutation Research* 753 (2013) 114-30
- [31] B.K. Vig Sequence of centromere separation: Orderly separation of multicentric chromosomes in mouse L-cells. *Chromosoma* 90 (1984) 39-45

- [32] B.K. Vig, R.P. Zinkowski Sequence of centromere separation: A mechanism for orderly separation of dicentrics. *Cancer Genet Cytogenet* 22 (1986) 347-59
- [33] S.M. Gollin Mechanisms leading to chromosomal instability. *Semin Canc Biol* 15 (2005) 33-42
- [34] S. Matsuura, E. Ito, H. Tauchi, K. Kenshi, T. Ikeuchi, K. Tadashi Chromosomal instability syndrome of total premature chromatid separation with mosaic variegated aneuploidy is defective in mitotic-spindle checkpoint *Am J Hum Genet* 67(2000) 483-6
- [35] F. Michor, Y. Iwasa, B. Vogelstein, C. Lengauer, M.A. Nowak Can chromosomal instability initiate tumorigenesis? *Rev Semin Canc Biol* 15 (2005) 43-49
- [36] W.F. Morgan et al. Genomic instability induced by ionizing radiation. *Radiat Res* 146 (1995) 247-258
- [37] N. Resta, F.C. Susca, M.C. Di Giacomo, A. Stella, N. Bukvic, R. Bagnulo, et al Homozygous frameshift mutation in the ESCO2 gene: evidence of intertissue and interindividual variation in Nmd efficiency. *J Cell Physiol* 209(2006) 67-73

**PREMATURE CENTROMERE DIVISION IN PERIPHERAL BLOOD  
LYMPHOCYTES OF PERSONS OCCUPATIONALLY EXPOSED TO LOW  
DOSE IONIZING RADIATION**

**Jelena PAJIĆ<sup>1</sup>, Boban RAKIĆ<sup>1</sup>, Dubravka JOVIČIĆ<sup>2</sup>, Vojislav ANTIĆ<sup>3</sup>**

1) *Serbian Institute of Occupational Health "Dr Dragomir Karajović", Belgrade, Serbia, boban.rakic@institutkarajovic.rs, jelena.pajic@institutkarajovic.rs*

2) *Singidunum University, Faculty of applied ecology (FUTURA), Belgrade, Serbia, dubravka.jovicic@futura.edu.rs*

3) *Clinical Center of Serbia, Belgrade, Serbia, antic.vojislav@gmail.com*

**ABSTRACT**

The health risk of chronic exposure to radionuclides includes changes in the genome (e.g. chromosomal aberrations and micronuclei) that increase chromosomal instability. There are also other phenomena, which seem to appear more frequently in metaphases of exposed persons (such as premature centromere division). The aim of this study was to discover whether or not there is correlation between the frequencies of named cytogenetic changes in persons occupationally exposed to radionuclides in comparison with unexposed control group and if significant correlation is determined, can premature centromere division be considered as a biomarker of radiation exposure? The exposed group comprised 50 individuals occupationally exposed to radionuclides. The reference control group consisted of 40 unexposed individuals.

Chromosomal aberrations, micronuclei and premature centromere division were analyzed according to a standard International Atomic Energy Agency protocol. Statistical analyses were performed using SPSS 17.0 statistics. The means for analyzed cytogenetic changes were significantly higher in the exposed group. Positive correlation between them was found in exposed group. Premature centromere division parameter PCD5-10 was selected as particularly suitable for separating groups (exposed/unexposed). Identification of other phenomena related to radionuclide exposure, beside well known, may clarify recent problems in radiobiology concerning the biological response to low doses of ionizing radiation and its consequences.

## UČESTALOST MIKRONUKLEUSA U LIMFOCITIMA PERIFERNE KRVI OPŠTE POPULACIJE NA TERITORIJI SRBIJE: REZULTATI CITOGENETIČKE BIOMONITORING STUDIJE

**Jelena PAJIC<sup>1</sup>, Boban RAKIĆ<sup>1</sup>, Dubravka JOVIČIĆ<sup>2</sup>**

1) Institut za medicinu rada Srbije "Dr Dragomir Karajović", Beograd, Srbija,  
[boban.rakic@institutkarajovic.rs](mailto:boban.rakic@institutkarajovic.rs), [jelena.pajic@institutkarajovic.rs](mailto:jelena.pajic@institutkarajovic.rs)

2) Univerzitet Singidunum, Fakultet za primenjenu ekologiju (FUTURA), Beograd,  
Srbija, [dubravka.jovicic@futura.edu.rs](mailto:dubravka.jovicic@futura.edu.rs)

### SADRŽAJ

*Citokinezis-blok mikronukleus test (CBMNCyt) korišćen je za utvrđivanje bazalne incidence mikronukleusa u limfocitima periferne krvi ispitanika opšte populacije Srbije, kao i za utvrđivanje mogućih uticaja spoljašnjih i unutrašnjih faktora na ove vrednosti. Srednja vrednost učestalosti mikronukleusa (MN) je  $8.31 \pm 3.88$  na 1000 analiziranih binuklearnih limfocita. Broj mikronukleusa kreće se u opsegu od 1 – 21 na 1000 analiziranih binuklearnih limfocita, pri čemu najveći broj ispitanika ima 6 i 7 mikronukleusa. Srednja učestalost nukleoplazmatičnih mostića (NPB) bila je  $0.23 \pm 0.47$ , a nukleusnih pupova (NB)  $3.15 \pm 1.41$ . Srednja vrednost proliferativnog indeksa bila je  $1.63 \pm 0.18$ . Broj ćelija u apoptozi kretao se u rangu od 0-6 na 1000 analiziranih ćelija, dok je srednja vrednost bila  $1.74 \pm 1.23$ . Broj nekrotičnih ćelija bio je u opsegu 0-7 na 1000 binuklearnih ćelija, (srednja vrednost  $2.27 \pm 1.63$ ). Kanonična korelaciona analiza pokazala je statistički značajnu pozitivnu korelaciju između učestalosti MN, starosti, pola i navike konzumiranja cigareta. Detaljnije analize pokazale su da starost i pol u većoj meri utiču na učestalost MN nego cigarete.*

### 1. Uvod

Citokinezis-blok mikronukleus test (CBMN), zasnovan na određivanju broja mikronukleusa (MN) u binuklearnim limfocitima (BN) periferne krvi je opsežan metod za detekciju hromozomskih oštećenja, grešaka u reparaciji molekula DNK, gubitka hromozoma, amplifikacije gena, nekroze, apoptoze i citostaze [1]. Ovaj test našao je široku primenu u biomonitoringu humanih populacija, kao i u genotoksikološkim testovima. Koristi se: (a) za utvrđivanje stepena genetičkih oštećenja u populacijama izloženim različitim genotoksičnim agensima radne i/ili životne sredine; (b) za utvrđivanje inter-individualne radiosenzitivnosti; (c) za određivanje genotoksičnog potencijala novosintetisanih hemijskih agenasa proizvedenih u agrohemijskoj i/ili farmaceutskoj industriji [2-5]. Osnovni preduslov za primenu ovog biološkog testa u svrhu nadzora izloženih populacija je poznavanje njegovih vrednosti u opštoj - neizloženoj populaciji, utvrđenih na velikom broju ispitanika, koji žive u istom podneblju i dele slične životne navike i formiranje baze na osnovu ovih podataka. Preporuka je redovno obnavljati baze podataka (idealno bi bilo svake 2 godine), a trebalo bi raspolagati podacima za najmanje 20 ispitanika svakog pola po dekadi starosti [6].

Laboratorija za biodozimetriju i citogenetiku Instituta za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“, u okviru biomonitoring studija opšte populacije Srbije, prikuplja podatke o vrednostima mikronukleus testa.

## 2. Materijal i metode

Istraživana populacija je obuhvatila 201 ispitanika oba pola (102 žene i 99 muškaraca); prosečna starost žena bila je  $42.37 \pm 8.42$  (opseg 22–62 godine), a muškaraca  $42.24 \pm 7.63$  (26–56 godina). Iz istraživanja su isključeni ispitanici stariji od 65, zbog uočenih medicinskih stanja koja mogu imati uticaj na bazalnu incidencu MN [1]. U cilju ispitivanja uticaja starosti na MN učestalost, ceo uzorak podeljen je u 4 starosne kategorije (SK): 20- 30 godina (SK 1), 31-40 godina (SK 2), 41-50 godina (SK 3) i 51-65 godina (SK 4).

Svi ispitanici su podvrgnuti citogenetičkim ispitivanjima (CBMN testu) u Centru za radiološku zaštitu Instituta za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“. Organizacija citogenetičkih ispitivanja, komunikacija sa ispitanicima, uzorkovanje krvi, postupci pri rukovanju uzorcima krvi u laboratorijskim uslovima, kao i postupanje sa dobijenim rezultatima, sprovedeni su u skladu sa etičkim načelima i smernicama pretpostavljenim za biomonitoring ljudskih populacija [7].

Za CBMN test limfociti su kultivisani, a dobijeni preparati analizirani u skladu sa standardnim protokolom [1, 8]. U svakom uzorku je pregledano po 1000 BN limfocita u kojima je utvrđivan ukupan broj MN. Uporedo su brojane ćelije sa MN i njihova raspodela (distribucija) i praćena pojava specifičnih parametara CBMNCyt testa – nukleoplazmatičnih mostova i nukleusnih pupova. Preparati su analizirani u skladu sa standardnim protokolom [8] i propisanim kriterijumima HUMN projekta [9]. Parametri koji opisuju distribuciju MN definisani su kao: MN1 (broj BN limfocita sa 1 MN), MN2 (broj BN limfocita sa 2 MN), MN3 (broj BN limfocita sa 3 MN) i MN4 (broj BN limfocita sa 4 MN). Indeks deobe jedra (NDI) računat je po formuli  $NDI = (M_1 + 2 * M_2 + 3 * M_3 + 4 * M_4) / N$ , gde  $M_1 - M_4$  predstavljaju broj ćelija sa 1–4 nukleusa, a N je ukupan broj analiziranih vijabilnih ćelija [1].

Broj nekrotičnih (NC) i apoptotičnih ćelija (AC) analiziran je na 1000 mononuklearnih ćelija po ispitaniku u cilju određivanja citotoksičnosti, u skladu sa kriterijumima navedenim u CBMNCyt test protokolu [1].

Statistička obrada podataka urađena je pomoću programa Statistical Package for Social Sciences, SPSS 17.0 statistics (SPSS Inc, IBM, USA) i STATISTICA (v.8, StatSoft, Inc.1984-2007). U svim primenjenim analitičkim metodama prihvaćeni nivo značajnosti bio je 0,05.

## 3. Rezultati

Rezultati ove citogenetičke biomonitoring studije koja je obuhvatila odrasle pripadnike opšte populacije Srbije, podeljeni su u 4 kategorije i prikazani tabelarno (Tabele 1 i 2).

### *Parametri DNK oštećenja*

Svi parametri analizirani su na 1000 BN ćelija. Srednja vrednost mikronukleusa je  $8.31 \pm 3.88$ . U celom uzorku, 99.27% BN ćelija su bile bez MN, dok je samo 0.73% ćelija bilo mikronukleirano. Većina mikronukleiranih BN ćelija sadržala je 1 mikronukleus, dok je u celom uzorku nađena samo jedna ćelija sa 4 mikronukleusa. Broj MN kretao se u rangu od 1 do 21, dok je većina ispitanika imala 6 i 7 MN. Gornja granična vrednost MN (računata sa 95% intervalom poverenja (CI)) bila je 15 MN.

Srednja vrednost nukleusnih pupova (NB) bila je  $3.15 \pm 1.41$ , sa najviše 7 NB. Većina ispitanika imala je 3 i 4 NB. Gornja granična vrednost NB bila je 5. Srednja vrednost nukleoplazmatičnih mostića (NPB) bila je  $0.23 \pm 0.47$ , sa najviše detektovana 2 NPB.



Najveći broj ispitanika nije imao NPB u svojim BN ćelijama. Gornja granična vrednost za NPB bila je 1.

#### **Parametri citostaze**

Srednja vrednost parametra ćelijske proliferacije (NDI) bila je  $1.63 \pm 0.18$  (u opsegu 1.2 – 2.10). Srednja vrednost mononuklearnih limfocita ( $M_1$ ) bila je  $264.98 \pm 9.35$  (u opsegu 244-368), za binuklearne limfocite ( $M_2$ )  $565.88 \pm 6.86$  (u opsegu 545 - 585), za trinuklearne limfocite ( $M_3$ )  $56.80 \pm 1.94$  (u opsegu 50-59) i za kvadrinuklearne limfocite ( $M_4$ )  $17.78 \pm 1.43$  (u opsegu 15-21).

#### **Parametri citotoksičnosti**

Broj apoptotičnih ćelija bio je u opsegu 0 do 6, sa srednjom vrednošću  $1.74 \pm 1.23$ , dok je broj nekrotičnih ćelija bio u rang 0-7 (srednja vrednost  $2.27 \pm 1.63$ ).

Parametri DNK oštećenja, citostaze i citotoksičnosti prikazani su u tabeli 1.

**Tabela 1. Parametri CBMNCyt testa u limfocitima periferne krvi opšte populacije Srbije**

MNt	1671	
Procenat BN ćelija (ceo uzorak)	bez MN	99.27%
	sa MN	0.73%
Srednja vrednost MN na 1000 BN ćelija, sr.vred. $\pm$ SD	$8.31 \pm 3.88$	
Srednja vrednost parametara distribucije MN na 1000 BN ćelija	MN <sub>0</sub>	$992.74 \pm 3.17$
	MN <sub>1</sub>	$6.35 \pm 2.89$
	MN <sub>2</sub>	$0.84 \pm 0.86$
	MN <sub>3</sub>	$0.09 \pm 0.32$
	MN <sub>4</sub>	$0.005 \pm 0.07$
MN opseg	1 - 21	
Gornja granična vrednost MN <sup>b</sup>	15	
Srednje vrednosti na 1000 BN ćelija, sr.vred. $\pm$ SD	NB	$3.15 \pm 1.41$
	NPB	$0.23 \pm 0.47$
NB i NPB opseg	NB	0-7
	NPB	0-2
Gornja granična vrednost NB i NPB	NB	5
	NPB	1
Parametri citostaze na 1000 ćelija sr.vred. $\pm$ SD (opseg)	NDI	$1.63 \pm 0.18$ (1.2 – 2.10)
	M <sub>1</sub>	$264.98 \pm 9.35$ (244-368)
	M <sub>2</sub>	$665.75 \pm 6.87$ (645-685)
	M <sub>3</sub>	$56.80 \pm 1.94$ (50-59)
	M <sub>4</sub>	$17.78 \pm 1.43$ (15-21)
Parametri citotoksičnosti na 1000 BN ćelija sr.vred. $\pm$ SD (opseg)	AC	$1.74 \pm 1.23$ (0-7)
	NC	$2.27 \pm 1.63$

### ***Uticaj pola, starosti i navike konzumiranja cigareta na stepen citogenetičkih oštećenja prisutnih u mikronukleusima***

Srednje vrednosti parametara DNK oštećenja (ukupan broj MN, parametri distribucije MN: MN<sub>1</sub> i MN<sub>2</sub> iNB) su statistički značajno viši kod žena u odnosu na muškarce.

Analize su pokazale statistički značajne razlike u svim analiziranim parametrima, sem parametra MN distribucije MN<sub>4</sub> (Tabela 2) sa višim vrednostima kod starijih osoba.

T – test pokazao je značajnost razlike između pušača i nepušača u srednjim vrednostima parametara: MN<sub>t</sub>, MN<sub>1</sub> i MN<sub>2</sub>, sa višim vrednostima kod pušača (Tabela 2). I muškarci i žene nepušači imali su manju incidence mikronukleusa nego pušači. Tako, srednje vrednosti ± SD za žene i muškarce nepušače i pušače su: 8.71 ± 4.20 (žene nepušači); 10.09 ± 3.89 (žene pušači); 6.37 ± 3.00 (muškarci nepušači) i 8.24 ± 3.43 (muškarci pušači).

Nisu utvrđene statistički značajne razlike u parametrima citostaze između muškaraca i žena, pušača i nepušača i starosnih kategorija.

Slični rezultati dobijeni su upoređivanjem srednjih vrednosti nekrotičnih i apoptotičnih ćelija u odnosu na pol, starost i status pušenja. Za starosne kategorije (SK), utvrđene su značajne razlike za učestalost nekrotičnih ćelija između kategorije 2 i 4 kao i 3 i 4, sa višim prosečnim vrednostima kod starijih osoba (SK 4). Međutim, za apoptotične ćelije nisu utvrđene statistički značajne razlike između starosnih grupa.

Učestalosti svih analiziranih parametara prikazani su u Tabeli 2, za oba pola, starosne kategorije i pušački status. Kanonična korelaciona analiza pokazala je pozitivnu značajnu korelaciju ( $R = 0.89$ ;  $\chi^2 = 319.03$ ;  $p < 0.001$ ) između učestalosti MN u limfocitima zdravih neeksponovanih ispitanika i 3 kategorijske varijable: pola, starosti i konzumiranja cigareta. Detaljne analize faktorske strukture za ova dva seta varijabli indikovale su da starost i pol više nego pušenje utiču na incidencu MN u limfocitima periferne krvi zdravih neeksponovanih ispitanika.

## **4. Diskusija**

Mikronukleusi su koristan biomarker u biomonitoring studijama sa širokom primenom u proceni hromozomskih oštećenja uzrokovanih mutagenim agensima kako *in vitro* tako i *in vivo*. Utvrđivanje bazalne incidence citogenetičkih oštećenja reflektovane brojem MN u limfocitima periferne krvi neophodno je za pravilno interpretiranje podataka u slučaju različitih scenarija izlaganja koji uključuju fizičke i hemijske genotoksične agense.

U citogenetičkoj laboratoriji Instituta za medicinu rada Srbije sprovedeno je opsežno istraživanje u cilju utvrđivanja normalnih (bazalnih) vrednosti parametara mikronukleus testa u opštoj populaciji Srbije i utvrđivanja uticaja unutrašnjih faktora (starost i pol) i spoljašnjih faktora (konzumiranje cigareta) na ove vrednosti.

Uprkos striktnom pridržavanju procedura u preparaciji i citogenetičkoj analizi, uočena je inter-individualna varijabilnost u analiziranim parametrima CBMN testa, pre svega u ukupnom broju mikronukleusa (MN<sub>t</sub>). Broj mikronukleusa kretao se u opsegu 1-21, sa najviše osoba sa 6 i 7 mikronukleusa. Varijabilnost u incidence MN uočena u ovoj studiji može se, bar delimično, objasniti individualnom genomskom senzitivnošću i unutrašnjim faktorima, kakvi su starost i pol [1, 3, 5, 10, 11, 12], kao i životnim navikama (ishrana, konzumiranje alkohola, cigareta) [1, 3, 5, 12, 13, 14].

Srednja vrednost učestalosti MN u srpskoj populaciji je  $8.31 \pm 3.88$ . Drugi autori utvrdili su slične srednje vrednosti MN u opštoj populaciji, koje se kreću od 7-13 [12, 15, 16, 17]. Male razlike uočene u srednjim vrednostima mogu se objasniti različitim

metodološkim pristupima, različitim brojem ispitanika i varijacijama u analiziranju mikroskopskih pločica [13]. Dalje, ovaj nalaz se slaže sa prethodnom studijom koju smo sprovedeli u cilju kontruisanja dozno-zavisne kalibracione krive za mikronukleuse [18], a u kojoj su za kontrolnu grupu odabrani drugi ispitanici.

**Tabela 2. Parametri CBMNCyt testa u odnosu na pol, starost i naviku konzumiranja cigareta**

	Parametri DNK oštećenja (sr.vred. $\pm$ SD)						
	MN <sub>t</sub>	MN <sub>1</sub>	MN <sub>2</sub>	MN <sub>3</sub>	MN <sub>4</sub>	NB	NPB
M	7.16 $\pm$ 3.31	5.62 $\pm$ 2.55	0.70 $\pm$ 0.83	0.05 $\pm$ 0.26	0.00 $\pm$ 0.00	2.77 $\pm$ 1.40	0.21 $\pm$ 0.41
Ž	9.42 $\pm$ 4.01	7.05 $\pm$ 3.03	0.98 $\pm$ 0.88	0.13 $\pm$ 0.36	0.01 $\pm$ 0.10	3.54 $\pm$ 1.33	0.26 $\pm$ 0.52
Nepušači	7.45 $\pm$ 3.78	5.75 $\pm$ 2.58	0.72 $\pm$ 0.91	0.08 $\pm$ 0.30	0.01 $\pm$ 0.10	3.03 $\pm$ 1.55	0.20 $\pm$ 0.45
Pušači	9.27 $\pm$ 3.79	7.02 $\pm$ 3.07	0.98 $\pm$ 0.78	0.11 $\pm$ 0.34	0.00 $\pm$ 0.00	3.29 $\pm$ 1.24	0.27 $\pm$ 0.49
SK 1	3.79 $\pm$ 2.01	3.07 $\pm$ 1.59	0.36 $\pm$ 0.50	0.00 $\pm$ 0.00	0.00 $\pm$ 0.00	2.07 $\pm$ 1.54	0.00 $\pm$ 0.00
SK 2	6.68 $\pm$ 3.12	5.40 $\pm$ 2.53	0.58 $\pm$ 0.64	0.05 $\pm$ 0.22	0.00 $\pm$ 0.00	2.66 $\pm$ 1.30	0.18 $\pm$ 0.43
SK 3	8.96 $\pm$ 2.92	6.84 $\pm$ 2.55	0.97 $\pm$ 0.87	0.06 $\pm$ 0.23	0.00 $\pm$ 0.00	3.32 $\pm$ 1.23	0.20 $\pm$ 0.40
SK 4	11.95 $\pm$ 3.55	8.26 $\pm$ 2.61	1.39 $\pm$ 1.03	0.26 $\pm$ 0.55	0.03 $\pm$ 0.16	4.34 $\pm$ 1.12	0.42 $\pm$ 0.64

	Parametri citostaze (sr.vred. $\pm$ SD)					Parametri citotoksičnosti (sr.vred. $\pm$ SD)	
	M <sub>1</sub>	M <sub>2</sub>	M <sub>3</sub>	M <sub>4</sub>	NDI	NC	AC
M	265.54 $\pm$ 11.97	665.84 $\pm$ 6.58	56.64 $\pm$ 1.97	17.71 $\pm$ 1.52	1.62 $\pm$ 0.19	2.21 $\pm$ 1.46	1.74 $\pm$ 1.2
Ž	264.43 $\pm$ 5.85	665.66 $\pm$ 7.16	56.96 $\pm$ 1.9	17.84 $\pm$ 1.35	1.64 $\pm$ 0.18	2.33 $\pm$ 1.77	1.75 $\pm$ 1.2
Nepušači	265.11 $\pm$ 11.85	665.38 $\pm$ 7.25	56.81 $\pm$ 1.84	17.68 $\pm$ 1.46	1.64 $\pm$ 0.19	1.75 $\pm$ 1.32	2.22 $\pm$ 1.64
Pušači	264.82 $\pm$ 5.48	666.16 $\pm$ 6.42	56.79 $\pm$ 2.05	17.88 $\pm$ 1.12	1.61 $\pm$ 0.18	1.74 $\pm$ 1.12	2.64 $\pm$ 1.61
SK 1	266.21 $\pm$ 5.48	666.21 $\pm$ 9.97	56.79 $\pm$ 2.22	17.57 $\pm$ 1.65	1.70 $\pm$ 0.17	2 $\pm$ 1.36	1.36 $\pm$ 1.93
SK 2	264.89 $\pm$ 6.2	665.49 $\pm$ 6.27	56.58 $\pm$ 2.06	17.69 $\pm$ 1.42	1.60 $\pm$ 0.18	2.18 $\pm$ 1.6	1.6 $\pm$ 0.18
SK 3	265.38 $\pm$ 13.27	666.39 $\pm$ 7.07	57.03 $\pm$ 1.86	17.82 $\pm$ 1.52	1.64 $\pm$ 0.19	2.15 $\pm$ 1.64	1.92 $\pm$ 1.39
SK 4	263.92 $\pm$ 6.17	664.85 $\pm$ 6.38	56.79 $\pm$ 1.75	17.92 $\pm$ 1.24	1.64 $\pm$ 0.19	2.79 $\pm$ 1.69	1.72 $\pm$ 1.12

Broj NB i NPB pokazao je manju varijabilnost, pogotovo NPB (opseg 0-2 na 1000 BN ćelija). Nedostatak varijabilnosti može biti objašnjen poreklom ovih promena. NB nastaju eliminacijom amplifikovane DNK i DNK - reparativnih kompleksa [1], dok se NPB smatraju biomarkerima dicentričnih hromozoma [1] (uzrokovanih skoro isključivo jonizujućim zračenjima). Biomonitoring studije sprovedene u cilju utvrđivanja vrednosti parametara CBMN testa u opštoj populaciji pokazale su slične rezultate [12, 15, 16].

Šta više, uobičajeno je da se u normalnim, neeksponovanim limfocitima periferne krvi uoči 0-30 mikronukleusa, 0-10 NPB i 0-5 NB na 1000 analiziranih BN limfocita [1], a naši su rezultati u skladu sa ovim nalazima.

Parametri citostaze i citotoksičnosti su u skladu sa očekivanim vrednostima [1] i potvrđeni su sličnim studijama [12, 15, 16].

#### ***Uticaj pola, starosti i pušenja na stepen genetičkih oštećenja reflektovan mirkonukleusima***

Opsežne studije sprovedene u poslednje dve dekade izdvojile su posebno konzumiranje cigareta (od spoljašnjih) i pol i starost (od unutrašnjih faktora) kao faktore koji u određenoj meri mogu uticati na bazalnu incidencu mikronukleusa [3, 5, 10, 11, 19, 20].

Naša analiza pokazala je da su srednje vrednosti određenih parametara (MNt, MN<sub>1</sub>, MN<sub>2</sub> i NB) statistički značajno više kod žena u odnosu na muškarce, što korelira sa nalazima mnogih studija [1, 5, 16-19, 21]. Porast frekvencije MN kod žena može se povezati sa povećanom tendencijom X hromozoma da uđe u sastav mikronukleusa u odnosu na ostale hromozome i činjenicom da žene, za razliku od muškaraca, imaju dva X hromozoma [21, 22]. U odnosu na starost, naša analiza pokazala je statistički značajne razlike u skoro svim posmatranim parametrima sa višim vrednostima kod starijih ispitanika. Jasne korelacije između povećanja MN učestalosti i starenja utvrđene su u nekoliko studija [6, 11, 12, 15, 16, 18]. Porast učestalosti parametara genetičkih oštećenja sa starošću može se objasniti povećanjem hromozomske nestabilnosti [11, 19]. Bez obzira na prisustvo dokazanih kancerogena u duvanskom dimu, rezultati studija o uticaju pušenja na učestalost mikronukleusa su kontroverzni. Neki autori [6, 23] našli su statistički značajan porast učestalosti MN u perifernim limfocitima osoba koje su pušile više od 30 cigareta dnevno, dok većina laboratorija uključenih u HUMN projekat [24] nije našla statistički značajne razlike između pušača i nepušača. Naši rezultati, koji ukazuju na povećanje učestalosti MN kod pušača, u skladu su sa rezultatima nekih istraživača [15, 16, 24]. Uočena razlika u nekim parametrima CBMNCyt testa između pušača i nepušača može se bar delom objasniti činjenicom da je većina naših ispitanika iz grupe pušača konzumirala više od 20 cigareta dnevno, 10 ili više godina u kontinuitetu.

Parametri citostaze nisu pokazali razlike u učestalostima u odnosu na confounding faktore. Slično je uočeno za parametre citotoksičnosti, osim za starosne kategorije, među kojima je uočena razlika u učestalosti nekrotičnih ćelija sa višim vrednostima kod starijih ispitanika. Drugi autori [15, 16] dali su slične rezultate.

Ova studija prikazuje prve rezultate određivanja bazalne incidencije parametara CBMN testa u limfocitima periferne krvi zdravih odraslih pripadnika srpske populacije, u skladu sa kriterijumima koje je prezentovao Fenech 2007. Podaci dobijeni ovom opsežnom studijom mogu biti od značaja za buduća biomonitoring istraživanja u Srbiji.

## 5. Literatura

- [1] M. Fenech. Cytokinesis-block micronucleus cytome assay. Protocol. *Nature Protocols*. 2 (2007), 1084-1104.
- [2] M. Fenech, N. Holland, W.P. Chang, E. Zeiger and S. Bonassi The HUMN project-international collaborative study on the use of the micronucleus technique for measuring DNA damage in humans. *Mutat. Res.* 428 (1999), 271-283.
- [3] M. Kirsch-Volders, T. Sofuni, M. Aardema, S. Albertini, D. Eastmond, M. Fenech et al. Report from the in vitro micronucleus assay working group. *Mutat. Res.* 35 (2000), 167-172.
- [4] D. Scott, J.B.P. Barber, E.L. Levine, W. Burrill, S.A. Roberts Radiation-induced micronucleus induction in lymphocytes identifies high frequency of radiosensitive cases among breast cancer patients: a test for predisposition. *Br. J. Cancer*. 77 (1998), 614-620.
- [5] H. Surowy, A. Rinckleb, M. Luedeke, M. Stuber, A. Wecker, D. Varga, et al. Heritability of baseline and induced micronucleus frequencies. *Mutagen* 26 (2011), 111-117.
- [6] M. Fenech The cytokinesis-block micronucleus technique and its application to genotoxicity studies in human populations. *Environ. Health. Persp. Suppl.* 101(1993), 101-107.

- [7] R.J.Albertini, J.A.Nicklas, J.P.O'Neill. Future research direction for evaluating human genetic and cancer risk from environmental exposures, *Environ. Health Persp.* 104 (1996) 503-510
- [8] International Atomic Energy Agency. Cytogenetic Dosimetry: Applications in Preparedness for and Response to Radiation Emergencies. Vienna: IAEA 2011.
- [9] S. Bonnassi, M. Fenech, C. Lando, Y.P. Lin, M. Ceppi, W.P. Chang et al. HUMAN MicroNucleus project: international database comparison for results with the cytokinesis-block micronucleus assay in human lymphocytes: I. Effect of laboratory protocol, scoring criteria and host factors on the frequency of micronuclei. *Environ. Mol. Mutagen.* 37 (2001), 31-45.
- [10] C. Bolognesi, C. Lando, A. Forni, E. Landini, R. Scarpato, L. Migliore and S. Bonassi Chromosomal damage and ageing: effect of micronuclei frequency in peripheral blood lymphocytes. *Age. Ageing.* 28 (1999), 393-397.
- [11] M.Fenech, S. Bonassi. The effect of age, gender, diet and lifestyle on DNA damage measured using micronucleus frequency in human peripheral blood lymphocytes. *Mutagen.* 26 (2011), 43-49
- [12] H. Nefic, I. Handzic. The effect of age, sex, and lifestyle factors on micronucleus frequency in peripheral blood lymphocytes of the Bosnian population. *Mutat. Res.* 753 (2013), 1-11
- [13] J.M. Battershill, K. Burnett, S. Bull Factors affecting the incidence of genotoxicity biomarkers in peripheral blood lymphocytes: impact on design of biomonitoring study. Commentary. *Mutagen.* 23 (2008), 423-437.
- [14] J. Major, M.G. Jakab and A.Tompa Genotoxicological monitoring of 175 subjects living in the green belts, inner town of near chemical estates in Greatest Budapest agglomeration. *Mutat. Res.* 412 (1998), 9-16.
- [15] H. Donmez-Altuntas and N.Bitgen Evaluation of the genotoxicity and cytotoxicity in the general population in Turkey by use of the cytokinesis-block micronucleus cytome assay. *Mutat. Res.* 748 (2012), 1-7.
- [16] V. Garaj-Vrhovac, M. Đurinec, N. Kopjar and V. Oreščanin A survey on the cytogenetic status of the Croatian general population by use of the cytokinesis-block micronucleus assay. *Mutat. Res.* 649 (2008), 91-100.
- [17] H.Ishikawa, Y. Tian and M. Yamauchi Influence of gender, age and lifestyle on micronuclei frequency in healthy Japanese population. *J. Occup. Health.* 45 (2003), 179-181.
- [18] J. Pajic, B. Rakic, D. Jovicic and A. Milovanovic. Construction of dose response calibration curves for dicentric and micronuclei for X radiation in a Serbian population. *Mutat. Res.* 773(2014), 23-28.
- [19] N. Bukvić, M.Gentile, F. Susca, M.Fanelli, G.Serio, L.Buonadona, A.Capurso and G. Guanti Sex chromosome loss, micronuclei, sister chromosome exchange and aging: a study including 16 centenarians. *Mutat. Res.* 498 (2001), 159-167.
- [20] A.Vral, M.Fenech and H.Thierens. The micronucleus assay as a biological dosimeter of in vivo ionizing radiation exposure-review. *Mutagen* 26 (2011), 11-17.
- [21] J.D.Tucker, J.Nath and J.C. Hando Activation status of the X chromosome in human micronucleated lymphocytes. *Hum. Genet.* 97 (1996), 471-475.
- [22] H. Norppa, G.C. Falck What do human micronuclei contain? *Mutagen.* 18(2003), 221-233.

- [23] S. Bonassi, D. Ugolini, M.Kirsch-Volders, U.Stromberg, R.Vermeulen and D.J. Tucker Human population studies with cytogenetic biomarkers: review of the literature and future prospective. *Environ. Mol. Mutagen.* 45 (2005), 258–270.
- [24] S.Bonassi, M.Neri, C.Lando, M. Ceppi, Y.P.Lin, W.P. Chang et al. Effect of smoking habit on the frequency of micronuclei in human lymphocytes: results from Human MicroNucleus project. *Mutat. Res.* 543 (2003), 155-166.
- [25] A.C.Antunes, V.Martins, J.Cardoso, L. Santos and O. Monteiro Gil. The cytokinesis-blocked micronucleus assay: Dose estimation and inter-individual differences in the response to  $\gamma$  radiation. *Mutat. Res.* 760 (2014), 17-22.

## MICRONUCLEI FREQUENCY IN PERIPHERAL BLOOD LYMPHOCYTES OF THE SERBIAN ADULT POPULATION: THE RESULTS OF A CYTOGENETIC BIOMONITORING STUDY

**Jelena PAJIĆ<sup>1</sup>, Boban RAKIĆ<sup>1</sup>, Dubravka JOVIČIĆ<sup>2</sup>**

1) Serbian Institute of Occupational Health “Dr Dragomir Karajović“, Belgrade, Serbia, [boban.rakic@institutkarajovic.rs](mailto:boban.rakic@institutkarajovic.rs), [jelena.pajic@institutkarajovic.rs](mailto:jelena.pajic@institutkarajovic.rs)

2) Singidunum University, Faculty of applied ecology (FUTURA), Belgrade, Serbia, [dubravka.jovicic@futura.edu.rs](mailto:dubravka.jovicic@futura.edu.rs)

3) Clinical Center of Serbia, Belgrade, Serbia, [antic.vojislav@gmail.com](mailto:antic.vojislav@gmail.com)

### **Abstract**

The cytokinesis-block micronucleus cytome assay (CBMNCyt) was used to assess the variability and determine possible influences of external and internal factors on the background levels of cytogenetic damage in peripheral blood lymphocytes (PBL) of randomly selected healthy volunteers from the general Serbian population. The mean micronuclei (MN) frequency for all subjects was  $8.31 \pm 3.88$  per 1000 binuclear (BN) cells. The number of micronuclei ranged from 1 to 21 per 1000 BN cells, while most subjects had 6 and 7 MN. The frequency of nucleoplasmic bridges (NPB) for all subjects was  $0.23 \pm 0.47$  and of nuclear buds (NB)  $3.15 \pm 1.41$ . The mean nuclear division index was  $1.63 \pm 0.18$ . The number of apoptotic cells ranged from 0 to 6 per 1000 BN cells, with a mean value of  $1.74 \pm 1.23$ , while the number of necrotic cells ranged from 0-7 per BN 1000 cells, (mean value  $2.27 \pm 1.63$ ). The canonical correlation analysis showed a positive significant correlation between the MN frequency and age, gender and smoking habits. Results of factor structure and canonical weights showed that age and gender rather than smoking habits control the incidence of MN in PBL of healthy volunteers.

## VALUES OF MICRONUCLEI AND 8-HYDROXY-2'-DEOXYGUANOSINE IN HOSPITAL WORKERS OCCUPATIONALLY EXPOSED TO IONIZING RADIATION

**Jasminka MRDJANOVIC**<sup>1</sup>, **Jan SUDJI**<sup>2</sup>, **Branislava SRDJENOVIC**<sup>3</sup>, **Sanja DOJCINOVIC**<sup>2</sup>, **Nebojsa KLADAR**<sup>3</sup>, **Biljana BOZIN**<sup>3</sup>, **Vladimir JURISIC**<sup>4</sup>

1) *Oncology Institute of Vojvodina, University of Novi Sad, Faculty of Medicine, Sremska Kamenica 21204, Republic of Serbia*

2) *Institute of Occupation Health, Novi Sad 21000, Republic of Serbia,*

3) *Department of Pharmacy, University of Novi Sad, Faculty of Medicine, Novi Sad 21000, Republic of Serbia,*

4) *Faculty of Medicine, University of Kragujevac, Kragujevac 34000, Republic of Serbia, vdvd@mailcity.com*

### ABSTRACT

Medical use of radiation represent a health risk of professionally exposed persons, since ionizing radiation can damage DNA either directly or indirectly. Therefore, the aim of this study was to determine the level of DNA damage in blood and urine from hospital workers professionally exposed to low-doses of ionizing radiation, estimated by two methods. This investigation included 20 people working in radiotherapy and 10 in bronchoscopic unit. For the control group we used material from 10 unexposed healthy volunteers. The frequency of micronuclei (MN) were analyzed by cytokinesis-block peripheral blood lymphocytes, while level of urinary 8-oxo-7,8-dihydro-2'-deoxyguanosine (8-OHdG) was analyzed by the ELISA system. Results show increase for frequency of micronuclei ( $p < 0.05$ ) and the level of 8-OHdG in the exposed group compared to the control group. In relation to the working conditions, number of micronuclei in the group of workers in bronchoscopic unit was higher ( $p < 0.05$ ) in comparison to the radiology unit, while the level of 8-OHdG was lower, without statistical significance. Obtained results have shown that hospital workers professionally exposed to low-dose of ionizing radiation had increased incidence of MN and level of 8-OHdG. The health risk depends of working conditions. Combining results of DNA damage in blood by MN test and 8-OHdG in urine within genetic monitoring studies can contribute to a more complete conclusion about assessing the risk associated with low-level radiation exposure.

# **РАДИОАКТИВНИ ОТПАД И ДЕКОНТАМИНАЦИЈА**



# COMPARATIVE STUDY OF JAPANAISE AND SERBIAN BENTONITE IN CEMENT- ION EXCHANGE RESINS-BENTONITE CLAY COMPOSITION

**Ilija PLEČAŠ<sup>1</sup>, Ivana JELIĆ<sup>2</sup>, Miloš KOSTIĆ<sup>2</sup> and Srdjan ALEKSIĆ<sup>2</sup>**

1) Vinca Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, Serbia, [iplecas@vinca.rs](mailto:iplecas@vinca.rs)

2) Faculty of Applied Ecology- Futura, Singidunum University, Belgrade, Serbia

## ABSTRACT

*To assess the safety of disposal of radioactive waste material in cement, curing conditions and time of leaching radionuclides <sup>137</sup>Cs have been studied. Leaching tests in cement-ion exchange resins-bentonite matrix, were carried out in accordance with a method recommended by IAEA. Curing conditions and curing time prior to commencing the leaching test are critically important in leach studies since the extent of hydration of the cement materials determines how much hydration product develops and whether it is available to block the pore network, thereby reducing leaching. Incremental leaching rates  $R_n$ (cm/d) of <sup>137</sup>Cs from cement-ion exchange resins-bentonite matrix after 60 days were measured. In this paper we compared two bentonite clay as sorption componente, from Japan and Serbia. The results presented in this paper are examples of results obtained in a 30-year concrete testing project which will influence the design of the engineer trenches system for future central Serbian radioactive waste disposal center.*

## 1. Introduction

### Cement-waste matrix characteristics

The objectives of immobilization are to convert the waste into forms which are:

- leach resistant, so that the release of radionuclides will be slow even in contact with flowing water,
- mechanically, physically and chemically stable for handling, transport and disposal.

Although cement has several unfavorable characteristics as a solidifying material, i.e. low volume reduction and relatively high leachability, it possesses many practical advantages: good mechanical characteristics, low cost, easy operation and radiation and thermal stability. It is generally assumed that the cement leachability of <sup>137</sup>Cs and other radionuclides can be reduced by adding minerals like bentonite and zeolite. Bentonite is a type of clay mineral formed by the earth from volcanic ash and lava deposited on the bottoms of seas and lakes. Bentonite is an [absorbent aluminium phyllosilicate](#), essentially impure [clay](#) consisting mostly of [montmorillonite](#). There are different types of bentonite, each named after the respective dominant [element](#), such as [potassium](#) (K), [sodium](#) (Na), [calcium](#) (Ca), and [aluminum](#) (Al). The montmorillonite crystals of bentonite have a specific structure that provides various useful sorption characteristics. Bentonite is one of the most promising candidates for use as a buffer material in the disposal systems for nuclear waste, because of its ability to retard the movement of radionuclides by adsorption. Bentonite is characterized by a low hydraulic conductivity and excellent adsorption capacity for cationic radionuclides, but is generally ineffective in adsorbing anionic contaminants. Natural zeolites were the first material to be used in ion exchange process. In addition to being ion exchangers, natural, mineral inorganic materials can also act as adsorbents. Bentonite clay, (montmorillonit), had empirical

formula:  $(\text{Na,Ca})_{0,3}(\text{Al,Mg})_2\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2 \cdot n(\text{H}_2\text{O})$ , (43%  $\text{SiO}_2$  ; 19%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ; 4%  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  ; 2,6%  $\text{MgO}$ , 36 %  $\text{H}_2\text{O}$  and 3,3%  $\text{CaO}$ ).

The spent Ion exchange resin has active groups in the form of electrically charged sites. At these sites ions of opposite charge are attached but may be replaced by other ions depending on their relative concentrations and affinities for the sites. Spent cation exchange resins containing  $^{60}\text{Co}$  and represent a major portion of the solid radioactive waste in nuclear technology [1,2,3,4,5]. Cement is used as a solidification material for the storage of intermediate-level radioactive waste. However, the retention of radionuclides, especially cesium, in the cement matrix is negligible. The sorption of cesium on cement is low and diffusivity of cesium in the hydrated cement is high. Only when the cement is mixed with a material having a significant sorption capacity, normally bead or powdered ion exchange resins, is the leachability of cesium and cobalt from the cement matrix low enough to be acceptable.

Although cement has several unfavorable characteristics as a solidifying material, i.e. low volume reduction and relatively high leachability, it possesses many practical advantages: good mechanical characteristics, low cost, easy operation and radiation and thermal stability [7,8,9].

It is generally assumed that the cement leachability of  $^{137}\text{Cs}$  and other radionuclides can be reduced by adding minerals like bentonite, vermiculite and clinoptilolite.

Curing time is critically important in leach studies since the extent of cement hydration determines how much hydration products develops and whether it is available to block the pore network ,thereby reducing leaching: The aim of this work is to describe leaching rate functional dependence of the cement curing time [8].

## 2. Materials, Methods and Experimental Conditions and Results

The cement specimens were prepared from construction cement which is basically a standard Portland cement, Portland cement, PC-20-Z-45 MPa. The cement was mixed with saturated wet cation exchange resins,(100gr. of dry resins +100 gr. of water containing  $^{137}\text{Cs}$ ) and two bentonite clay, from Srebia, A, and from Japan, B. (63%  $\text{SiO}_2$  ; 18%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ; 4%  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  ; 2,6%  $\text{MgO}$  and 3,3%  $\text{CaO}$ ). The mixtures of components were cast into 50 mm diameter cylindrical molds with a height of 50 mm, which were then sealed and cured for 30 and 60 days prior to the leaching experiments. More than 100 different formulations of mortar form were examined to optimize their mechanical and sorption properties. In this paper we discuss twelve representative formulations. Grout composition formulas are shown in Table1.

Samples for leachability determination were prepared according to the IAEA standard Procedure“(Hespe,1971)”[6]. All prepared samples, were stored in laboratory at ambient temperature ( $25 \pm 3$  °C) for 30 and 60 days curing time. Leachant was exchanged and analyzed for radioactivity after:1,7,14, 28 and 60days. After each leaching period the radioactivity in the leachant was measured using EG&G- ORTEC spectrometry system and software.The volume of the leachant in every leaching period was  $200 \text{ cm}^3$ .

The results are expressed by incremental leaching rates  $R_n(\text{cm/d})$ .

$$R_n = \frac{\sum a_n V}{A_0 S} \frac{1}{\sum t} \text{ (cm/d)} \quad (1)$$

where :  $a_n$  - the radioactivity of leached constituent during each leaching interval (Bq),  $A_0$  - the specific radioactivity initially present in the specimen (Bq),  $S$  - the exposed surface area of the specimen ( $\text{cm}^2$ ),  $V$  - the sample volume ( $\text{cm}^3$ ),  $t$  - the duration of the leaching period ,180 (d).

**Table1. Grout Composition (calculated as grams for 1000  $\text{cm}^3$  of mixtures)**

Materials	M <sub>1</sub>	M <sub>2</sub>	M <sub>3</sub>	M <sub>4</sub>	M <sub>5</sub>	M <sub>6</sub>	M <sub>7</sub>	M <sub>8</sub>	M <sub>9</sub>	M <sub>10</sub>	M <sub>11</sub>	M <sub>12</sub>
(g)												
cation exc.	360	345	330	310	290	270	360	345	330	310	290	270
Resines (g)												
Portland cement	130	132	133	1350	136	137	1300	132	133	135	136	137
(g)		0	5		0	0		0	5		0	0
Water	260	280	290	300	310	330	260	280	290	300	310	330
(ml)												
Bentonite clay,	13	41	66	13,5	42	68	-	-	-	-	-	-
A (g)			(			(						
	*)	(3*)	5*)	(1*)								
					(3*)	5*)						
Bentonite clay,	-	-	-	-	-	-	13	41	66	13,5	42	68
B (g)							(1*)	(3*)	(5*)	(1*)	(3*)	(5*)
Initial activity												
A <sub>0</sub>												
(Bq <sup>137</sup> Cs per												
sample)								7.0·10 <sup>7</sup>				

Table 2, Table 3, Table 4, Table 5, Table 6, and Table 7, presents " Effect of curing time on the leach rate of <sup>137</sup>Cs from cement-waste matrix", for different grout composition and different bentonite.

**Table 2. Effect of curing time on the Incremental leaching rate of  $^{137}\text{Cs}$  from cement, Sample  $M_1$  and  $M_7$  ( same composition except bentonite, 13g. )**

Cumulative time leached (days)	Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_1$		Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_7$	
	30 days cured	60 days cured	30 days cured	60 days cured
1	$6.21 \cdot 10^{-6}$	$6.41 \cdot 10^{-6}$	$6.35 \cdot 10^{-6}$	$6.61 \cdot 10^{-6}$
7	$6.31 \cdot 10^{-6}$	$6.51 \cdot 10^{-6}$	$6.42 \cdot 10^{-6}$	$6.58 \cdot 10^{-6}$
14	$7.40 \cdot 10^{-6}$	$7.59 \cdot 10^{-6}$	$7.52 \cdot 10^{-6}$	$7.63 \cdot 10^{-6}$
28	$8.20 \cdot 10^{-6}$	$8.50 \cdot 10^{-6}$	$8.66 \cdot 10^{-6}$	$8.70 \cdot 10^{-6}$
60	$9.00 \cdot 10^{-6}$	$9.60 \cdot 10^{-6}$	$9.46 \cdot 10^{-6}$	$9.90 \cdot 10^{-6}$

**Table 3. Effect of curing time on the Incremental leaching rate of  $^{137}\text{Cs}$  from cement, Sample  $M_2$  and  $M_8$  ( same composition except bentonite, from Srebia, A, and from Japan, B 42g.)**

Cumulative time leached (days)	Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_2$		Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_8$	
	30 days cured	60 days cured	30 days cured	60 days cured
1	$4.60 \cdot 10^{-6}$	$4.69 \cdot 10^{-6}$	$4.85 \cdot 10^{-6}$	$4.65 \cdot 10^{-6}$
7	$5.42 \cdot 10^{-6}$	$5.51 \cdot 10^{-6}$	$5.23 \cdot 10^{-6}$	$5.42 \cdot 10^{-6}$
14	$5.63 \cdot 10^{-6}$	$5.80 \cdot 10^{-6}$	$5.60 \cdot 10^{-6}$	$5.73 \cdot 10^{-6}$
28	$6.30 \cdot 10^{-6}$	$7.30 \cdot 10^{-6}$	$6.16 \cdot 10^{-6}$	$7.06 \cdot 10^{-6}$
60	$7.40 \cdot 10^{-6}$	$8.00 \cdot 10^{-6}$	$6.48 \cdot 10^{-6}$	$7.36 \cdot 10^{-6}$

**Table 4. Effect of curing time on the Incremental leaching rate of  $^{137}\text{Cs}$  from cement, Sample  $M_3$  and  $M_9$  ( same composition except bentonite, from Srebia, A, and from Japan, B 66g.)**

Cumulative time leached (days)	Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_3$		Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_9$	
	30 days cured	60 days cured	30 days cured	60 days cured
1	$1.32 \cdot 10^{-6}$	$1.37 \cdot 10^{-6}$	$2.63 \cdot 10^{-6}$	$2.83 \cdot 10^{-6}$
7	$2.20 \cdot 10^{-6}$	$2.28 \cdot 10^{-6}$	$2.89 \cdot 10^{-6}$	$2.95 \cdot 10^{-6}$
14	$2.50 \cdot 10^{-6}$	$2.60 \cdot 10^{-6}$	$3.16 \cdot 10^{-6}$	$3.32 \cdot 10^{-6}$
28	$3.15 \cdot 10^{-6}$	$3.30 \cdot 10^{-6}$	$3.29 \cdot 10^{-6}$	$3.44 \cdot 10^{-6}$
60	$3.23 \cdot 10^{-6}$	$3.43 \cdot 10^{-6}$	$3.63 \cdot 10^{-6}$	$3.76 \cdot 10^{-6}$

**Table 5. Effect of curing time on the Incremental leaching rate of  $^{137}\text{Cs}$  from cement, Sample  $M_4$  and  $M_{10}$  ( same composition except bentonite, from Srebia, A, and from Japan, B 13,5g.)**

Cumulative time leached (days)	Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_4$		Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_{10}$	
	30 days cured	60 days cured	30 days cured	60 days cured
1	$6.36 \cdot 10^{-6}$	$6.62 \cdot 10^{-6}$	$6.24 \cdot 10^{-6}$	$6.45 \cdot 10^{-6}$
7	$6.45 \cdot 10^{-6}$	$6.59 \cdot 10^{-6}$	$6.33 \cdot 10^{-6}$	$6.54 \cdot 10^{-6}$
14	$7.52 \cdot 10^{-6}$	$7.65 \cdot 10^{-6}$	$7.42 \cdot 10^{-6}$	$7.62 \cdot 10^{-6}$
28	$8.68 \cdot 10^{-6}$	$8.74 \cdot 10^{-6}$	$8.23 \cdot 10^{-6}$	$8.54 \cdot 10^{-6}$
60	$9.49 \cdot 10^{-6}$	$9.93 \cdot 10^{-6}$	$9.30 \cdot 10^{-6}$	$9.63 \cdot 10^{-6}$

**Table 6. Effect of curing time on the Incremental leaching rate of  $^{137}\text{Cs}$  from cement, Sample  $M_5$  and  $M_{11}$  ( same composition except bentonite, from Srebia, A, and from Japan, B 42g.)**

Cumulative time leached (days)	Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_5$		Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_{11}$	
	30 days cured	60 days cured	30 days cured	60 days cured
1	$4.45 \cdot 10^{-6}$	$4.55 \cdot 10^{-6}$	$4.30 \cdot 10^{-6}$	$4.29 \cdot 10^{-6}$
7	$5.33 \cdot 10^{-6}$	$5.43 \cdot 10^{-6}$	$5.27 \cdot 10^{-6}$	$5.37 \cdot 10^{-6}$
14	$5.70 \cdot 10^{-6}$	$5.73 \cdot 10^{-6}$	$5.63 \cdot 10^{-6}$	$5.70 \cdot 10^{-6}$
28	$6.26 \cdot 10^{-6}$	$7.06 \cdot 10^{-6}$	$6.23 \cdot 10^{-6}$	$6.50 \cdot 10^{-6}$
60	$6.58 \cdot 10^{-6}$	$7.38 \cdot 10^{-6}$	$6.41 \cdot 10^{-6}$	$6.20 \cdot 10^{-6}$

**Table 7. Effect of curing time on the Incremental leaching rate of  $^{137}\text{Cs}$  from cement, Sample  $M_6$  and  $M_{12}$  ( same composition except bentonite, from Srebia, A, and from Japan, B 68g.)**

Cumulative time leached (days)	Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_6$		Incremental leaching rates $R_n(\text{cm/d})$ $M_{12}$	
	30 days cured	60 days cured	30 days cured	60 days cured
1	$2.61 \cdot 10^{-6}$	$2.80 \cdot 10^{-6}$	$1.35 \cdot 10^{-6}$	$1.40 \cdot 10^{-6}$
7	$2.84 \cdot 10^{-6}$	$2.94 \cdot 10^{-6}$	$2.22 \cdot 10^{-6}$	$2.32 \cdot 10^{-6}$
14	$3.10 \cdot 10^{-6}$	$3.30 \cdot 10^{-6}$	$2.60 \cdot 10^{-6}$	$2.70 \cdot 10^{-6}$
28	$3.25 \cdot 10^{-6}$	$3.40 \cdot 10^{-6}$	$3.10 \cdot 10^{-6}$	$3.33 \cdot 10^{-6}$
60	$3.60 \cdot 10^{-6}$	$3.73 \cdot 10^{-6}$	$3.28 \cdot 10^{-6}$	$3.53 \cdot 10^{-6}$

### 3. Conclusion

All results exhibit practically the same general characteristics. An enhanced initial period of leaching occurs during the first 25-30 days or so, followed by a distinct reduction in the leach rate which is broadly maintained up to the long period of leaching. The leach behaviour of cement-mortar materials can be explained as a combination of two processes; surface wash-off, which is not diffusion controlled, followed by a static diffusion stage. Enhanced initial period of leaching can be explained in terms of a rapid equilibrium being established between spaces present in the surface pores of the Portland cement and ions in solution in the leachant; hence the term wash-off. It is this second stage which is controlled by diffusion and which dominates the long-term leaching behaviour of the material. Under these circumstances the effect of increased curing time on the diffusion coefficient becomes apparent.

In this paper we also prove that increasing amount of bentonite cause a significant reduction in the leaching rate, because of bentonite good sorption characteristics and ion selectivity.

Results presented in this paper are examples of results obtained in a 30-year concrete testing project which will influence the design of the engineer trenches system for future central Serbian radioactive waste storing center.

### Acknowledgements

Work is supported by the Ministry of Science and Technologies of the Republic of Serbia.

### References

- [1] H. Christensen, Cement Solidification of BWR and PWR Bead Resins", Proc.Int.Conf. Waste Management '81, Tucson, USA, feb.23-26, 1981, 545-548.
- [2] T. Matschei, B. Lothenbach and F.P. Glasser, "The role of calcium carbonate in Cement hydration" *Cement and Concrete Research*, 37(4) (2007) 551-558.
- [3] T. Matschei, B. Lothenbach and F.P. Glasser, "The AFm phase in Portland cement" *Cement and Concrete Research*, 37(2) (2007) 118-130.
- [4] H. Christensen, "Leaching of Cesium from Cement Solidified BWR and PWR Bead Resins", *Nuclear and Chemical Waste Management*, 3 (1982)105-108.
- [5] R.W. Crawford, "Diffusion Mechanisms and Factors Affecting Leaching of <sup>134</sup>Cs from Cement-Based Waste Matrices", *RWMADW* 6 (1985) 177-196.
- [6] E. D. Hesse, "Leach Testing of Immobilized Radioactive Waste Solids", *Atomic Energy Review* 9 (1971) 195-207.
- [7] I. Plecas, "Effect of Curing Time on the Fraction of <sup>137</sup>Cs Leached from Cement Matrix", *J.Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Letters*, 200(1) (1985) 25-29.
- [8] I. Plecas, R. Pavlovic and S. Pavlovic "Effect of Curing Time on the Fraction of <sup>137</sup>Cs from Cement Matrix", Proceedings on the 6 International Symposium "Conditioning of Radioactive Operational -Decommissioning Wastes" KONTEC - 2003, Berlin, Germany, march,19-21. 2003, 809-811.
- [9] F. P. Glasser, "Fundamental aspects of cement solidification and stabilisation" *Journal of Hazardous Materials* 52 (1997) 151-170.

## POREDENJE JAPANSKIH I SRPSKIH BENTONITA U KOMPOZICIJI CEMENT-JONOIZMENJIVAČKA SMOLA- BENTONITNA GLINA

**Ilija PLEĆAŠ<sup>1</sup>, Ivana JELIĆ<sup>2</sup>, Miloš KOSTIĆ<sup>2</sup> and Srdjan ALEKSIĆ<sup>2</sup>**

*1) Institut za Nuklearne Vinča, Beograd, Srbija, [iplecas@vinca.rs](mailto:iplecas@vinca.rs)*

*2) Fakultet za primenjenu ekologiju-Futura, Univerzitet Singidunum, Beograd, Srbija*

### SAŽETAK

Da bi se procenila bezbednost odlaganje radioaktivnog otpadnog materijala u cementu, proučavan je stepen izluživanja radionuklida  $^{137}\text{Cs}$ . Testovi izluživanja radjeni su za kompoziciju cementa-jonoizmenjivačke smole i bentonita i sprovedene su u skladu sa postupkom preporučenog od IAEA. Vreme sušenja pre otpočinjanja ličing testa je od suštinske važnosti u studijama izluživanja, jer uticaj hidratacije cementa određuje koliko se hidratacija proizvoda razvija i da li je od uticaja na blokadu pora, čime se smanjuje curenje radionuklida iz matriksa . U ovom radu poredjena su dva bentonita kao sorpcione komponente, iz Japana i Srbije . Rezultati prikazani u ovom radu su primeri rezultata 30-godišnjeg projekta sistema inženjerskih rovova za buduće srpsko centralno odlagalište radioaktivnog otpada.



# OPTIMIZACIJA HEMIJSKOG SASTAVA RASTVORA ZA SIMULTANU EKSTRAKCIJU JONA $\text{Co}^{2+}$ I $\text{Sr}^{2+}$ IZ KONTAMINIRANOG ZEMLJIŠTA

**Slavko DIMOVIĆ, Marija ŠLJIVIĆ-IVANOVIĆ, Ivana SMIČIKLAS, Aleksandra FRIEDRICH**

*Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Beograd, Srbija*

## *Sadržaj*

*Remedijacija zemljišta kontaminiranih radionuklidima se može obaviti korišćenjem niza različitih tehnika. Ako su polutanti labilnije vezani, metoda hemijske ekstrakcije je pogodna za prečišćavanje zemljišta. U ovom radu je ispitana simultana desorpcija jona  $\text{Sr}^{2+}$  i  $\text{Co}^{2+}$  iz veštački kontaminiranog zemljišta sa lokaliteta Instituta za nuklearne nauke "Vinča" u cilju definisanja adekvatnog reagensa za remedijaciju zemljišta metodom hemijske ekstrakcije. Kao rastvori za izluživanje korišćene su neorganske kiseline različitih koncentracija ( $\text{HCl}$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  i  $\text{HNO}_3$ ), rastvori  $\text{Ca}^{2+}$  soli, destilovana voda i organski ligandi (etilendiamintetrasirćetna kiselina -EDTA, dinatrijumova so etilendiamintetrasirćetne kiseline -  $\text{Na}_2\text{EDTA}$ , sirćetna i limunska kiselina). Zanimljiva desorpcija  $\text{Co}^{2+}$  jona i relativno niska desorpcija  $\text{Sr}^{2+}$  (10-30 %) je ustanovljena u destilovanoj vodi, 0,001 mol/L rastvorima neorganskih kiselina i u 0,01 mol/L limunskoj kiselini. U 0,1 mol/L rastvoru  $\text{Ca}^{2+}$  jona, desorpcija  $\text{Sr}^{2+}$  je efikasnija (oko 80 %), ali je niska količina izluženog kobalta (10 %). Nasuprot tome, desorpcija oba katjona bila je efikasna u rastvorima EDTA,  $\text{Na}_2\text{EDTA}$ , sirćetne kiseline (pH=2,8) i 0,1 mol/L HCl. S obzirom na mogućnost regeneracije EDTA, kao i biorazgradljivost sirćetne kiseline, ova dva reagensa su optimalna za simultanu desorpciju  $\text{Co}^{2+}$  i  $\text{Sr}^{2+}$  jona sa ispitanog kontaminiranog zemljišta.*

## **1. Uvod**

Tečni radioaktivni otpad sadrži niz radionuklida nastalih u normalnom radu nuklearnih elektrana. Takođe, nuklearne probe, akcidenti i upotreba radionuklida u industriji, medicini i nauci dovode do akumulacije radioizotopa u životnoj sredini. Među najznačajnijim radionuklidima prisutnim u tečnom radioaktivnom otpadu su  $^{60}\text{Co}$  i  $^{90}\text{Sr}$ .  $^{60}\text{Co}$  je korozioni produkt sa vremenom poluraspada od 5,3 godina. Nasuprot  $^{60}\text{Co}$  koji je  $\gamma$ -emiter,  $^{90}\text{Sr}$  je  $\beta$ -emiter sa vremenom poluraspada od 29 godina. Ova dva radionuklida su često prisutna zajedno u tečnom radioaktivnom otpadu, a njihova aktivnost je značajna i nakon dužeg vremenskog perioda.

Pri različitim akcidentnim situacijama, tečni radioaktivni otpad može dospeti u zemljište i tada je remedijacija neophodna. Hemijska ekstrakcija radionuklida iz zemljišta je najčešće tehnika *ex situ*, a zasniva se na ekstrahovanju polutanata korišćenjem različitih hemijskih agenasa i pogodna je u slučajevima kada su kontaminanti labilno vezani za komponente zemljišta. Kao rastvori za izluživanje najčešće se koriste rastvori neorganskih kiselina, organskih liganada (etilendiamintetrasirćetna kiselina-EDTA, citrati, oksalati, i dr.), kao i rastvori neorganskih soli (na pr.  $\text{CaCl}_2$ ) [1]. Eksperimentima koji definišu specijaciju metala u zemljištu određuje se jačina veza, a time i mobilnost i biodostupnost metala. Stroncijum je metal najčešće akumuliran u jonoizmenljivoj i karbonatnoj fazi zemljišta [2-6], te je zbog svoje visoke mobilnosti potencijalno vrlo toksičan. Joni  $\text{Co}^{2+}$  u zemljištu pokazuju manju mobilnost, jer su uglavnom sadržani u oksidima gvožđa i mangana, kao i rezidualnoj frakciji [3].

U našoj prethodnoj studiji, zemljište sa lokaliteta Instituta Vinča je kontaminirano jednokomponentnim rastvorima jona  $\text{Co}^{2+}$  i  $\text{Sr}^{2+}$  [3], a desorpcija metala sa zemljišta je ispitana korišćenjem rastvora  $\text{HCl}$ ,  $\text{CaCl}_2$ , EDTA, limunske i vinske kiseline različitih koncentracija i pH vrednosti. Desorpcija  $\text{Sr}^{2+}$  je bila najznačajnija u rastvorima koji sadrže  $\text{Ca}^{2+}$  jone i EDTA, dok je izluživanje  $\text{Co}^{2+}$  bilo najefikasnije u rastvorima citrata i tartarata. S obzirom da realni tečni otpad uvek predstavlja složenu smešu različitih radionuklida, u ovom radu je ispitano izluživanje jona  $\text{Sr}^{2+}$  i  $\text{Co}^{2+}$  različitim hemijskim agensima iz zemljišta kontaminiranog ekvimolarnom dvokomponentnom smešom ovih metala. Glavni cilj je rada bio je da se ispita mogućnost remedijacije zemljišta metodom hemijske ekstrakcije, odnosno da se selektuju hemijski reagensi koji efikasno desorbuju oba jona iz zemljišta.

## 2. Eksperimentalni deo

Kompozitni uzorak zemljišta je uzet sa površine od  $1 \text{ m}^2$  i dubine 20 cm, unutar Instituta za nuklearne nauke Vinča. Zemljište je sušeno 10 dana, na ambijentalnom vazduhu i temperaturi, a zatim usitnjeno, homogenizovano i prosejano. Frakcija sitnija od 2 mm je korišćena u eksperimentima.

Ispitivanje svojstva ovog uzorka zemljišta pokazalo je da se radi o slabo baznom zemljištu (pH 7,99), sa niskim sadržajem karbonata (5,39%) i dostupnog fosfora (7,4 mg  $\text{P}_2\text{O}_5$  na 100 g zemljišta), a kapacitet katjonske izmene iznosi 13 meq/100g [2].

Zemljište je kontaminirano neaktivnim  $\text{Co}^{2+}$  i  $\text{Sr}^{2+}$  jonima tako što je 100 g zemljišta uravnotežavano sa ekvimolarnom smešom soli  $\text{Co}(\text{NO}_3)_2$  i  $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$  ukupne koncentracije 0,003 mol/L i zapremine 2 L. Proces mešanja smeše zemljište/rastvor metala, u otvorenom sudu, trajao je mesec dana. Nakon toga, zemljište je odvojeno od rastvora metala ceđenjem i osušeno na vazduhu na sobnoj temperaturi. Izmerena je koncentracija metala u rastvoru pre i posle kontakta sa zemljištem i definisana je sorbovana količina datih jona.

Zatim je ispitano izluživanje sorbovanih jona korišćenjem različitih hemijskih agenasa: destilovane vode, 0,001 mol/L i 0,1 mol/L  $\text{HCl}$ , 0,001 mol/L  $\text{HNO}_3$  i  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , sirćetne kiseline pH=2,8 (TCLP 2) [7], 0,01 mol/L i 0,1 mol/L  $\text{Na}_2\text{EDTA}$ , 0,01 mol/L natrijum-citrata, 0,1M  $\text{CaCl}_2$  i  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ . Takođe je napravljen rastvor  $\text{H}_2\text{EDTA}$  koncentracije 0,05 mol/L, koji je presićen, a za desorpciju je korišćen zasićen rastvor iznad taloga. Izluživanje je ispitano u šaržnom sistemu gde je 0,5 g kontaminiranog zemljišta pomešano sa 20 mL rastvora za izluživanje i uravnotežavano tokom 24 h, na horizontalnom šejkeru (120 rpm) i sobnoj temperaturi. Suspenzije su filtrirane kroz filter papir plava traka, a u filtratu su izmerene desorbovane koncentracije jona  $\text{Co}^{2+}$  i  $\text{Sr}^{2+}$  metodom atomske absorpcione spektrometrije (AAS), na instrumentu Perkin-Elmer Analyst 3100.

## 3. Rezultati i diskusija

Na osnovu izmerenih koncentracija rastvora metala pre i nakon uravnotežavanja sa zemljištem, izračunato je da je tokom faze kontaminacije sorbovano 0,030 mmol  $\text{Co}^{2+}$ /g i 0,016 mmol  $\text{Sr}^{2+}$ /g zemljišta. Dobijene vrednosti su uporedive sa vrednostima dobijenim ispitivanjem sorpcije  $\text{Co}^{2+}$  i  $\text{Sr}^{2+}$  jona iz jednokomponentnih rastvora iste inicijalne koncentracije [3].

Rezultati desorpcionih eksperimenata pokazuju različit efekat primenjenih reagenasa (Slika 1), usled razlika u hemijskim svojstvima ispitivanih jona, kao i rastvora za izluživanje. Takođe, efikasnost korišćenog hemijskog agensa zavisi i od distribucije

metala u ispitanom zemljištu. Naime, prethoda ispitivanja [3] su pokazala da zemljište sa lokaliteta Instituta Vinča, kontaminirano jednokomponentnim rastvorima  $\text{Sr}^{2+}$  i  $\text{Co}^{2+}$  koncentracije 0,0015 mol/L, sa vremenom starenja od 30 dana, sadrži  $\text{Sr}^{2+}$  jone prvenstveno u jonoizmenjivačkoj (78%) i karbonatnoj frakciji (15%). Specijacija  $\text{Co}^{2+}$  jona u zemljištu kontaminiranom pri datim uslovima je pokazala da je ovaj radionuklid prvenstveno vezan za okside gvožđa i mangana (45%), dok je 33% u karbonatnoj, 13% u jonizmenjivačkoj i 8% u organskoj fazi [3].

U literaturi se mogu naći mnogobrojne studije ekstrakcije metala iz kontaminiranog zemljišta, izvedene u laboratorijskim uslovima, kao i na terenu, s tim što je značajno veća pažnja usmerena na ispitivanje izluživanja teških metala nego radionuklida. Generalno, zagađivači koji se pretežno nalaze u jonoizmenjivačkoj, karbonatnoj fazi i vezani za Fe, Mn-oksidi, okarakterisani kao pogodni za uklanjanje metodom hemijske ekstrakcije [8], što se odnosi na kontaminirano zemljište koje je predmet ove studije.

Najizraženija desorpcija  $\text{Sr}^{2+}$  jona je u rastvoru 0,1 mol/L  $\text{Na}_2\text{EDTA}$  (94,5%), dok je desorpcija  $\text{Co}^{2+}$  jona najintenzivnija u zasićenom rastvoru  $\text{H}_2\text{EDTA}$  (85%) i 0,1 mol/L  $\text{Na}_2\text{EDTA}$  (80%). Zasićeni rastvor  $\text{H}_2\text{EDTA}$  ukloni i oko 75%  $\text{Sr}^{2+}$  jona iz zemljišta. Publikovano je da je 0,1 mol/L EDTA veoma efikasna u remedijaciji zemljišta hemijskom ekstrakcijom jer može da ukloni jone iz svih nerežidualnih frakcija što su pokazali Wuana i saradnici (2010) [9] primenom EDTA na zemljište kontaminirano teškim metalima (Ni, Cu, Zn, Cd i Pb) kao i Smičiklas i saradnici (2015) [3] primenom na zemljište kontaminirano jonima  $\text{Co}^{2+}$  i  $\text{Sr}^{2+}$ . Efikasnost primene  $\text{Na}_2\text{EDTA}$  značajno opada sa smanjenjem koncentracije, te se u 0,01 mol/L  $\text{Na}_2\text{EDTA}$  desorbovalo samo 24%  $\text{Sr}^{2+}$  jona i 55% jona  $\text{Co}^{2+}$ .

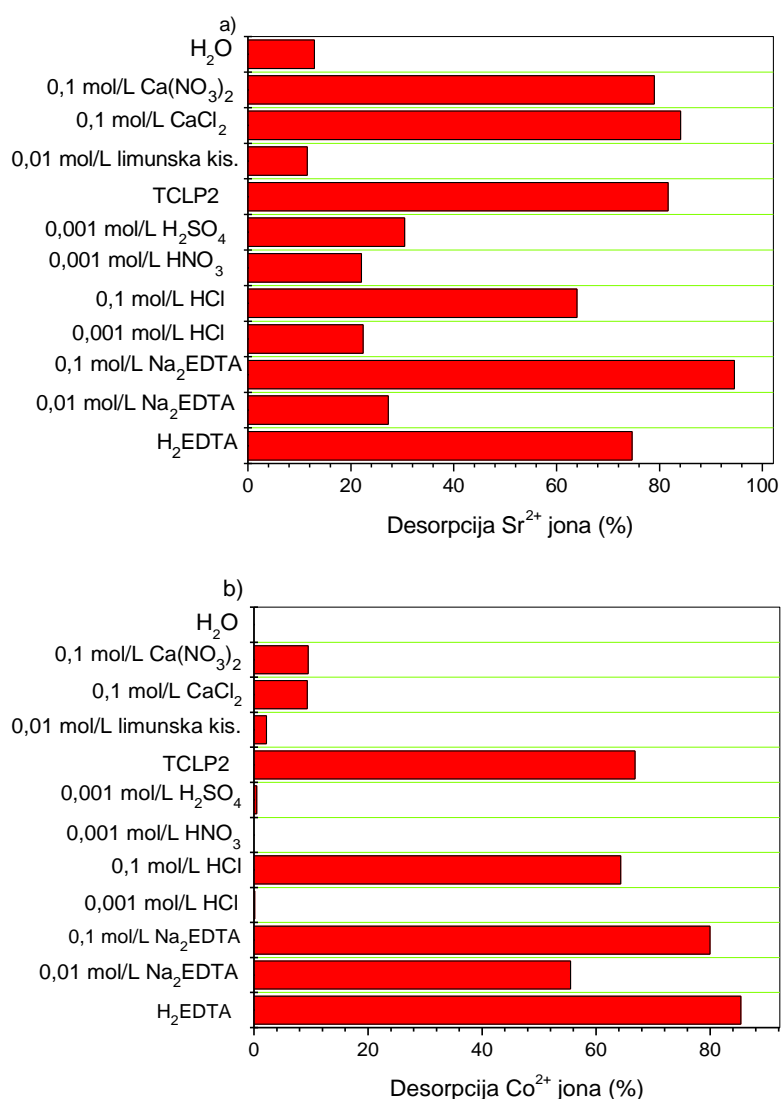
Visoki procenat desorpcije  $\text{Sr}^{2+}$  jona dobijen je korišćenjem 0,1 mol/L rastvora  $\text{CaCl}_2$ , odnosno  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$  (84% i 80%). Nasuprot tome, desorpcija jona  $\text{Co}^{2+}$  u ovim rastvorima za izluživanje je veoma niska i iznosi oko 10%. Razlog različitog efekta  $\text{Ca}^{2+}$  jona na izluživanje ispitanih radionuklida leži u činjenici da su joni  $\text{Sr}^{2+}$  hemijski daleko sličniji jonima  $\text{Ca}^{2+}$ . Kao posledica hemijske sličnosti, u prisustvu  $\text{Ca}^{2+}$  jona manja je sorpcija [10], a veća desorpcija jona  $\text{Sr}^{2+}$  [11]. Poređenjem desorbovanih količina i zastupljenosti jona u jonoizmenjivačkoj fazi, zaključuje se da rastvori koji sadrže  $\text{Ca}^{2+}$  jone u koncentraciji 0,1 mol/L predstavljaju efikasne agense za uklanjanje celokupne količine dvovalentnih radionuklida akumuliranih u ovoj frakciji.

Kao organski ligandi, pored EDTA rastvora, često se koriste i organske kiseline kratkog ugljeničnog niza. U ovoj studiji korišćen je rastvor sirćetne kiseline označen kao TCLP2, koji je od strane EPA definisan kao rastvor za određivanje toksičnosti alkalnog otpada, jer simulira prirodne uslove koji vladaju na komunalnim deponijama [7].

TCLP2 se pokazao kao efikasan agens za uklanjanje  $\text{Sr}^{2+}$  jona (82%), kao i  $\text{Co}^{2+}$  jona (64%). Za razliku od sirćetne kiseline, limunska je manje efikasna i uklanja 12%  $\text{Sr}^{2+}$  i oko 3%  $\text{Co}^{2+}$  jona. Kako je prethodno pokazano da 0,05 mol/L limunska kiselina prouzrokuje značajnu desorpciju  $\text{Sr}^{2+}$  odnosno  $\text{Co}^{2+}$  jona (višu od 70%, odnosno 80%) [3], može se zaključiti da ekstrahovane količine značajno zavise od koncentracije ovog reagensa i/ili su funkcija pH vrednosti datih rastvora. Za desorpciju  $\text{Sr}^{2+}$  i  $\text{Co}^{2+}$  jona iz ispitanog slabo-baznog zemljišta, trebalo bi razmatrati limunsku kiselinu kao reagens samo u koncentracijama jednakim ili višim od 0,05 mol/L.

Desorpcija u neorganskim kiselinama takođe veoma varira i najveća je u rastvoru HCl inicijalne pH 1. Pri koncentraciji 0,1 mol/L, HCl desorbuje jone  $\text{Co}^{2+}$  i  $\text{Sr}^{2+}$  podjednako dobro (oko 64 %). Dobijeni procenat uklanjanja pojedinih jona je niži od desorbovanih količina iz zemljišta koje je kontaminirano samo  $\text{Sr}^{2+}$  jonima (93 %), odnosno  $\text{Co}^{2+}$

jonima (72 %) [3]. Rastvori kiselina iste polazne pH vrednosti (0,001 mol/L HNO<sub>3</sub> i HCl) izluže oko 22% Sr<sup>2+</sup> jona. Isti procenat izluživanja je postignut i primenom rastvora 0,001mol/L HCl na zemljište sa lokaliteta Vinča, kontaminiranog jonima Sr<sup>2+</sup> [3] što ukazuje da se izluživanje radiostroncijuma nesmetano odvija bez obzira na prisustvo Co<sup>2+</sup>. 0,001 mol/L H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> je kiselina iste inicijalne pH vrednosti kao i TCLP2 rastvor, ali je procenat izluživanja Sr<sup>2+</sup> jona u sumpornoj kiselini znatno niži (30%) nego u TCLP2. Nasuprot stroncijumu, joni Co<sup>2+</sup> se u rastvorima 0,001 mol/L HNO<sub>3</sub>, HCl i H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> izlužuju u zanemarljivo maloj količini. Neefikasna desorpcija u rastvorima neorganskih kiselina čije je pH>1, primećena je u slučaju kontaminacije jonima Co<sup>2+</sup> [3]. Značajno bolja desorpcija u sirćetnoj kiselini u odnosu na sumpornu kiselinu iste pH vrednosti, objašnjava se prisustvom -COOH grupa koje grade komplekse sa jonima metala i na taj način favorizuju desorpciju. U destilovanoj vodi se izlužuje oko 13 % Sr<sup>2+</sup> jona, dok su joni Co<sup>2+</sup> stabilni.



**Slika 1. Desorpcija Sr<sup>2+</sup> (a) i Co<sup>2+</sup> (b) jona u različitim rastvorima za izluživanje**

Na osnovu prethodne analize, najefikasniji agensi za hemijsku ekstrakciju ispitanih radionuklida su rastvori EDTA, 0,1 mol/L HCl i TCLP2 rastvor.

Iako je efikasnost EDTA, kao agensa za hemijsku ekstrakciju, neosporna, loše strane ovakvog postupka remedijacije su visoka cena tretmana i veoma teška biorazgradljivost ovog jedinjenja u zemljištu. Međutim, istrošeni reagens se može regenerisati i ponovo koristiti. Predložena je metoda za regeneraciju organskih liganada promenom pH vrednosti rastvora, čime se postiže taloženje soli teških metala iz rastvora organskih kompleksa [12]. Rastvor sirćetne kiseline je preporučljiv, s obzirom na biorazgradljivost ovog reagensa i nizak nivo štetnosti po životnu sredinu.

#### 4. Zaključak

U ovom radu je ispitana mogućnost primene niza hemijskih agenasa, kao rastvora za simultano izluživanje jona  $\text{Sr}^{2+}$  i  $\text{Co}^{2+}$  iz kontaminiranog zemljišta. Pokazano je da je desorpcija ispitanih jona najefikasnija u ekstremno kiseljoj sredini (pH=1), kao i u rastvorima EDTA i TCLP2. Zbog veće prisutosti u jonoizmenjivačkoj frakciji zemljišta, desorpcija jona  $\text{Sr}^{2+}$  je veoma izražena i u koncentrovanim rastvorima  $\text{Ca}^{2+}$  jona. S obzirom na mogućnost regeneracije EDTA, kao i biorazgradljivost sirćetne kiseline, ova dva reagensa su optimalna za simultanu ekstrakciju  $\text{Sr}^{2+}$  i  $\text{Co}^{2+}$  jona iz kontaminiranog zemljišta.

**Zahvalnica:** Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja republike Srbije (Projekat br. III 43009).

#### 5. Literatura

- [1] N. Bolan, A. Kunhikrishnan, R. Thangarajan, J. Kumpiene, J. Park, T. Makino, M. B. Kirkham, K. Scheckel. Remediation of heavy metal(loid)s contaminated soils – To mobilize or to immobilize? *J. Hazard. Mater.* 266 (2014) 141–166.
- [2] S. Dimović, I. Smičiklas, M. Šljivić-Ivanović, B. Dojčinović. Speciation of  $^{90}\text{Sr}$  and other metal cations in artificially contaminated soils: the influence of bone sorbent addition. *J. Soil. Sediments.* 13 (2013) 383–393.
- [3] I. Smičiklas, S. Dimović, M. Jović, A. Milenković, M. Šljivić-Ivanović. Evaluation study of cobalt(II) and strontium(II) sorption– desorption behavior for selection of soil remediation technology. *Int. J. Environ. Sci. Technol.* DOI 10.1007/s13762-015-0817-y
- [4] C. Lerouge, E. C. Gaucher, C. Tournassat, P. Negrel, C. Crouzet, A. Guerrot, A. Gautier, P. Michel, [A. Vinsot](#), [S. Buschaert](#). Strontium distribution and origins in a natural clayey formation (Callovian–Oxfordian, Paris Basin, France): A new sequential extraction procedure. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 74 (2010) 2926–2942.
- [5] J. Solecki. Investigation of  $^{85}\text{Sr}$  adsorption on selected soils of different horizons. *J. Environ. Radioact.* 82 (2005) 303–320.
- [6] I. Smičiklas, M. Jović, M. Šljivić-Ivanović, V. Mrvić, D. Čakmak, S. Dimović. Correlation of  $\text{Sr}^{2+}$  retention and distribution with properties of different soil types. *Geoderma.* 253–254 (2015) 21–29.
- [7] US EPA. Test Methods for Evaluating Solid Waste, Laboratory Manual Physical/Chemical Methods, SW-846 (3rd ed.), Washington, DC, 1999. U.S. Gov. Print. Office.
- [8] R.W. Peters. Chelant extraction of heavy metals from contaminated soils. *J. Hazard. Mater.* 66 (1999) 151–210.

- [9] R. A. Wuana, F. E. Okieimen, J. A. Imborvungu. Removal of heavy metals from a contaminated soil using organic chelating acids. *Int. J. Environ. Sci. Tech.* 7 (2010) 485–496
- [10] I. Smičiklas, A. Onjia, S. Raičević, Đ. Janačković, M. Mitrić. Factors influencing the removal of divalent cations by hydroxyapatite. *J. Hazard. Mater.* 152 (2008) 876–884.
- [11] R. L. Bunde, J. J. Rosentreter, M. J. Liszewski, C. H. Hemming, J. Welhan. Effects of calcium and magnesium on strontium distribution coefficients. *Environ. Geol.* 32 (1997) 219–229.
- [12] J.-C. Chao, A. Hong, R. W. Okey, R. W. Peters. Selection of chelating agents for remediation of radionuclide contaminated soil. P Proceedings of the Conference on Hazardous Waste Research, Snowbird, Utah, May 18-21, 1998.

### OPTIMIZATION OF LEACHING SOLUTIONS' CHEMICAL COMPOSITION FOR $\text{Co}^{2+}$ AND $\text{Sr}^{2+}$ SIMULTANEOUS EXTRACTION FROM CONTAMINATED SOIL

**Slavko DIMOVIĆ, Marija ŠLJIVIĆ-IVANOVIĆ, Ivana SMIČIKLAS, Aleksandra  
FRIEDRICH**

*University of Belgrade, Vinca Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, Serbia*

#### ABSTRACT

*Various techniques can be used for remediation of soils contaminated with radionuclides. Chemical extraction method is suitable for the decontamination if the pollutants are weakly bonded to soil components. Desorption of  $\text{Sr}^{2+}$  and  $\text{Co}^{2+}$  ions from artificially contaminated soil from the site of Vinča Institute, was investigated in this study. The main aim was to find the adequate reagent for simultaneous extraction of both investigated radionuclides. Various leaching solutions were used: differently concentrated inorganic acids ( $\text{HCl}$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  and  $\text{HNO}_3$ ), solutions containing  $\text{Ca}^{2+}$  ions, distilled water and organic ligands (ethylenediaminetetraacetic acid- EDTA, disodium ethylenediaminetetraacetate- $\text{Na}_2\text{EDTA}$ , acetic acid and citric acid). Negligible  $\text{Co}^{2+}$  desorption and relatively low  $\text{Sr}^{2+}$  desorption (10-30%) was obtained in distilled water, inorganic acids solutions with the concentration of 0.001 mol/L, as well as in 0.01 mol/L citric acid. High desorption of  $\text{Sr}^{2+}$  ions (about 80%) was obtained using 0.1 mol/L  $\text{Ca}^{2+}$  solution, but desorbed amounts of  $\text{Co}^{2+}$  ions were low (about 10%). Contrary, both cations were efficiently desorbed in EDTA and  $\text{Na}_2\text{EDTA}$  solutions, in acetic acid (pH=2.8) and in 0.1 mol/L  $\text{HCl}$ . Considering the possibility of EDTA regeneration from spent solutions, and high biodegradability of acetic acid, these two chemical reagents can be recommended as solutions for simultaneously  $\text{Co}^{2+}$  and  $\text{Sr}^{2+}$  chemical extraction from investigated soil.*

# MATHEMATICAL MODELLING OF IMMOBILIZATION OF RADIONUCLIDES $^{137}\text{Cs}$ AND $^{60}\text{Co}$ IN CONCRETE MATRIX

SLAVKO DIMOVIĆ AND ILJIA PLEĆAŠ

Vinca Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, Serbia, [iplecas@vinca.rs](mailto:iplecas@vinca.rs)

## ABSTRACT

*Transport phenomena involved in the leaching of a radioactive material from a cement composite matrix are investigated using an empirical method employing a polynomial equation. To assess the safety for disposal of radioactive waste-cement composition, the leaching of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$ , from a waste composite into a surrounding fluid has been studied. Leaching tests were carried out in accordance with a method recommended by IAEA. Determination of retardation factors,  $K_F$  and coefficients of distribution,  $k_d$ , using a simplified mathematical model for analyzing the migration of radionuclides, has been developed. Transport phenomena involved in the leaching of a radioactive material from a cement composite matrix are investigated using an empirical method employing a polynomial equation. In our experiment we have analyzed mechanism of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  leaching values during a period of 60 days. Results presented in this paper are examples of results obtained in a 25 year mortar and concrete testing project, which will influence the design of the engineered trenches system for a future central Serbian radioactive waste storage center.*

## 1. Introduction

Two fundamental concerns must be addressed when attempting to isolate low-level waste in a disposal facility on land. The first concern is isolating the waste from water, or hydrologic isolation. The second is preventing movement of the radionuclides out of the disposal facility, or radionuclide migration. Particularly, we have investigated here the latter modified scenario. Migration of radionuclides may occur when water comes into contact with low-level radioactive waste and carries the radionuclides into the surrounding soil/structure. The radionuclides are likely to migrate more rapidly when coarse-grained deposits, like sand and gravel, exist in the surrounding soil. Keeping water out of trenches reduces radionuclide migration. Disposing of low-level radioactive waste in a liquid form can increase migration of radionuclides away from the disposal facility. Liquid low-level waste has been found to be corrosive and can damage containers in which it is buried. If the liquid waste leaks from its container (concrete), it can migrate from the disposal facility" [1].

Concrete is likely to be used in considerable quantities in repository construction for high and low level wastes. The hydrated cement will contact water and generate conditions that constitute a long-term chemical barrier to radionuclide migration as a result of decreased solubility and strong adsorption. The transport rate through engineered barriers is mainly diffusion controlled, but due to the strong sorption behaviour of the materials, the diffusion rate of the radionuclides is much slower than in pure water [1,2,3,4].

In order to prevent widespread dispersion of radionuclides into the human environment, the radioactive wastes have been incorporated in several kinds of matrixes. Incorporation of the low and intermediate level waste into cement and concrete has been routinely used [1,2,5,6]. Although cement has several unfavorable characteristics as a solidifying material, i.e. low volume reduction it possesses many practical advantages.

Information about the leachability of radionuclides contained in cement-waste composites are necessary to assess their safety for storage for a period long enough to allow the radioactivity to decay to a negligible level and final disposal. The leaching process consists of physicochemical transport phenomena, in which diffusion is anticipated to play an important role, and IAEA therefore suggested that the diffusion coefficient (leach coefficient) might be used for intercomparison of leaching data [5].

## 2. Radionuclide Migration through Porous Materials and Modelling of Leaching Phenomena

The dispersion of radionuclides in porous materials, such as grout or concrete, is described using a one dimensional differential model [1,2,3].

$$D \frac{\partial^2 A}{\partial X^2} - V_v \frac{\partial A}{\partial X} - \left(1 + \frac{1-f}{f} \rho_T k_D\right) \frac{\partial A}{\partial t} = 0 \quad (1)$$

or

$$D \frac{\partial^2 A}{\partial X^2} - V_v \frac{\partial A}{\partial X} - K_F \frac{\partial A}{\partial t} = 0 \quad (1')$$

where:

$K_F$  - retardation factor

$D$  - diffusion coefficient ( $\text{cm}^2/\text{d}$ )

$A$  - concentration in liquid (Bq)

$X$  - length (cm)

$V_v$  - velocity of leachant fluid ( $\text{cm}/\text{d}$ )

$f$  - porosity (=)1

$\rho_T$  - solid density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )

$k_d$  - distribution coefficient ( $\text{ml}/\text{g}$ )

$t$  - time variable (d).

Using Laplace transformation method, Eq.(1') becomes :

$$\frac{A_n}{A_0} = \frac{1}{2} \operatorname{erf} a \left| \frac{1 - \frac{V_v t}{K_F X}}{\sqrt{\frac{V_v X}{4D_e}} \cdot \sqrt{\frac{V_v t}{K_F X}}} \right| \quad (2)$$

from which we can calculate a retardation factor,  $K_F$ . The coefficient of distribution,  $k_d$ , can be calculated:

$$k_d = \frac{(K_F - 1)f}{(1 - f)\rho_T} (=) (\text{ml}/\text{g}) \quad (3)$$

in which:  $V_v$  is average linear velocity of flow in the  $X$  direction,  $X$  is the length,  $t$  is the time and  $A_0$  are known.  $A_n$  and  $D_e$  can be determined experimentally using a leaching test procedure.[5].

For the interpretation of the results of leach tests, leach coefficient  $D_e$ , is used, and it is defined as:



$$D_e = \frac{\pi}{4} m^2 \frac{V^2}{S^2} \text{ (cm}^2/\text{d)} \quad (4)$$

where:

$D_e$  - leach coefficient (diffusion) (cm<sup>2</sup>/d) or (cm<sup>2</sup>/s);

$m$  -  $(\sum A_n/A_o) \cdot (1/\sqrt{\sum t})$ , slope of the straight line (d<sup>-1/2</sup>);

$A_o$  - initial sample activity at time zero (Bq); (Table I)

$A_n$  - activity leached out of sample after leaching time  $t$ , (Bq);

$t$  - duration of leaching renewal period (d); (1,2,3,4,5,6,7,15,30,60)

$V$  - sample volume (cm<sup>3</sup>);

$S$  - sample surface (cm<sup>2</sup>).

The development of a model that takes into account all the leaching phenomena is mathematically very complex and the resultant expression is not likely to have practical application. To overcome this problem, have adopted a semi-empirical method to obtain a model, that describes the long-term leaching characteristics of a waste component by polynomial equation. In this model, the cumulative amount of contaminant leached is expressed by:

$$f = A_o + A_1 t^{1/2} + A_2 t \quad (5)$$

where  $A_o$  is a constant representing the immediate dissolution,  $A_1$  is a constant representing the diffusion controlled transport mechanism, and  $A_2$  is a constant representing the long-term kinetically controlled dissolution.

Second partical in equation (2), represent the leach coefficient of transport mechanism,  $D_e$ (cm<sup>2</sup>/d) [6,7,8].

### 3. Experimental

Concrete samples were made of: Portland cement PC-20-Z-45 MPa; Sand, fraction 0-2 mm ; Granulate 2-4, 4-8 and 8-15 mm; Water and Bentonite clay.

The grout samples were prepared with a standard Portland cement PC-20-Z-45 MPa. The cement was mixed with artificial radioactivity of <sup>137</sup>Cs, as CsNO<sub>3</sub>,  $A_o=55-67$ (kBq), and <sup>60</sup>Co, as Co(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>,  $A_o=54-66$  (kBq). Mixing time was about ten minutes. The mixtures were cast into 50 mm diameter cylindrical molds with a height of 50 mm, which were then sealed and cured for 28 days prior to the leaching experiments. Leaching of <sup>137</sup>Cs and <sup>60</sup>Co <sup>137</sup> was studied using the method recommended by the IAEA, [5]. The duration of leachant renewal period was 30 days. After each leaching period the radioactivity in the leachant was measured using EG&G- ORTEC spectrometry system and software. More then 100 different formulations of grout form were examined to optimize their mechanical and sorption properties. In this paper, we discuss four representative formulations. Grout composition formulas are shown in Table. 1.

**Table 1. Concrete compositions (calculated as grams for 1000 cm<sup>3</sup> of concrete)**

Materials(g)	Concrete compositions			
	C <sub>I</sub>	C <sub>II</sub>	C <sub>III</sub>	C <sub>IV</sub>
Cement (Portland)	380	400	440	460
Sand, 0-2 mm	835	595	555	475
Granulate, 2-4 mm	85	66	63	50
Granulate, 4-8 mm	525	545	445	425
Granulate, 8-15 mm	460	660	820	890
Water	180	200	220	250
Bentonite clay	10	10	10	10
Initial activity A <sub>0</sub> (kBq), Per sample (95 cm <sup>3</sup> )				
<sup>60</sup> Co	60			
<sup>137</sup> Cs	65			

#### 4. Results

The results are obtained after 60 days. Using equation (4), coefficients of diffusion are calculated for four experimental samples. Using equation (2) and (3), retardation factors, K<sub>F</sub>, and distribution coefficients, k<sub>d</sub>(ml/g) are calculated. Table. 2, gives <sup>60</sup>Co and <sup>137</sup>Cs, leach coefficients in different concrete samples.

**Table 2. Leach coefficients D<sub>e</sub>(cm<sup>2</sup>/d) in different concrete samples after 60 days, using Eq.(4)**

Leach coefficient	Concrete compositions			
	C <sub>I</sub>	C <sub>II</sub>	C <sub>III</sub>	C <sub>IV</sub>
D <sub>e</sub> , <sup>60</sup> Co	3.25·10 <sup>-6</sup>	6.26·10 <sup>-6</sup>	2.13·10 <sup>-6</sup>	5.24·10 <sup>-6</sup>
D <sub>e</sub> , <sup>137</sup> Cs	5.65·10 <sup>-5</sup>	8.23·10 <sup>-5</sup>	4.65·10 <sup>-5</sup>	6.44·10 <sup>-5</sup>

Table. 3, gives the results of retardation factors, K<sub>F</sub> and coefficients of distribution, k<sub>d</sub>(ml/g), for four concrete formulations for each radionuclide, during 60 days. In accordance with what previously mentioned, the modelling of the radionuclides transport mechanism have been treated in a simplified way.

**Table 3. Retardation factor  $K_F$  and coefficients of distribution  $k_d$ (ml/g), after 60 days,  $\rho_T=2.4$  (g/cm<sup>3</sup>).  $f=0.20-0.35$**

Retard. factor	Concrete compositions			
	C <sub>I</sub>	C <sub>II</sub>	C <sub>III</sub>	C <sub>IV</sub>
$K_F, {}^{60}\text{Co}$	96.0	102.0	93,0	104.0
$k_d, {}^{60}\text{Co}$	6-15	7-16	6-13	7-16
$K_F, {}^{137}\text{Cs}$	26	36	14	29
$k_d, {}^{137}\text{Cs}$	1-5	6-10	1-5	5-9

Using the least squares procedure, for <sup>137</sup>Cs, polynomial equation yielded:

$$\begin{aligned} f(\text{C}_I) &= 3,20 \cdot 10^{-8} + 7.60 \cdot 10^{-5} t^{1/2} + 5,30 \cdot 10^{-8} t \\ f(\text{C}_{II}) &= 3,60 \cdot 10^{-8} + 3.20 \cdot 10^{-5} t^{1/2} + 4,40 \cdot 10^{-8} t \\ f(\text{C}_{III}) &= 2,30 \cdot 10^{-8} + 8.40 \cdot 10^{-5} t^{1/2} + 7,50 \cdot 10^{-8} t \\ f(\text{C}_{IV}) &= 4,30 \cdot 10^{-8} + 5.50 \cdot 10^{-5} t^{1/2} + 3,15 \cdot 10^{-8} t \end{aligned}$$

Using the least squares procedure, for <sup>60</sup>Co, polynomial equation yielded:

$$\begin{aligned} f(\text{C}_I) &= 3,20 \cdot 10^{-8} + 4.50 \cdot 10^{-5} t^{1/2} + 7,40 \cdot 10^{-8} t \\ f(\text{C}_{II}) &= 9,10 \cdot 10^{-8} + 1.23 \cdot 10^{-5} t^{1/2} + 9,50 \cdot 10^{-8} t \\ f(\text{C}_{III}) &= 6,30 \cdot 10^{-8} + 5.20 \cdot 10^{-5} t^{1/2} + 8,15 \cdot 10^{-8} t \\ f(\text{C}_{IV}) &= 6,10 \cdot 10^{-8} + 2.00 \cdot 10^{-5} t^{1/2} + 2,30 \cdot 10^{-8} t \end{aligned}$$

Fig.1. and Fig.2. present plots of  $f$  against  $t$  for leaching of <sup>137</sup>Cs and <sup>60</sup>Co from the four samples.

## 5. Conclusion

The analysis of the results presented in Table. 2 and Table. 3, shows that the values of retardation factors and coefficients of radionuclides <sup>60</sup>Co and <sup>137</sup>Cs, are similar to the literature data, and prove that the one-dimensional model can be used for calculating parameters of the migration process. We found very good similarity with leach coefficient,  $D_e$ , from our previous work [8,9]. The results well fitted to semi empirical model proposed by author [7]. A linear regression fitting the experimental results leads to minor influence of variable  $t$ , which parameter  $A_2$  is not significant in the linear regression analysis. It was therefore concluded that the dissolution rate was not a controlling factor in any of the leaching intervals. Leaching mechanism can be classified into two general categories : 1) initial washoff and 2) diffusion control. On the basis of parameters  $A_1$  and leaching coefficient  $D_e$ , [8], in different cement matrix formulations, we have noticed that leaching rate of  $\text{Cs}^{137} > \text{Co}^{60}$  which is matched with other studies [1,2,3,4]. We have also observed that  $\text{Cs}^{137}$  and  $\text{Co}^{60}$  cumulative amount of leached,  $f$ , decreased in order  $f(\text{C-II}) > f(\text{C-IV}) > f(\text{C-I}) > f(\text{C-III})$ . Good explanation of this phenomenon is based on sorption properties of sand which amount decreased in the same way.

The mathematical analysis (cumulative amount of contaminant leached) of the results presented in Fig. 1. and Fig. 2., shows that polynomial equations, (2), described quite good leaching phenomena of  $^{60}\text{Co}$  and  $^{137}\text{Cs}$ , and prove that the one-dimensional model can be used for calculating parameters of the migration process.

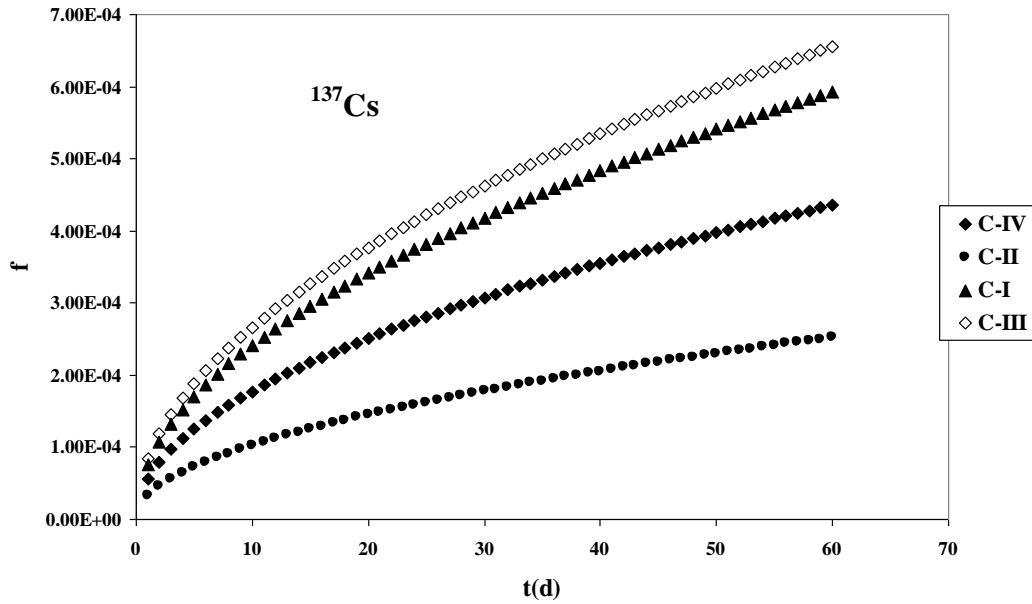


Fig. 1. Plots of  $f$  against  $t(d)$ , for leaching of  $^{137}\text{Cs}$  from the four concrete samples

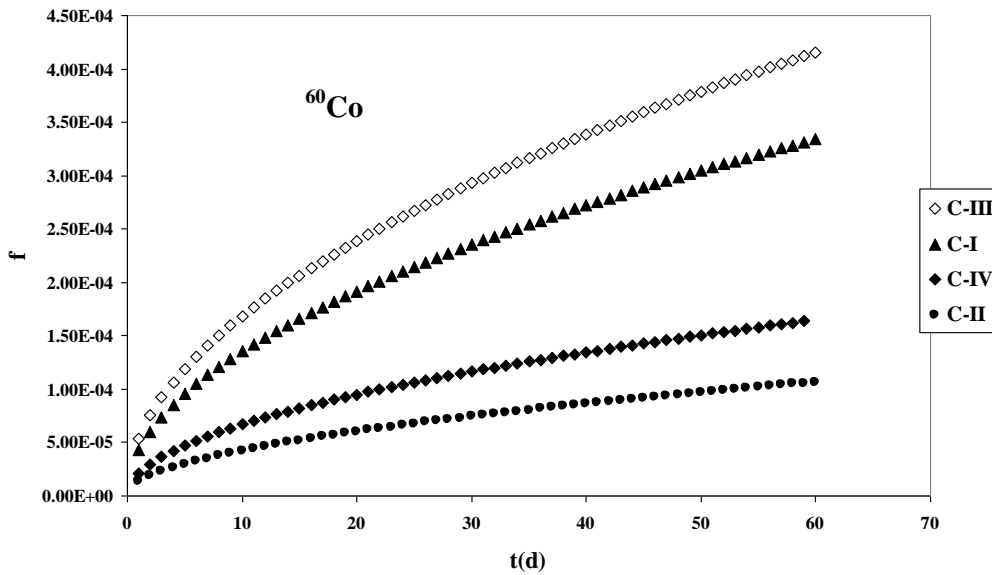


Fig. 2. Plots of  $f$  against  $t(d)$ , for leaching of  $^{60}\text{Co}$  from the four concrete samples

The system of engineered trenches permits secure preservation of radionuclides for more than 300 years in a future Serbian shallow land disposal system, with multiple safety barriers.

### Acknowledgements

Work is supported by the Ministry of Science and Technologies of the Republic of Serbia.

### References

- [1] T. Matschei, B. Lothenbach and F.P. Glasser, "The role of calcium carbonate in cement hydration" *Cement and Concrete Research*. 37(4) (2007) 551-558.
- [2] T. Matschei, B. Lothenbach and F.P. Glasser, "The AFm phase in Portland cement" *Cement and Concrete Research*. 37(2) (2007) 118-130.
- [3] H. Christensen, "Leaching of Cesium from Cement Solidified BWR and PWR Bead Resins", *Nuclear and Chemical Waste Management*. 3 (1982)105-108.
- [4] R.W. Crawford, "Diffusion Mechanisms and Factors Affecting Leaching of  $^{134}\text{Cs}$  from Cement-Based Waste Matrices", *RWMADW*. 6 (1985) 177-196.
- [5] E. D. Hespe, "Leach Testing of Immobilized Radioactive Waste Solids", *Atomic Energy Review*. 9 (1971) 195-207.
- [6] I. Plecas, "Effect of Curing Time on the Fraction of  $^{137}\text{Cs}$  Leached from Cement Matrix", *J.Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Letters*. 200(1) (1985) 25-29.
- [7] I. Plecas, R. Pavlovic and S. Pavlovic "Effect of Curing Time on the Fraction of  $^{137}\text{Cs}$  from Cement Matrix", Proceedings on the 6 International Symposium "Conditioning of Radioactive Operational -Decommissioning Wastes" KONTEC - 2003, Berlin, Germany, march,19-21. (2003) 809-811.
- [8] F. P. Glasser, "Fundamental aspects of cement solidification and stabilisation" *Journal of Hazardous Materials*. 52 (1997) 151-170.

## MATEMATIČKO MODELOVANJE IMOBILIZACIJE RADIONUCLIDA $^{137}\text{Cs}$ I $^{60}\text{Co}$ U BETONSKOJ MATRICI

**ILIJA PLEĆAŠ AND SLAVKO DIMOVIĆ**

*Intitut za Nuklearne Nauke Vinča, Beograd, Srbija, [iplecas@vinca.rs](mailto:iplecas@vinca.rs)*

### SADRŽAJ

Fenomeni transporta koji su uključeni u curenja radionuklida iz cementa kao matrice, su istraženi korišćenjem empirijskih metoda koji koriste polinomialnu jednačinu. Za procenu bezbednosti za odlaganje radioaktivnog sastava otpad-cement korišćeno je izluživanje  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{60}\text{Co}$ , iz matriksa u okolni fluid. Testovi izluživanja izvode se u skladu sa postupkom preporučenim od strane IAEA. Za određivanje faktora retardacije, KF i koeficijenata raspodjele, KD, koristi se pojednostavljen matematički model za analizu migracije radionuklida.. Rezultati prikazani u ovom radu su primeri rezultata dobijenih u 30- godišnjem periodu što će se koristiti za dizajn budućeg odlagališta u Srbiji za radioaktivni otpad.

# SINTEZA NANOČESTIČNOG FLUOROAPATITA MIKROTALASNOM METODOM KAO POTENCIJALNOG SORBENTA JONA TEŠKIH METALA I RADIONUKLIDA

**Vojislav STANIĆ<sup>1</sup>, Borivoje ADNAĐEVIĆ<sup>2</sup>, Dragoljub JOVANOVIĆ<sup>3</sup>, Bojana ZMEJKOVSKI<sup>4</sup>, Dušan B. TOPALOVIĆ<sup>5,1</sup>, Vukosava ŽIVKOVIĆ-RADOVANOVIĆ<sup>6</sup>, Slavko SMILJANIĆ<sup>7</sup>**

- 1) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija, voyo@vinca.rs*
- 2) *Univerzitet u Beogradu, Fakultet za fizičku hemiju, Beograd, Srbija*
- 3) *Univerzitet u Beogradu, Veterinarski fakultet, Beograd, Srbija*
- 4) *Univerzitet u Beogradu, Institut za hemiju, tehnologiju i metalurgiju, Beograd, Srbija*
- 5) *Univerzitet u Beogradu, Elektrotehnički fakultet, Beograd, Srbija*
- 6) *Univerzitet u Beogradu, Hemijski fakultet, Beograd, Srbija*
- 7) *Univerzitet u Istočnom Sarajevu, Tehnološki fakultet, Republika Srpska, Bosna i Hercegovina*

## SADRŽAJ

Neorganski nanomaterijali na bazi apatita su potencijalno atraktivni kao sorbenti teških metala i radionukleotida. Nanočestični fluoroapatit je sintetizovan pomoću mikrotalasne metode. Karakterizacione studije XRD, SEM, EDS i FTIR su pokazale da su čestice uzoraka monofazne i nanometarske veličine.

### 1. Uvod

Zagađenje životne sredine teškim metalima je jedan od najvećih ekoloških problema u svetu. Prirodni i sintetički apatite pokazuju veliki afinitet prema sorpciji jona teških metala i radionuklida [1, 2]. Sorpcione osobine apatite zavise od njegovih fizičko-hemijskih svojstava: specifične površine, hemijskog sastava, veličine i morfologije čestica, kao i vrste jona teškog metala i eksperimentalnih uslova. Poznavanje sorpcionih svojstavaa patita od velike je važnosti za pronalaženja tehnoloških rešenja za njihovu imobilizaciju kao i za izučavanje procesa migracije jona metala u prirodi. S obzirom na potencijalnu primenu apatita, interesovanje za postupcima sinteze ovih materijala je u stalnom porastu. Fluoroapatit (FAP,  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{F}_2$ ) je termodinamički najstabilniji i najmanje rastvorljiv od svih apatita [3]. Nanotehnologija se danas razvija velikom brzinom te se koristi u raznim oblastima nauke i tehnologije. Nanočestice zbog svojih malih dimenzija (<100nm) poseduju veću specifičnu površinu od makroskopskih čestica, koja daje veći broj atoma na granici faza odnosno veću hemijsku reaktivnost i bolja difuziona odnosno sorpciona svojstva [4, 5].

U ovom radu nanočestični fluorapatit je sintetizovan mikrotalasnom metodom. Prednost ove metode je kratko vreme trajanja hemijske reakcije, lako regulisanje uslova hemijske sinteze i mogućnost dobijanja čestica nanometarskih veličina.

### 2. Eksperimentalni deo

#### 2.1. Sinteza fluoroapatita

Sve korišćene hemikalije za sintezu fluoroapatita su bile p. a. čistoće:  $\text{Ca}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$  (Appli Chem),  $\text{NH}_4\text{OH}$  (Merck), (25%)  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$  (Merck), Brij 35 (Alfa Aesar) and NaF (VWR). Bidestilovana voda je korišćena u svim fazama sinteze fluoroapatita. Sinteza fluoroapatita je izvršena u mikrotalasnom reaktoru

(Discover, CEM Corporation, Matthews, North Carolina, USA) u izotermalnim uslovima (80 °C).

U vodeni rastvor 100 cm<sup>3</sup> Brij 35 (3,2 g) i Ca(CH<sub>3</sub>COO)<sub>2</sub>·xH<sub>2</sub>O (1,8 g) je dodato u kapima 50 cm<sup>3</sup> rastvora (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> (0,791 g) i NaF (0,084 g). Amonijačnim rastvorom je podešena pH reakcione smeše na 10. Reakcija je u mikrotalasnom reaktoru trajala 15 minuta. Dobijeni proizvod je proceden na vakuumu, ispran bidestilovanom vodom i ostavljen u sušnicina 105 °C preko noći da se osuši.

## 2.2. Metode karakterizacije uzoraka

Difraktogram uzorka je snimljena Philips PW-1050. Za analizu je upotrebljena K $\alpha$  linija Cu, pri naponu 20 kV i struje od 15 mA, na rendgenskoj cevi. Merenja su vršena u oblasti difrakcije 2 $\theta$  od 20° do 60°, sa korakom od 0,05° i vremenom ekspozicije 1s.

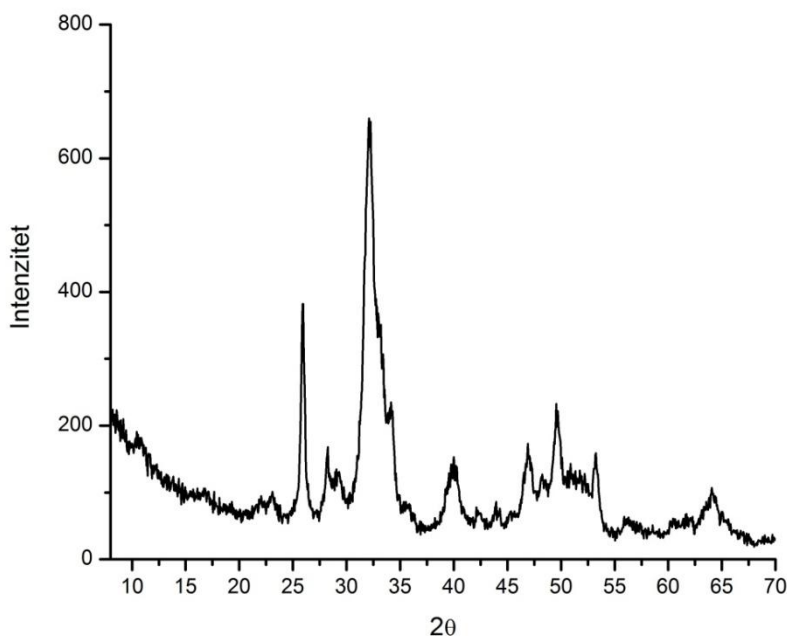
FTIR spektar uzorka je snimljen na Nicolet 6700 FTIR spektrofotometru, ATR tehnikom u opsegu 4000 - 400 cm<sup>-1</sup>.

Morfološka karakterizacija uzorka je vršena na skenirajućem elektronskom mikroskopu (SEM) TESCAN Mira3 XMU, pri random naponu od 20 kV.

Semikvantitativni sastav uzorka (Ca, P i F) je određen EDS metodom (Energy Dispersive Spectrometry) pomoću uređaja Oxford Instruments QX-2000.

## 3. Rezultati i diskusija

Rendgenostruktorna analiza je pokazala da sintetisani uzorak poseduje heksagonalnu strukturu, koja odgovara kristalnoj rešetki kalcijum fluoroapatita (ASTM kartica 15-0876). Dobijeni difraktogram poseduje široke pikove, što ukazuje da je uzorak fluoroapatita slabo kristaliničan i da su dobijene čestice nanometarskih dimenzija.

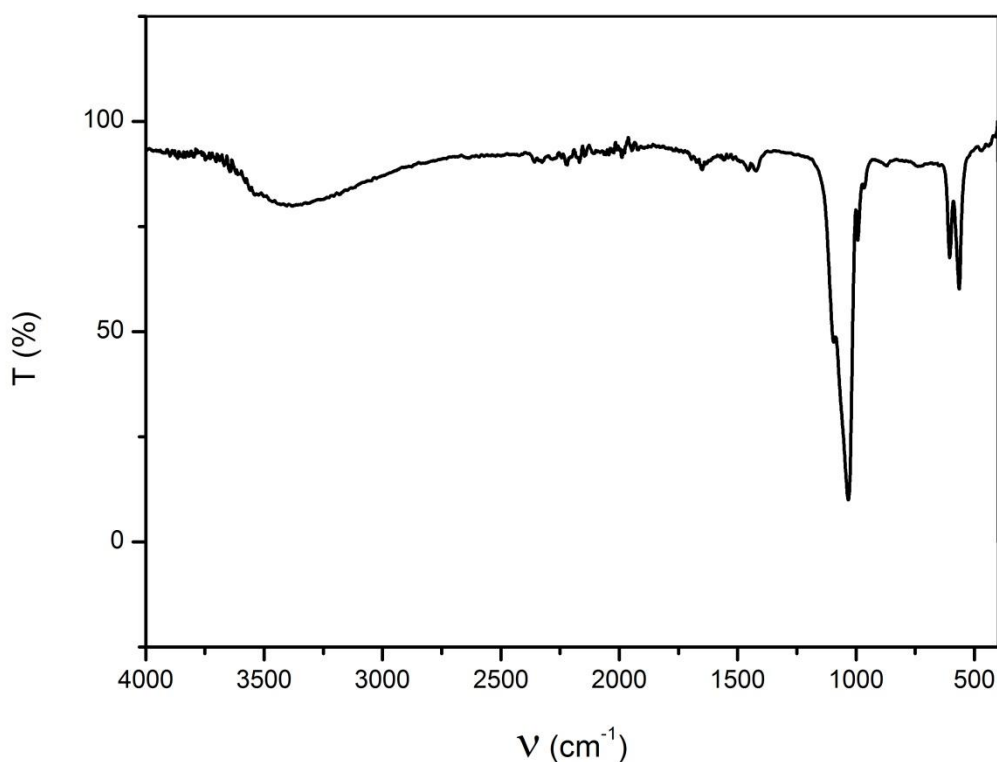


**Slika 1. XRD difraktogram sintetičanog fluorapatita**

Semikvantitativna elementalna analiza uzorka je pokazala da je molski odnos [Ca]/[P]=1,64, nešto manji od stehiometrijskog. Stehiometrijski fluoroapatitima Ca/P

odnos 1,67. Sadržaj fluoridnih jona je bio 87% od početne vrednosti. U baznim uslovima sinteze fluoroapatita ne dolazi do potpuneu gradnje fluoridnih jona zbog konkurentne reakcije sa hidroksilnim jonima.

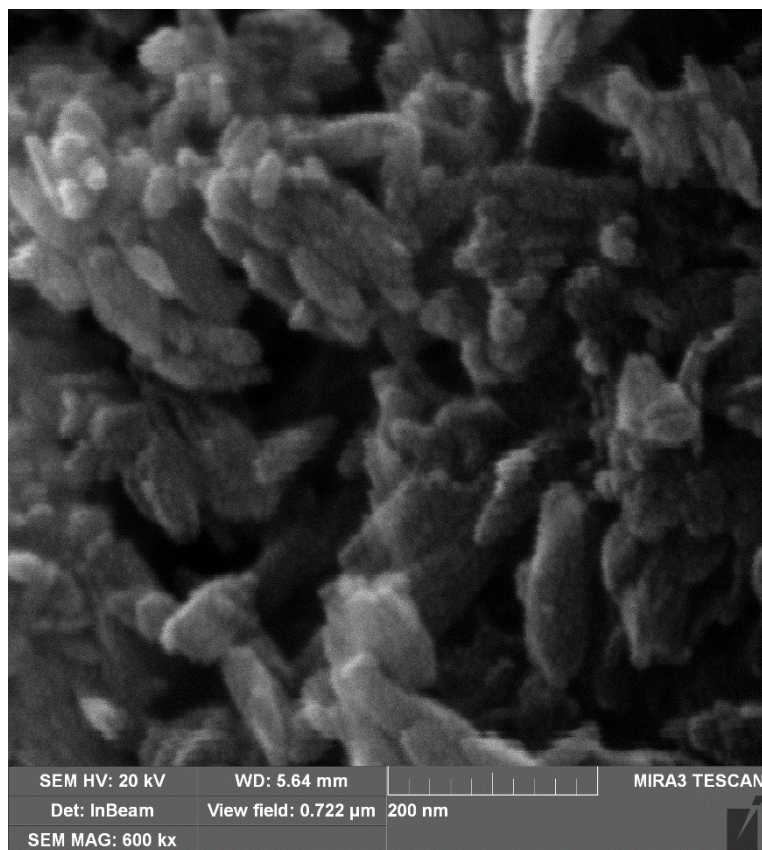
Odgovarajući FTIR spektar sintetisanog uzorka prikazan je na Slici 2. FTIR spektar sintetisanog fluoroapatita sadrži karakteristične apsorpcione trake koje potiču oda dsorbovane vode, fosfatnih i karbonatnih grupa. Apsorpcione trake karakteristične za  $\text{PO}_4^{3-}$  grupu nalaze se naoko  $1092\text{ cm}^{-1}$ ,  $1040\text{ cm}^{-1}$ ,  $962\text{ cm}^{-1}$ ,  $601\text{ cm}^{-1}$  i  $471\text{ cm}^{-1}$ . Traka slabog intenziteta nao ko  $1410\text{ cm}^{-1}$  odgovara vibracijama  $\text{CO}_3^{2-}$  grupe. Na osnovu slabog intenziteta ovih traka, može se pretpostaviti da je količina karbonatnih jona veoma mala u uzorku. Široke trake u opsegu od  $2500\text{ cm}^{-1}$  do  $3700\text{ cm}^{-1}$  i traka slabog intenziteta na oko  $1642\text{ cm}^{-1}$  potiču od vibracija adsorbovanih molekula vode. Traka slabog intenziteta na  $3572\text{ cm}^{-1}$  potiče od hidroksilnih grupa



**Slika 2. FTIR spektar sintetisanog uzoraka**

SEM mikrografija sintetisanog uzoraka je prikazana na Slici 3. Sa mikrografije se može uočiti da je uzorak homogen i da su prisutne nanometarske čestice, sličnih morfoloških karakteristika: nepravilnog cilindričnog oblika i neujednačene veličine. Prosečna dužina čestica iznosi oko 65 nm a širina oko 7 nm.





**Slika 3. SEM mikrografija uzoraka fluoroapatita**

#### **4. Zaključak**

U ovom radu, nanostrukturalne čestice fluoroapatita su sintetizovane mikrotalasnom metodom na sobnoj temperaturi. Dobijeni prah poseduje kristalnu strukturu, koja odgovara rešetki čistog fluoroapatita. Dobijene čestice su nepravilnog cilindričnog oblika i neujednačene veličine, prosečne dužine oko 65 nm i širine oko 7 nm. Dobijeni nanočestični prah fluoroapatita može se primeniti kao material za imobilizaciju jona teških metala prilikom tretmana zagađene vode i zemljišta.

#### **Literatura**

- [1] I. Smičiklas, A. Onjia, S. Raičević, Đ. Janačković, M. Mitrić, Factors influencing the removal of divalent cations by hydroxyapatite, *J. Hazard. Mater.* 152 (2008) 876–884.
- [2] S.D. Raicevic, T.S. Kaludjerovic-Radoicic, A.I. Zouboulis, In situ stabilization of toxic metals in polluted soils using phosphates: theoretical prediction and experimental verification, *J. Hazard.Mater.* 117 (2005) 41–53.
- [3] S.V. Dorozhkin, Calcium orthophosphates, *J. Mater. Sci.* 42 (2007)1061–1095.
- [4] [Z. Zhang](#), [M. Li](#), [W. Chen](#), [S. Zhu](#), [N. Liu](#), [L. Zhu](#). Immobilization of lead and cadmium from aqueous solution and contaminated sediment using nano-hydroxyapatite. *Environ. Pollut.*2010, (158) 514–519.
- [5] [I. Mobasherpour](#), [E. Salahi](#), [M. Pazouki](#), Removal of divalent cadmium cations by means of synthetic nano crystallite hydroxyapatite, *Desalination.* 266 (2011) 142–148.

## Zahvalnica

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije u okviru projekta III43009.

## SYNTHESIS OF FLUORAPATITE NANOPARTICLES BY MICROWAVE METHOD AS A POTENTIAL SORBENT OF HEAVY METAL IONS AND RADIONUCLIDES

**Vojislav STANIĆ<sup>1</sup>, Borivoje ADNAĐEVIĆ<sup>2</sup>, Dragoljub JOVANOVIĆ<sup>3</sup>, Bojana ZMEJKOVSKI<sup>4</sup>, Dušan B. TOPALOVIĆ<sup>5,1</sup>, Vukosava ŽIVKOVIĆ-RADOVANOVIĆ<sup>6</sup>, Slavko SMILJANIĆ<sup>7</sup>**

1) *University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences, Mike Petrovića Alasa 12–14, 11000 Belgrade, Serbia, [voyo@vinca.rs](mailto:voyo@vinca.rs)*

2) *University of Belgrade, Faculty of Physical Chemistry, Studentski trg 12-16, 11001 Belgrade, Serbia*

3) *University of Belgrade, Faculty of Veterinary Medicine, Belgrade, Serbia*

4) *University of Belgrade, Department of Chemistry, Institute of Chemistry, Technology and Metallurgy, Studentski Trg 12-16, 11000 Belgrade, Serbia*

5) *University of Belgrade, School of Electrical Engineering, Belgrade, Serbia*

6) *University of Belgrade, Faculty of Chemistry, P.O. Box 51, 11158 Belgrade, Serbia*

7) *University of East Sarajevo, Faculty of Technology, Karakaj bb, 75400 Zvornik, Bosnia and Herzegovina*

## Abstract

Inorganic nanomaterials based on fluorapatite are potentially attractive if used as sorbents for numerous heavy metals and radionuclides. The synthesis of fluorapatite nanoparticles was done by microwave method. Characterization studies from XRD, SEM, EDS and FTIR spectra showed that particles of the sample are of nano size and they do not contain any discernible crystalline impurity.

# REMEDIJACIJA ZEMLJIŠTA KONTAMINIRANOG RADIOAKTIVNIM STRONCIJUMOM METODAMA HEMIJSKE EKSTRAKCIJE I HEMIJSKE STABILIZACIJE

**Marija ŠLJIVIĆ-IVANOVIĆ, Slavko DIMOVIĆ, Aleksandra FRIEDRICH,  
Mihajlo JOVIĆ, Ivana SMIČIKLAS**

*Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Beograd, Srbija,*

## *SADRŽAJ*

*Zbog velike mobilnosti, reaktivnosti i hemijske sličnosti sa jonima kalcijuma, remedijaciji zemljišta kontaminiranog jonima  $^{90}\text{Sr}$  predstavlja veliki izazov. Dve jednostavne i često ispitivane tehnike remedijacije su hemijska fiksacija tj. stabilizacija i hemijska ekstrakcija. U ovom radu je dat pregled dosadašnjih istraživanja u oblasti remedijacije zemljišta kontaminiranog ovim radionuklidom, korišćenjem hemijske stabilizacije i ekstrakcije.*

## **1. Uvod**

Zračenje, kao oblik kontaminacije životne sredine, predstavlja ozbiljan i globalan problem. Akcidenti u nuklearnim elektranama, nuklearne vojne probe, kao i istraživački rad u ovoj oblasti, dovode do povećanja koncentracije radionuklida u životnoj sredini [1,2]. Prisustvo radionuklida u zemljištu, naročito oko nuklearnih elektrana, može ograničiti mogućnost unapređenja i korišćenje datog područja i nakon dekomisije. Takođe, kontaminacija radionuklidima može da se proširi na velike udaljenosti putem vazдушnih struja, a rastvorne forme mogu da dospeju u vodotokove, što dovodi do kontaminacije površinskih i podzemnih voda [3]. U cilju uklanjanja/stabilizacije radionuklida prisutnih u zemljištu i umanjenja efekata štetnih po okolinu i živi svet, intenzivno se radi na razvoju tehnologija remedijacije kontaminiranog zemljišta.

Tehnike remedijacije zemljišta se mogu podeliti prema mestu odvijanja procesa na *ex situ* i *in situ*, a na osnovu prirode korišćenih procesa na fizičke, hemijske i biološke metode [3]. Izbor metode remedijacije zavisi od velikog broja faktora kao što su: karakteristike zemljišta, karakteristike radionuklida, površina, pristupačnost i buduća namena zagađenog terena, cena procesa, itd.

Fizičko-hemijska svojstva zagađivača (rastvorljivost u vodi, naelektrisanje, oksidaciono stanje, mogućnost građenja teško rastvornih jedinjenja, potencijal građenja kompleksnih jedinjenja sa organskom materijom, itd.) definišu njegovu distribuciju u zemljištu a time značajno utiču na izbor metode remedijacije. Postoji niz procedura kojima se određuje distribucija metala u zemljištu, a najčešće korišćena je sekvencijalna ekstrakcija po Tessier-u [4]. Prema datoj proceduri, hemijskim agensima različite jačine i selektivnosti ekstrahuju se metali vezani: jonskom izmenom (F1), vezani za karbonate i/ili rastvorni u kiseloj sredini (F2), vezani za Fe,Mn-oksidge (F3), za organsku materiju (F4) i vezani za teško rastvornu rezidualnu frakciju (F5). Idući od faze F1 ka F5, mobilnost elemenata opada, a time i njihova biodostupnost i toksičnost.

Stroncijum je metal koji se javlja u obliku 16 različitih izotopa od kojih je 12 radioaktivnih.  $^{90}\text{Sr}$  je najznačajniji radioaktivni izotop prisutan u prirodi, a nastaje kao nus-proizvod fisije uranijuma i plutonijuma u nuklearnim reaktorima. Takođe, velike količine  $^{90}\text{Sr}$  su nastale testiranjem nuklearnog oružja tokom 50-ih i 60-ih godina XX veka. Ovaj izotop je  $\beta$ -emiter sa vremenom poluraspada od oko 29 godina. Kao veoma

reaktivan element, Sr prisutan u životnoj sredini lako može dospeti u ljudski organizam, gde se najčešće deponuje u kostima putem izmene sa jonima kalcijuma. Zbog velike mobilnosti, reaktivnosti i hemijske sličnosti sa jonima kalcijuma, remedijaciji zemljišta kontaminiranog jonima  $^{90}\text{Sr}$  predstavlja veliki izazov. Dve jednostavne i često ispitivane tehnike remedijacije su hemijska fiksacija tj. stabilizacija i hemijska ekstrakcija. Hemijska fiksacija se izvodi *in situ*, dok je ekstrakcija najčešće *ex situ* metoda. U ovom radu dat je pregled osnovnih karakteristika remedijacije zemljišta kontaminiranog jonima  $^{90}\text{Sr}$  metodama hemijske fiksacije i hemijske ekstrakcije.

## 2. Distribucija $\text{Sr}^{2+}$ jona u zemljištu

Ispitivanja distribucije jona  $\text{Sr}^{2+}$  u nekontaminiranom i kontaminiranom zemljištu sprovedena su na velikom broju tipova i podtipova zemljišta [5-7]. U većini uzoraka, prisutvo stroncijuma je bilo dominantno u biodostupnim frakcijama zemljišta (F1 i F2). Ispitivanjem sorpcionog afiniteta tropskog i subtropskog zemljišta prema radiostroncijumu u okolini nuklearnih objekata, pokazano je da se vezivanje jona  $\text{Sr}^{2+}$  na zemljištu odvija mehanizmom jonske izmene koja je limitirana difuzijom [8]. Takođe, uspostavljene su korelacije sorpcije i distribucije jona  $\text{Sr}^{2+}$  sa svojstvima različitih tipova zemljišta [9]. Utvrđeno je da postoji pozitivna korelacija između kapaciteta jonske izmene zemljišta (CEC) i maksimalnog sorpcionog kapaciteta prema jonima  $\text{Sr}^{2+}$ . U nekontaminiranom zemljištu, ukupne koncentracije jona  $\text{Sr}^{2+}$  i njihova distribucija po fazama zemljišta značajno su se razlikovale. U zavisnosti od tipa zemljišta, dominantna faza je bila F1, F3 ili F5. Nasuprot tome, nakon što su isti uzorci zemljišta veštački kontaminirani jonima  $\text{Sr}^{2+}$ , sekvencijalna ekstrakcija je pokazala dominantno (>70%) prisustvo  $\text{Sr}^{2+}$  u jonoizmenjivačkoj fazi (F1), bez obzira na svojstva zemljišta, nivo kontaminacije i vreme kontakta [9]. Slično tome, utvrđeno je da nekontaminirano zemljište sa lokaliteta Instituta za nuklearne nauke Vinča sadrži oko 60% od ukupne količine jona  $\text{Sr}^{2+}$  u jonoizmenjivačkoj fazi, dok nakon kontaminacije ovaj procenat raste na 95% [10]. Uočena linearna zavisnost otpuštene količine  $\text{Ca}^{2+}$  i sorbovane količine  $\text{Sr}^{2+}$  ukazuje na jonsku izmenu kao glavni mehanizam vezivanja [11].

Generalno, sprovedena istraživanja pokazuju veliku mobilnost i potencijalnu biodostupnost jona  $\text{Sr}^{2+}$  u kontaminiranom zemljištu, pa samim tim ukazuju na neophodnost dekontaminacije zemljišta zagađenih ovim metalom.

## 3. Hemijska fiksacija

Hemijska fiksacija je *in situ* metoda imobilizacije/stabilizacije zagađivača, zasnovana na reakcijama između rastvornih oblika kontaminanata i odabranih aditiva koji se dodaju zemljištu. Na taj način, iako radionuklidi ostaju u mestu zagađenja, redukuje se ili potpuno eliminiše mogućnost njihove migracije i transporta u dublje slojeve zemljišta, podzemne vode i u žive organizme. Hemijska stabilizacija radionuklida se na terenu izvoditi ili mešanjem kontaminiranog zemljišta sa određenim procentom aditiva, ili konstruisanjem permeabilnih reaktivnih barijera (PRB) (Slika 1, a). Prema definiciji US EPA [12], PRB su zone reaktivnog materijala koje presecaju put zagađivača i štite podzemne vode.

Materijali pogodni za *in situ* remedijaciju, moraju zadovoljiti dva osnovna kriterijuma: (i) sistem mora biti efikasan u različitim geohemijskim uslovima, i (ii) hemijski oblik imobilisanog zagađivača mora biti stabilan u širokom opsegu uslova (pH, temperature, koncentracije drugih katjona i anjona, itd.) karakterističnih za životnu sredinu.

Mobilnost stroncijuma u zemljištu može se kontrolisati dodavanjem aditiva koji ovaj radionuklid vezuju mehanizmima precipitacije, sorpcije ili jonske izmene [13]. Od neorganskih materijala, u svrhu imobilizacije jona  $\text{Sr}^{2+}$  najčešće je ispitivana efikasnost: 1) kreča, 2) fosfata (posebno apatita), 3) alumosilikata (posebno zeolita) i 4) različitih oksida.

Dodatak zeolita ili glina povećava broj sorpcionih centara u zemljištu, kroz povećanje njegovog jonoizmenjivačkog kapaciteta, dok dodatak reaktivnih materijala kao što su kreč i razne vrste fosfata, prevodi  $\text{Sr}^{2+}$  iz rastvornog jonskog oblika u teško rastvorna jedinjenja [14]. Istraživanja su u velikoj meri bila posvećena upotrebi kreča, čije prisustvo podiže pH vrednost zemljišta i samim tim ima najveći efekat kod kiselih zemljišta [14]. Povećanje pH vrednosti zemljišta dovodi do redistribucije jona  $\text{Sr}^{2+}$  iz jonoizmenjivačke frakcije u faze F2 i F3 [9], čime se smanjuje pokretljivost i toksičnost  $^{90}\text{Sr}$ . Novija istraživanja usmerena su na mogućnost primene različitih selektivnih sorbenata: mineralnih, modifikovanih, sintetičkih, pa čak i otpadnih materijala.

Potencijal imobilizacije različitih materijala prema radionuklidima ispituju se najpre u vodenim rastvorima, variranjem eksperimentalnih uslova, a zatim i njihovim dodavanjem u kontaminirano zemljište.



Slika 1. a) Izrada permeabilne reaktivne barijere [15] b) Postrojenje za dekontaminaciju zemljišta hemijskom ekstrakcijom [16]

### 3.1. Ispitivanja efikasnosti sorbenata $\text{Sr}^{2+}$ jona u vodenim rastvorima

Apatiti su jedinjenja opšte hemijske formule  $\text{A}_5(\text{BO}_4)_3(\text{X})$ , gde A može biti katjon metala kalcijuma, barijuma, natrijuma, stroncijuma, kadmijuma, olova, itd [17]. Katjon B je najčešće fosfor, a X označava anjon  $\text{OH}^-$ ,  $\text{F}^-$  ili  $\text{Cl}^-$ . Prema poreklu, apatiti se dele na mineralne (fosfatne stene), biogene (zubi i kosti) i sintetičke. Joni  $\text{Sr}^{2+}$  se ugrađuju u kristalnu rešetku apatita putem zamene sa jonima  $\text{Ca}^{2+}$  [18]. Sorpcija jona stroncijuma iz vodenih rastvora je ispitana upotrebom sintetičkog hidroksiapatita (HAP) [18], komercijalnog apatita proizvedenog od ribljih kostiju (Apatit II) [19], i niza sorbenata dobijenih termičkim tretmanom goveđih kostiju u opsegu  $400\text{-}1000^\circ\text{C}$  [20]. Rezultati pokazuju da su kapaciteti apatitnih materijala prema jonima  $\text{Sr}^{2+}$  veoma visoki i da biogene forme apatita proizvedena na umerenim temperaturama ( $400^\circ\text{C}$ ) imaju značajno veće specifične površine i kapacitete sorpcije od sintetičkih analoga. Maksimalni sorpcioni kapacitet sintetičkog HAP-a je iznosio  $0,257\text{ mmol Sr}^{2+}/\text{g}$  [18], dok su hemijskim tretmanom goveđih kostiju ( $\text{BH}_2\text{O}_2$ ), kao i žarenjem na  $400^\circ\text{C}$  ( $\text{B}_{400}$ ) dobijeni materijali većeg sorpcionog kapaciteta ( $0,375$  i  $0,357\text{ mmol/g}$ , redom [20]). Ispitan je sorpcioni kapacitet sintetičkog nanotitanata i zeolita prema jonima  $\text{Sr}^{2+}$  iz vodenih rastvora koji predstavljaju simuliranu vodu jednog od reaktora sa područja Fukušime [21]. Efikasnost ova dva sorbenta zavisi od sastava kontaminirane vode, tj. od

prisustva i koncentracije jona  $\text{Ca}^{2+}$  i  $\text{Na}^+$ . Zeolit sa područja Srbije (Vranjska Banja) je ispitan kao sorbent jona  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Sr}^{2+}$  i  $\text{Co}^{2+}$  iz jednokomponentnog rastvora, kao i ekvimolarne trokomponentne smeše [22]. Ovaj materijal se pokazao kao izuzetno selektivan prema jonima  $\text{Cs}^+$  (0,340 mmol/g), dok je sorpcioni kapacitet prema jonima  $\text{Sr}^{2+}$  (0,134 mmol/g) bio značajno niži nego na apatitnim materijalima. Perspektivna, ekonomski isplativa i pogodna sa aspekta zaštite životne sredine, jeste primena letećeg pepela u proizvodnji materijala tipa zeolita koji veoma efikasno vezuje jone  $^{135,137}\text{Cs}$  (1,88 mmol/g) i  $^{90}\text{Sr}$  (1,94 mmol/g) iz simuliranog radioaktivnog otpada [23]. Žarenjem na 900-1000°C istrošeni sorbent se prevodi u staklo-keramički materijal, iz koga je izluživanje radionuklida veoma sporo (reda veličine brzine izluživanja iz borosilikatnog stakla).

Sorpciona svojstva oksida aluminijuma, gvožđa i mangana su značajna s obzirom na njihovu zastupljenost u zemljištu. Eksperimentalno je potvrđeno da afinitet prema jonima  $\text{Sr}^{2+}$ , pri pH=7, raste u nizu: Al-oksidi (0,012 mol/g) < Fe-oksidi (0,025 mol/g) < Mn-oksidi (0,034 mol/g) [24]. Hematit, magnetit i amorfn  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  su ispitani kao sorbenti jedno-, dvo- i trovalentnih jona radionuklida, pri čemu je zaključeno da je sorpcija  $\text{Sr}^{2+}$  jona manje specifična od sorpcije ostalih metala [25]. Veoma bogat i jeftin izvor oksida i hidroksida metala (Fe, Al, Si i Ti) je crveni mulj koji nastaje kao otpad u proizvodnji aluminijuma preradom boksitne rude. Kao visoko-alkalan materijal (pH=10-13 [26]) na pH vrednostima karakterističnim za životnu sredinu naelektrisan je negativno, te je pogodan za vezivanje katjona. S druge strane, činjenica da ga je veoma lako solidifikovati u cementni ili geopolimerni matriks [27,28], daje mu prednost u upotrebi pri tretiranju radioaktivnog otpada. Uprkos prethodno navedenim činjenicama, sorpcija jona  $\text{Sr}^{2+}$  je ispitana samo u nekoliko objavljenih studija [29,30], a dobijeni rezultati pokazuju visoke sorpcione kapacitete crvenog mulja prema jonima  $\text{Sr}^{2+}$  (0,31 mmol/g [30]).

### 3.2. Ispitivanja potencijalne primene sorbenata $\text{Sr}^{2+}$ jona u zemljištu

Materijali koji su pokazali relativno visok afinitet prema jonima  $\text{Sr}^{2+}$  iz vodene sredine, ispitivani su i kao aditivi u kontaminiranom zemljištu. Tri vrste zeolita (sintetički mordenit, prirodni zeolit i sintetički zeolit 5A) su dodavani peskovitom zemljištu, kontaminiranom jonima  $\text{Cs}^+$  i  $\text{Sr}^{2+}$  [31]. Efikasnost stabilizacije radionuklida je procenjena merenjem koncentracije datih metala u biljkama zasađenim na zemljištu sa dodatkom 1% zeolita. Pokazano je da je u poređenju sa netretiranim zemljištem, koeficijent transfera zemljište–kultura spanaća opao 24.5 puta nakon dodatka zeolita tipa 5A.

Zemljište sa lokaliteta Instituta Vinča je veštački kontaminirano jonima  $\text{Sr}^{2+}$ , a zatim zamešano sa 1, 3, 5 i 10 % koštanog apatita (B400). Metodom sekvencijalne ekstrakcije je ispitana i upoređena stabilnost i biodostupnost jona  $\text{Sr}^{2+}$  u kontaminiranom zemljištu, pre i nakon dodatka koštanog sorbenta [10]. Povećanje količine sorbenta u zemljištu dovodi do smanjenja mobilnosti  $\text{Sr}^{2+}$ , putem njegove redistribucije iz jonoizmenjivačke u karbonatnu i rezidualnu frakciju.

Poređenje efikasnosti stabilizacije  $^{90}\text{Sr}$  u kontaminiranom zemljištu, pomoću različitih aditiva, pokazano je da njihovi kapaciteti opadaju u nizu zeolit > koštani ugalj > sintetički hidroksiapatit > fosfatna stena [32]. Primena rastvornih superfosfatnih jedinjenja je bila neefikasna, dok primena trinatrijum-fosfata, smeše trinatrijum-fosfata i kalcijum karbonata kao i koštanog uglja u količinama 1-10 %, redukuju izluživanje  $^{90}\text{Sr}$  u podzemne vode i do 90% [33].

Los Alamos u Novom Meksiku je lokacija koja je tokom više decenija (1945-1978) kontaminirana aktivnošću postrojenja za proizvodnju plutonijuma. Radioaktivne otpadne vode su ispuštane u kanjon, što je dovelo do kontaminacije jonima  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  i  $^{90}\text{Sr}$  u širokim razmerama. Koeficijent distribucije  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{90}\text{Sr}$  definisan je za površinski sloj zemljišta i za sedimente [13]. Koeficijenti raspodele za  $^{137}\text{Cs}$  su bili višestruko veći od datih vrednosti za  $^{90}\text{Sr}$ , što potvrđuje znatno veću disperziju  $\text{Sr}^{2+}$  jona, transportnim putevima vode. Osim u zemljištu, visoka radioaktivnost je pronađena i u podzemnim i u nadzemnim delovima biljaka. Transport  $^{137}\text{Cs}$  u zemljištu je zaustavljen korišćenjem petoslojnih barijera od peska, dok je za imobilizaciju  $^{90}\text{Sr}$  predložena primena metode precipitacije (apatitima, organskim fosfatima i barijum-sulfatom) kao i imobilizacija jonskom izmenom i sorpcijom korišćenjem sledećih materijala: glina, zeolit, getit, klinoptilolit, beidelit i silikotitanati.

#### 4. Hemijska ekstrakcija

Hemijska ekstrakcija je proces tretiranja zemljišta reagensima tj. različitim fluidima koji imaju sposobnost da vežu i izluže kontaminante iz zemljišta. Kao reagensi, najčešće se koriste neorganski rastvarači, helatori i površinski aktivne supstance [3]. Mogućnost primene nekog hemijskog agensa za remedijaciju zemljišta preliminarno se ispituje određivanjem efikasnosti desorpcije radionuklida sa različitih minerala i komponenti zemljišta. Efikasnost ovakvog procesa zavisi od svojstava zemljišta (npr. veličine čestica), svojstava kontaminanta, hemije ekstraktanta i uslova odvijanja procesa, pri čemu pH vrednost igra značajnu ulogu u ekstrahovanju polutanta [34].

Metali većinom uskladišteni u fazama F1, F2 i F3 su okarakterisani kao pogodni za hemijsku ekstrakciju [35]. Nasuprot tome, metoda hemijske ekstrakcije nije pogodna ukoliko kontaminirano zemljište ima visok sadržaj gline i huminskih kiselina i ukoliko je kontaminant čvrsto vezan. Takođe, odabir hemijskog agensa mora biti takav da se dobijeni rastvor nakon izluživanja može lako tretirati, a aktivna komponenta regenerisati [35].

Izluživanje jona stroncijuma iz veštački kontaminiranog zemljišta sa lokaliteta Instituta Vinča je ispitano primenom različitih agenasa [11]. U tu svrhu korišćeni su rastvori HCl i  $\text{CaCl}_2$  različitih koncentracija i inicijalnih pH vrednosti, a ispitan je i efekat koncentracije organskih liganada: dinatrijum etilendiamintetraacetata ( $\text{Na}_2\text{EDTA}$ ), limunske (CA) i vinske kiseline (TA). Visok procenat izluživanja  $\text{Sr}^{2+}$  u svim navedenim rastvorima potvrđuje činjenicu da je veoma labilno vezan za komponente zemljišta. Najniži procenat uklanjanja (oko 20%) je postignut korišćenjem HCl (pH 3). Porast kiselosti korišćenog rastvora značajno utiče na povećanje izluženog  $\text{Sr}^{2+}$ , čak 93% u rastvoru HCl, pH=1. Količina desorbovanog  $\text{Sr}^{2+}$  je bila veoma visoka (86%) i nije zavisila od koncentracije jona  $\text{Ca}^{2+}$  kao kompetitivnog katjona i pH vrednosti ovih rastvora, pa je zaključeno da je ovo maksimalna količina koja se može istisnuti jonima  $\text{Ca}^{2+}$  i jednaka je količini  $\text{Sr}^{2+}$  nađenoj u labilnijim fazama (F1+F2+F3). Kada su u pitanju organski ligandi, njihova efikasnost u desorpciji jona  $\text{Sr}^{2+}$  je zavisila od korišćene koncentracije. Efikasnost liganada niže koncentracije (0.05 mol/L) je opadala u nizu CA (70%)>  $\text{Na}_2\text{EDTA}$  (65%)>TA (55%) dok pri 20 puta većoj koncentraciji liganada efikasnost opada u nizu:  $\text{Na}_2\text{EDTA}$  (93%)>CA (70%)≥TA (70%).

Na osnovu dobijenih rezultata zaključuje se da je hemijska ekstrakcija u ispitanim slučajevima metoda koja se sa visokom efikasnošću može primeniti u dekontaminaciji zemljišta zagađenim jonima stroncijuma.

## 5. Zaključci i perspektivna područja istraživanja

Izbor metode pogodne za remedijaciju zemljišta kontaminiranog jonima  $^{90}\text{Sr}$  zavisi od mnogobrojnih faktora i mora biti rezultat optimizacije za svaki konkretan slučaj. Prednosti *in situ* hemijske fiksacije su jednostavnost procesa i relativno niska cena. Osnovna mana ovog procesa je što radionuklid ostaje u zemljištu, pa i pored smanjene mobilnosti predstavlja potencijalnu opasnost. Za potrebe razvoja *in situ* tretmana zemljišta zagađenog  $^{90}\text{Sr}$ , neophodna su dalja ispitivanja efikasnosti pomenutih i novih selektivnih materijala, u različitim tipovima zemljišta. Od posebnog je značaja proučavati efikasnost procesa u dužim vremenskim periodima i u prisustvu konkurentnih jonskih vrsta.

Hemijska ekstrakcija je ograničena na zagađivače dominantno prisutne u mobilnim frakcijama zemljišta, kao što je slučaj sa  $^{90}\text{Sr}$ . Ekstrakcija može biti znatno skuplja od alternativnih metoda stabilizacije, ali u isto vreme i značajno efikasnija. Primena visoko efikasnih hemijskih agenasa koji ne podležu biodegradaciji (na pr. EDTA) ili značajno narušavaju fizičko-hemijska svojstva samog zemljišta (npr. koncentrovane neorganske kiseline) mora biti posebno opravdana. U ovoj oblasti, neophodno je ispitati niz novih agenasa, koji nemaju negativan efekat na svojstva zemljišta i životnu sredinu i/ili optimizovati ostale uslove ekstrakcije.

**Zahvalnica:** Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja republike Srbije (Projekat br. III 43009).

## 6. Literatura

- [1] S. E. Bryan, P. McDonald, R. Hill, R. C. Wilson. Sea to land transfer of anthropogenic radionuclides to the North Wales coast, part I: external gamma radiation and radionuclide concentrations in intertidal sediments, soil and air. *J. Environ. Radioact.* 99 (2008) 7–19.
- [2] Q. Hu, J. Weng, J. Wang. Sources of anthropogenic radionuclides in the environment: a review. *J. Environ. Radioact.* 101 (2010) 426–437.
- [3] [M. Gavrilescu](#), [L.V. Pavel](#), [I. Cretescu](#). Characterization and remediation of soils contaminated with uranium. *J. Hazard.Mater.* 163 (2009) 475–510.
- [4] A. Tessier, P. G. C.Campbell, M. Bisson. Sequential extraction procedure for the speciation of articulate trace metals. *Anal. Chem.* 51 (1979) 844–860.
- [5] C. Lerouge, E. C. Gaucher, C Tournassat, P. Negrel, C. Crouzet , A. Guerrot, A. Gautier, P. Michel, [A. Vinsot](#), [S. Buschaert](#). Strontium distribution and origins in a natural clayey formation (Callovian–Oxfordian, Paris Basin, France): A new sequential extraction procedure. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 74 (2010) 2926–2942.
- [6] J. Solecki. Investigation of  $^{85}\text{Sr}$  adsorption on selected soils of different horizons. *J. Environ. Radioact.* 82 (2005) 303–320.
- [7] N. H. M. Kamel. Adsorption models of  $^{137}\text{Cs}$  radionuclide and Sr(II) on some Egyptian soils. *J. Environ. Radioact.* 101 (2010) 297–303.
- [8] P. N. Chiang, M. K. Wang, P. M. Huang, J. J. Wang, C. Y. Chiu. Cesium and strontium sorption by selected tropical and subtropical soils around nuclear facilities. *J. Environ. Radioact.* 101 (2010) 472–481.
- [9] I. Smičiklas, M. Jović, M. Šljivić-Ivanović, V. Mrvić, D. Čakmak, S. Dimović. Correlation of  $\text{Sr}^{2+}$  retention and distribution with properties of different soil types. *Geoderma.* 253–254 (2015) 21–29.



- [10] S. Dimović, I. Smičiklas, M. Šljivić-Ivanović, B. Dojčinović. Speciation of  $^{90}\text{Sr}$  and other metal cations in artificially contaminated soils: the influence of bone sorbent addition. *J. Soil Sediments*. 13 (2013) 383-393.
- [11] I. Smičiklas, S. Dimović, M. Jović, A. Milenković, M. Šljivić-Ivanović. Evaluation study of cobalt(II) and strontium(II) sorption–desorption behavior for selection of soil remediation technology. *Int. J. Environ. Sci. Technol.* DOI 10.1007/s13762-015-0817-y
- [12] <http://www.epa.gov/ahaazuuc/topics/prb.html>. Pristupljeno 2. juna 2015.
- [13] C. F. V. Mason, N. Lu, J. Conca. Characterization, transport and remediation options for radioactive strontium and cesium contaminated sites. Los Alamos National Laboratory Technical Report LAUR- 99-3593 (1999). <http://library.lanl.gov/cgi-bin/getfile?00796463.pdf>. Pristupljeno 26. maja 2015.
- [14] IAEA (International Atomic Energy Agency). Remediation of sites with mixed contamination of radioactive and other hazardous substances, IAEA Technical Reports Series No. 442. Vienna, 2005. International Atomic Energy Agency.
- [15] <http://www.pimsnw.com/acidrock.php>. Pristupljeno 15. maja 2015.
- [16] <http://www.art-engineering.com/projects.html>. Pristupljeno 15. maja 2015.
- [17] J. C. Elliott. Structure and chemistry of the apatites and other calcium orthophosphates. Amsterdam, Netherlands, 1994. Elsevier Science BV.
- [18] I. Smičiklas, A. Onjia, [S. Raičević](#), [Đ. Janačković](#), [M. Mitrić](#). Factors influencing the removal of divalent cations by hydroxyapatite. *J. Hazard. Mater.*. 152 (2008) 876–884.
- [19] J. Krajzler, J. Narbutt. Adsorption of strontium, europium and americium(III) ions on a novel adsorbent Apatite II. *Nukleonika*. 48 (2003) 171-175.
- [20] I. Smičiklas, S. Dimović, M. Šljivić, I. Plečaš, B. Lončar, M. Mitrić. Resource recovery of animal bones: Study on sorptive properties and mechanism for  $\text{Sr}^{2+}$  ions. *J. Nucl. Mater.* 400 (2010) 15–24.
- [21] [A. Merceille](#), [E. Weinzapfel](#), [Y. Barré](#), [A. Grandjean](#). The sorption behaviour of synthetic sodium nonatitanate and zeolite A for removing radioactive strontium from aqueous wastes. *Sep. Purif. Technol.* 96 (2012) 81–88.
- [22] I. Smičiklas, S. Dimović, I. Plečaš. Removal of  $\text{Cs}^{1+}$ ,  $\text{Sr}^{2+}$  and  $\text{Co}^{2+}$  from aqueous solutions by adsorption on natural clinoptilolite. *Appl. Clay Sci.* 35 (2007) 139–144.
- [23] T. Vereshchagina, S. Vereshchagin, [N. Shishkina](#), [N. Vasilieva](#), [L. Solovyov](#), A. Anshits. Microsphere zeolite materials derived from coal fly ash cenospheres as precursors to mineral-like aluminosilicate hosts for  $^{135,137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$ . *J. Nucl. Mater.* 437 (2013) 11–18.
- [24] P. Trivedi, L. Axe. A comparison of strontium sorption to hydrous aluminum, iron, and manganese oxides. *J. Colloid Interface Sci.* 218 (1999) 554–563.
- [25] S. Musić, M. Ristić. Adsorption of trace elements or radionuclides on hydrous iron oxides. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 120 (1988) 289-304.
- [26] Y. Liu, C. Lin, Y. Wu. Characterization of red mud derived from a combined Bayer process and bauxite calcination method. *J. Hazard. Mater.*. 146 (2007) 255-261.
- [27] P. Zhihua, L. Dongxu, Y. Jian, Y. Nanru. Properties and microstructure of the hardened alkali-activated red mud-slag cementitious material. *Cement Concrete Res.* 33 (2003) 1437-1441.
- [28] G. Zhang, J. He, R. P. Gambrell. Synthesis characterization and mechanical properties of red mud-based geopolymers. *Trans. Res. Rec.* 2167 (2010) 1-9.

- [29] R. Apak, G. Atun, K. Guclu, E. Tutem, G. Keskin. Sorptive removal of cesium-137 and strontium-90 from water by unconventional sorbents. I. Usage of bauxite wastes (red muds). *J. Nucl. Sci. Technol.* 32 (1995) 1008-1017.
- [30] A. [Milenković](#), I. [Smičiklas](#), J. [Marković](#), N. [Vukelić](#). Immobilization of  $^{60}\text{Co}$  and  $^{90}\text{Sr}$  ions using red mud from aluminum industry, *Nucl. Technol. Radiat. Protect.* 29 (2014) 79-87.
- [31] E. Valcke, A. Elsen, A. Cremers. The use of zeolites as amendments in radiocaesium- and radiostrontium contaminated soils: A soil-chemical approach. Part IV: A potted soil experiment to verify laboratory-based predictions. *Zeolites.* 18 (1997) 225-231.
- [32] T. E. Moody, S. W. Petersen, E. G. Torne, J. Vlcakova, J. F. Higginbotham. Laboratory scale stabilization of N-springs groundwater strontium-90 using phosphatic materials. Report BHI-00864, 1996. <http://www.dtic.mil/cgi-bin/GetTRDoc?AD=ADA349254>. Pristupljeno 10.juna 2015.
- [33] T. E. Moody. North plateau groundwater Sr-90 phosphate stabilization. Final report for the West Valley Demonstration Project, CH2MHILL, 1997.
- [34] I. Atanassova, M. Okazaki. Adsorption-desorption characteristics of high levels of copper in soil clay fractions. *Water Air Soil Pollut.* 98 (1997) 213-228.
- [35] US EPA (U.S. Environmental Protection Agency). Selecting remediation techniques for contaminated sediment, EPA-823-B93-001. Washington, USA, 1993. U.S. Environmental Protection Agency.

## **CHEMICAL EXTRACTION AND CHEMICAL STABILISATION METHODS FOR REMEDIATIONS OF SOILS CONTAMINATED WITH RADIOSTRONTIUM**

**Marija ŠLJIVIĆ-IVANOVIĆ, Slavko DIMOVIĆ, Aleksandra FRIEDRICH, Mihajlo JOVIĆ, Ivana SMIČIKLAS**

*University of Belgrade, Vinca Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, Serbia*

### ABSTRACT

$^{90}\text{Sr}$  is radioactive isotope which undergoes  $\beta$ -decay (half-life 29 years) and which is commonly produced as fission by-product of uranium and plutonium in nuclear power plants and research reactors. When discharged into the environment, it spreads easily due to its high mobility and reactivity, entering the food chain. Therefore, soil contaminated with  $^{90}\text{Sr}$  needs to be treated, in order to either stabilize or remove the contaminant. Chemical stabilization/fixation is a remediation technique based on the addition of various materials which binds the pollutant. Due to the presence of additive in the soil, the radionuclide migration and transport to deeper soil horizons, groundwater, plants, etc. might be reduced or eliminated. On the other hand, chemical extraction is the method which is based on the dissolution, desorption, chelation, and complexation reactions between contaminant and chemical reagents. Consequently, the pollutants are redistributed from solid to liquid phase, which can be separated, and treated. Both techniques were applied for the remediation of soils contaminated with  $^{90}\text{Sr}$ . This paper briefly summarizes the findings on  $^{90}\text{Sr}$  mobility in the soil, possible application of different sorbent materials as soil additives and efficacy of chemical extraction using various leaching agents. Basic characteristics, with pros and cons, are given for both methods.

**РЕГУЛАТИВА, ЕДУКАЦИЈА И ЈАВНО  
ИНФОРМИСАЊЕ**

# MOGUĆNOSTI ZA POBOLJŠANJE POSTOJEĆE ZAKONSKE REGULATIVE U OBLASTI ZAŠTITE OD ZRAČENJA U REPUBLICI SRBIJI

**Danijela ARANĐIĆ, Olivera CIRAJ-BJELAC, Đorđe LAZAREVIĆ, Dragana  
TODOROVIĆ, Jelica KALJEVIĆ**

*Institut za nuklearne nauke Vinča, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne  
sredine, Beograd, Srbija, darandjic@vinca.rs*

## SADRŽAJ

*U radu su prikazani rezultati poređenja postojećih pravilnika koji uređuju oblast zaštite od zračenja u Srbiji i Direktive Evropske Unije (Council Directive 2013/59/Euratom) kao i drugih publikacija koje su relevantne za ovu oblast. Utvrđeno je da neke od nepravilnosti mogu biti otklonjene jednostavnom izmenom određenih članova postojećih pravilnika dok je za pojedine neusaglašenosti neophodna sistematska izmena u postojećem sistemu ovlašćivanja ili pisanje novih pravilnika.*

### 1. Uvod

Zaštita od jonizujućih zračenja u Srbiji sprovodi se kroz Zakon o zaštiti od jonizujućih zračenja i nuklearnoj sigurnosti [1] i 11 pratećih pravilnika [2-12]. Regulatorno telo u ovoj oblasti je Agencija za zaštitu od jonizujućih zračenja i nuklearnu sigurnost Srbije u čijoj je nadležnosti donošenje podzakonskih propisa za sprovođenje Zakona. S obzirom da priprema za ulazak u Evropsku Uniju (EU) podrazumeva i usaglašavanje propisa u skladu sa Direktivama EU, u Srbiji je u periodu 2010-2012. godine usvojen niz pravilnika koji su pripremljeni upravo na osnovu Direktiva EU [13-16]. U 2013. godini u EU je usvojen novi dokument, Council Directive 2013/59/Euratom [17], koji je zamenio prethodno važeće dokumente.

Cilj ovog rada je da se ispitaju mogućnosti za poboljšanje postojećih pravilnika u pogledu boljeg usklađivanja postojećeg stanja u zaštiti od zračenja u Srbiji sa propisima EU.

### 2. Materijali i metod

Na osnovu detaljnog pregledavanja pravilnika koji uređuju oblast zaštite od zračenja u Srbiji i svakodnevnog iskustva u primeni propisanih uslova, kao i Direktive EU (Council Directive 2013/59/Euratom) i drugih publikacija koje su relevantne za ovu oblast [18-22] utvrđeni su nedostaci u postojećim pravilnicima koji u manjoj ili većoj meri utiču na kvalitet zaštite od zračenja u našoj zemlji. Za svaku primedbu dat je predlog izmene uz obrazloženje.

### 3. Rezultati i diskusija

U postojećem pravilniku o granicama izlaganja [7] granična vrednost za ekvivalentnu dozu za očno sočivo na godišnjem nivou iznosi 150 mSv. Međunarodna komisija za zaštitu od zračenja je u aprilu 2011. godine izdala obaveštenje da usled tkivnih reakcija koje mogu da se jave na očnom sočivu vrednost ove veličine treba sniziti na 20 mSv [18]. Podaci o uticaju jonizujućeg zračenja na stvaranje katarakte potiču iz epidemioloških studija sprovedenih na profesionalno izloženim licima [19] što dodatno ukazuje na značaj implementacije ove preporuke u postojeće propise.

U postojećim pravilnicima propisana je granična vrednost jačine doze za koju se, pored TL dozimetara, smatra obaveznim i nošenje elektronskih dozimetara. U pogledu monitora zračenja kaže se samo da mora ispunjavati važeće metrološke standarde [7]. Elektronski

dozimetri koji su etalonirani u poljima drugih izvora zračenja, u polju rendgenskog zračenja mogu da se ponašaju veoma nestabilno i da pritom prikazuju vrednosti koje su i do 100 puta manje od stvarnih [20]. S obzirom da izlaganje medicinskog osoblja u interventnoj radiologiji zahteva posebne mere zaštite imajući u vidu da efektivna doza na godišnjem nivou za pojedinca dostiže i preko 20 mSv potrebno je definisati da elektronski dozimetri koji se planiraju koristiti za procenu izlaganja profesionalno izloženih lica u interventnoj radiologiji moraju biti etalonirani u polju rendgenskog zračenja i ispitani u uslovima impulsnog režima rada rendgen-aparata.

Veoma brz razvoj modaliteta koji se baziraju na primeni izvora jonizujućih zračenja, kako u dijagnostičkim i terapijskim metodama u medicini tako i u drugim oblastima, podrazumeva i promenu standarda i protokola po kojima se vrše merenja i rade proračuni. U pravilnicima su specificirane samo opšte metode za procenu doze i parametri koji treba da se ispituju kod ispitivanja rendgen-aparata u dijagnostičkoj radiologiji, a naglašeno je da se u ostalim slučajevima koriste standardne metode [3, 7]. Ovo veoma često dovodi do toga da se ispitivanja vrše po neadekvatnim metodama. S obzirom na veliki broj ovlašćenih pravnih lica za pojedine poslove iz oblasti zaštite od zračenja bilo bi dobro precizirati metode, protokole i standarde po kojima se vrši evaluacija izvora zračenja ili projektovanje mera zaštite za svaku pojedinačnu vrstu izvora. Formiranjem stručne komisije od strane Agencije koja bi pripremala i redovno ažurirala sadržaj uputstava o važećim mernim, ispitnim i računskim metodama koje su primenjive na ovu oblast izbegle bi se nedoumice oko odabira metoda posebno u slučaju instalacije nove vrste izvora zračenja. Pravna lica bi nadalje dobijala ovlašćenja na osnovu akreditacije metoda koje su pobrojane u uputstvima, s tim što bi trebalo akreditovati svaki pojedinačni parametar čije je ispitivanje zahtevano u određenom standardu ili protokolu. Takođe, ovim bi se izbegla i potreba za izmenom pravilnika svaki put kada se u Srbiji prvi put instalira nova vrsta izvora zračenja.

U postojećim pravilnicima prilično jasno su definisani uslovi za lice odgovorno za zaštitu od zračenja, lice koje može biti ovlašćeno na poslovima projektovanja mera radijacione sigurnosti i bezbednosti, lica medicinske struke koja mogu da propišu dijagnostički ili terapijski postupak u medicini itd [2]. Međutim, uslovi za ovlašćenja za obavljanje određenih poslova iz oblasti zaštite od zračenja nisu dovoljno dobro precizirani u pogledu stručnog kadra [4]. Merenja radi procene izlaganja profesionalno izloženih lica, pacijenata i stanovništva, izrada projekata mera radijacione sigurnosti i bezbednosti za korišćenje izvora zračenja, procena doze i izrada stručnih mišljenja na osnovu rezultata merenja radi procene izlaganja kao i tumačenje rezultata kontrole kvaliteta dijagnostičkih rendgen-aparata, zahtevaju mnogo više znanja i veština od samih merenja i proračuna u pojedinačnim slučajevima. U dokumentu Council Directive 2013/59/Euratom jasno su definisani pojmovi kvalifikovani ekspert i medicinski fizičar u dijagnostičkoj radiologiji, što nije implementirano u postojećoj regulativi u Srbiji. Potrebno je posebnim dokumentom definisati uslove za priznavanje statusa kvalifikovanog eksperta. O dobijanju ovakvog statusa odlučivala bi Komisija formirana od strane Agencije, a Agencija bi vodila registar kvalifikovanih eksperata. Kao dobar primer može da posluži Pravilnik o priznavanju statusa kvalificiranog eksperta koji je sastavni deo regulative koja definiše ovu oblast u Bosni i Hercegovini i u kome su definisani uslovi za kvalifikovanog eksperta za zaštitu od zračenja, kvalifikovanog eksperta za upravljanje radioaktivnim otpadom i kvalifikovanog eksperta za sigurnost transporta radioaktivnih materijala [21]. U pogledu medicinskog fizičara, neophodno je uvesti zahtev za njihovo angažovanje barem u pedijatrijskim ustanovama.

Pravilnik o granicama izlaganja [7] sadrži deo koji propisuje sadržaj izveštaja o proceni izlaganja. Sa druge strane, Pravilnik o uslovima za dobijanje rešenja za obavljanje poslova iz oblasti zaštite od zračenja [4] kao uslov za ovlašćenje za merenja radi procene izlaganja i merenja u okviru sprovođenja kontrole kvaliteta dijagnostičkih rendgen-aparata zahteva samo akreditaciju prema međunarodnom standardu ISO17025 [22] za odgovarajuće metode. To znači da lice koje je po pravilima ATS-a klasifikovano kao ispitivač može da tumači rezultate merenja i daje mišljenje o ispunjenosti uslova radijacione sigurnosti i

bezbednosti. Potrebno je uvesti novu vrstu ovlašćenja koja se odnosi na davanje stručnih mišljenja (ekspertize) na osnovu rezultata merenja. Ovoj kategoriji posla pripadala bi i izrada projekata mera radijacione sigurnosti i bezbednosti za korišćenje uređaja kao i izrada stručnih mišljenja nezavisno od merenja (npr. procena doze za fetus kod izlaganja trudnica). Uslov za dobijanje ovlašćenja za ovakvu vrstu posla, pored akreditacije, bilo bi i angažovanje kvalifikovanog eksperta koji je prethodno registrovan kod Agencije.

U Pravilniku o granicama izlaganja [7] za dozimetrijski servis koji je ovlašćen za merenja radi procene izlaganja putem ličnog dozimetra nije naveden uslov da obavezno učestvuje u domaćim i međunarodnim interkomparacijama rezultata merenja. S obzirom da TLD čitač ne može da se etalonira kao klasični merni uređaj i da je merna nesigurnost TL dozimetara veoma izražena (posebno na nižim vrednostima doza), učešće u međulaboratorijskim poređenjima sa velikim brojem učesnika predstavlja veoma važan izvor informacija o kvalitetu uređaja i primenjenoj mernoj metodi [22].

#### **4. Zaključak**

Neusaglašenosti između postojeće regulative iz oblasti zaštite od zračenja u Srbiji i međunarodnih preporuka koje su opisane u ovom radu ukazuju na mogućnost za poboljšanje kvaliteta zaštite od zračenja u našoj zemlji. Na osnovu prikazanih rezultata poređenja jasno je da izmena u postojećoj regulativi mora uključiti, pored izmena i dopuna pravilnika, i izradu novih dokumenata. Neophodno je svakako voditi računa o načinu implementacije izmena kako bi sprovođenje datih propisa u praksi bilo moguće.

#### **5. Literatura**

- [1] Zakon o zaštiti od jonizujućih zračenja (Sl. glasnik RS br. 36/09).
- [2] Pravilnik o uslovima za dobijanje licence za obavljanje radijacione delatnosti (Sl. glasnik RS 61/11).
- [3] Pravilnik o primeni izvora jonizujućih zračenja u medicini (Sl. glasnik RS, br. 1/2012).
- [4] Pravilnik o uslovima za dobijanje rešenja za obavljanje poslova iz oblasti zaštite od zračenja (Sl. glasnik RS, br. 61/2011).
- [5] Pravilnik o evidenciji o izvorima jonizujućih zračenja, profesionalno izloženim licima, o izloženosti pacijenata jonizujućim zračenjima i radioaktivnom otpadu (Sl. glasnik RS, br. 97/2011).
- [6] Pravilnik o evidenciji o izvršenim poslovima iz oblasti zaštite od jonizujućih zračenja (Sl. glasnik RS, br. 17/2011).
- [7] Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima (Sl. glasnik RS, br. 86/2011).
- [8] Pravilnik o utvrđivanju programa za dopunsko obučavanje i osposobljavanje profesionalno izloženih lica i lica odgovornih za sprovođenje mera zaštite od jonizujućih zračenja (Sl. glasnik RS, br. 31/2011).
- [9] Pravilnik o granicama radioaktivne kontaminacije lica, radne i životne sredine i načinu sprovođenja dekontaminacije (Sl. glasnik RS 38/11).
- [10] Pravilnik o monitoringu radioaktivnosti (Sl. glasnik RS 97/11).
- [11] Pravilnik o kontroli radioaktivnosti roba pri uvozu, izvozu i tranzitu (Sl. glasnik RS 44/11).
- [12] Pravilnik o utvrđivanju programa sistematskog ispitivanja radioaktivnosti u životnoj sredini (Sl. glasnik RS 100/2010).
- [13] COUNCIL DIRECTIVE 89/618/Euratom, Official Journal of the European Union.
- [14] COUNCIL DIRECTIVE 90/641/Euratom, Official Journal of the European Union.
- [15] COUNCIL DIRECTIVE 96/29/Euratom, Official Journal of the European Union.

- [16] COUNCIL DIRECTIVE 97/43/Euratom, Official Journal of the European Union.
- [17] COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/Euratom, Official Journal of the European Union.
- [18] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION, Statement on Tissue Reactions, 2011.
- [19] Ciraj-Bjelac O., Rehani M. M., Sim K. H., Liew H. B., Vano E., Kleiman N. J.: Risk for radiation-induced cataract for staff in interventional cardiology: Is there reason for concern?, *Cathet. Cardiovasc. Interv.*, Vol 76 (2010) 826–834. Intercomparison of active personal dosimeters in interventional radiology. *Radiation Protection Dosimetry* 129(1-3) (2008) 340-345.
- [21] Pravilnik o priznavanju statusa kvalificiranog eksperta, Broj: 04-02-983/14, Sarajevo, 2014.
- [22] Opšti zahtevi za kompetentnost laboratorija za ispitivanje i laboratorija za etaloniranje, SCS ISO/IEC 17025: 2006.

## **POSSIBILITIES TO IMPROVE THE CURRENT REGULATIVE IN RADIATION PROTECTION IN SERBIA**

**Danijela ARANĐIĆ, Olivera CIRAJ-BJELAC, Đorđe LAZAREVIĆ, Dragana TODORVIĆ, Jelica KALJEVIĆ**

Vinca Institute of Nuclear Sciences, Laboratory for radiation and environmental protection, Belgrade, Serbia, darandjic@vinca.rs

### **ABSTRACT**

The purpose of this work was to investigate if there is a possibility to improve the current regulatory requirements in radiation protection in Serbia. The Serbian regulatory documents were compared with Council Directive 2013/59/Euratom and other relevant international publications. It was observed that even many of problems existed in national regulative can be easily solved, some of them require a systematically introduced changes in currently used documents.

## ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITY MONITORING IN SERBIAN REGULATIONS

Jasminka D. JOKSIĆ<sup>1</sup>, Mirjana B. RADENKOVIĆ<sup>2</sup>, Vladimir UDOVIČIĆ<sup>3</sup>

1) Serbian Radiation Protection and Nuclear Safety Agency, Belgrade, Serbia,

joksic@srbatom.gov.rs

2) University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences, P.O. Box 522, 11001

Belgrade, Serbia, mirar@vinca.rs

3) University of Belgrade, Institute of Physics, Belgrade, Serbia, udovicic@ipb.ac.rs

### Abstract

*The main purpose behind of environmental radioactivity monitoring is to track the levels of radioactive contamination and natural radioactivity in the environment, as well as to follow trends in radionuclide concentration values and prompt warning in case of elevated levels of radiation on the territory of Serbia. Environmental Radioactivity Monitoring in Republic of Serbia is regulated by two bylaws: Rulebook for establishing Programme of systematic environmental radioactivity examination and Rulebook on Radioactivity Monitoring. Rulebook for establishing Programme of systematic environmental radioactivity examination sets forth the locations, time intervals, types and methods of systematic environmental radioactivity examination while Regulation on radioactivity monitoring is governing manner and conditions for environmental radioactivity monitoring and radioactivity monitoring in the environment around authorized practices sites. Serbian Radiation Protection and Nuclear Safety Agency (SRPNA), regulatory authority in field of radiation protection and nuclear safety authorizes technical organizations to perform sampling and analyses. SRPNA publishing the annual report on the exposure levels of the population to ionising radiation in the Republic of Serbia.*

### 1. Introduction

As a consequence of nuclear tests during the XX century and the nuclear accidents in Chernobyl (1986) and Fukushima (2011) in the atmosphere is released large amount of artificial radionuclides which caused contamination of the environment of large scale. The Chernobyl accident in 1986 was characterized by its substantial atmospheric release of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs that can be detected in environment. Other sources such as depleted uranium, potential release of radionuclides from nuclear power plants from neighboring countries, naturally occurring radionuclides from different technological processes may, however, have contribution to the environmental radioactivity level in Serbia. Therefore, it is necessary to carry out a systematic environmental radioactivity monitoring in order to estimate the impact to the environment and to allow timely response in the case of increased level of radioactivity in the environment, and possible implementation of measures for radiation safety and security.

Environmental radioactivity monitoring is regulated by Rulebook for establishing Programme of systematic environmental radioactivity examination<sup>(1)</sup> and Rulebook on Radioactivity Monitoring<sup>(2)</sup>. Rulebook for establishing Programme of systematic environmental radioactivity examination sets forth the locations, time intervals, types and methods of systematic environmental radioactivity examination. Radioactivity monitoring in the environment of the Republic of Serbia includes: systematic



examination of the radioactivity in normal circumstances and examination of the radioactivity on suspicion of an emergency, and in the course of an emergency.

## 2. Materials and Methods

Programme of systematic examination of the radioactivity under normal circumstances includes the following measurements: examination of external radiation levels, examination of radionuclides content in the air, solid and liquid precipitation, surface waters, drinking waters, food, examination the level of exposure to naturally-occurring ionising radiation in residential and work environments and examination of radionuclides content at locations affected by depleted uranium.

Ambient gamma dose rate equivalent in the air is measured daily, throughout 24 h a day, at the height of 1 m above an uncultivated grassy area at 9 locations. Measuring devices for measurements of ambient gamma dose rate equivalent in the air are parts of the system for early warning of emergency. The measurement of ambient gamma dose equivalent in the air is done by TL dosimeters, placed at 1 m height above an uncultivated grassy area with the replacement and reading period once every three months. Ambient gamma dose equivalents in the air are measured at 16 locations (Figure 1).



Figure 1. TLD measurements

The samples for examination of the radionuclides content in the air are collected continually in the course of 24 hours, every day, by pumping at least 300 m<sup>3</sup>/h of air

through filter paper of known efficiency at 1m height above an uncultivated grassy area. The aerosol samples collected within one month are put together at the end of month in aggregate monthly samples and are analyzed by gamma spectrometry not later than in the first half of the following month for the previous month. The aerosol samples for examination of radionuclides content are collected at 7 locations.

The samples of solid and liquid precipitation are collected continually in the course of one month at 1m height above the ground level by a sampler whose surface is at least 0.6 m<sup>2</sup>. The aggregate monthly samples of solid precipitation and liquid precipitation are analysed by gamma spectrometry. The precipitation samples are collected at 9 locations.

The samples of surface waters for examination of radionuclides content are collected on the daily basis in the following rivers: Danube (Bezdan, Zemun, Vinča and Prahovo), Sava (Sremska Mitrovica and Beograd), Nišava (Pirot) Tisa (Kanjiža), Timok (Knjaževac), Drina (Loznica). Once every six months sediment samples are collected at the depth from 0 to 10 cm from the river bed. The sediment samples are analyzed by gamma spectrometry. The sediment samples collected from the Danube (at Bezdan) and the Sava (at Sremska Mitrovica) are analysed for the content of <sup>90</sup>Sr.

The samples of water at places Danube and Sava are analyzed by gamma spectrometry as aggregate monthly samples. The samples of water collected at places Nišava, Tisa, Timok and Drina are analysed by gamma spectrometry as aggregate three-monthly samples. The water samples collected from the Danube (at Bezdan) and the Sava (at Sremska Mitrovica) are determined for <sup>3</sup>H i <sup>90</sup>Sr as the aggregate monthly samples.

The samples of drinking water from a water supply system for the settlements with more than 100,000 inhabitants are collected on the daily basis, and total alpha and total beta activity and gamma spectrometric examination is done in the aggregate monthly samples. Radionuclides content in drinking water from a water supply system using water from the Danube and the Sava, the upstream basins of which contain nuclear facilities are analysed also for the content of <sup>90</sup>Sr and <sup>3</sup>H in the aggregate three-monthly samples.

Radionuclides content in foodstuff is examined in the samples of meat, milk, dairy products, cereals, vegetables and fruit. The food samples are collected in Beograd, Subotica, Novi Sad, Niš, Užice, Zaječar and Vranje. Milk samples are collected on the daily basis from the purchasing dairy company network in places and aggregate samples from each of the places are analysed separately. Foodstuff samples are collected from the primary production and radionuclides content is examined according to ripening and breeding (for meat). In particular, composite diet samples are collected from children foodstuff in social institutions (kindergartens, four samples per year) in Beograd, Novi Sad and Niš. Foodstuff samples are analysed by gamma spectrometry and by specific determination of <sup>90</sup>Sr content. Examination of radionuclides content in feedingstuff includes fresh bulk feed, dry bulk feed and mixed fodder for feeding various types and categories of animals. Feed samples are analysed by gamma spectrometry.

Rulebook for establishing Programme of systematic environmental radioactivity examination establishes locations and number of measurements of indoor radon. Indoor radon measurements are performed once a year in 45 homes and 24 schools and kindergartens in 7 cities. Intervention levels for radon in workplaces to 1000 Bq/m<sup>3</sup>, and intervention levels for chronic exposure to radon in homes to 200 Bq/m<sup>3</sup> for newly built and 400 Bq/m<sup>3</sup> for existing building<sup>(3)</sup>.

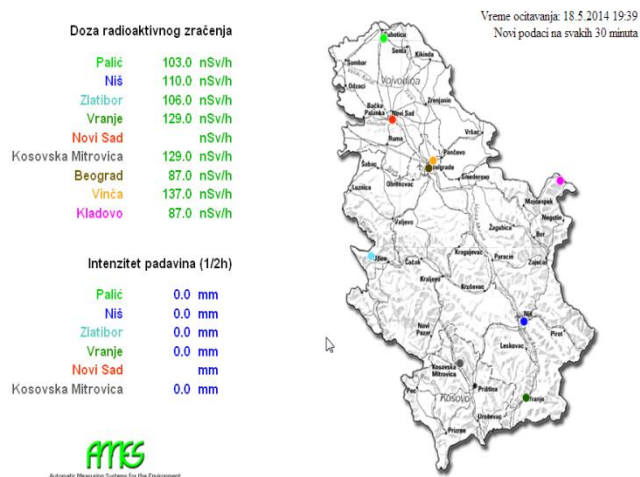
Examination of radionuclides content at locations affected by depleted uranium includes examination of soil, plants and drinking water. The samples of soil and plants are collected at sites Borovac, Bratoselce, Reljan and Pljačkovica. Water samples are collected from the local wells or water supply system at the sites Borovac, Bratoselce, Reljan and Pljačkovica. All samples are analysed by gamma spectrometric analysis for radionuclides content, and in drinking water samples total alpha and total beta activity are measured.

### **3. Results and discussion**

Rulebook on conditions for obtaining decision to perform activities in the field of radiation protection<sup>(4)</sup> regulates conditions that shall be meeting by a legal person that performs activities of the radioactivity monitoring or particular examinations thereof. SRPNA authorizes technical services to perform sampling and analyses. Technical services have to be accredited (appropriate method of examination under SRPS ISO/IEC 17025 for which authorization is being requested or a copy of certificate of international accreditation body recognized by the national accreditation body)<sup>(4)</sup> before obtaining authorization from SRPNA. This ensures that they have technical and human capabilities for performing environmental radioactivity monitoring. Technical services are chosen each year among authorized ones. Legal entities which perform radioactivity monitoring shall deliver to the SRPNA the Report on environmental radioactivity monitoring not later than 31 May of the current year for the previous year, while in case of an accident or at the demand of SRPNA they shall deliver the report forthwith. Annual Report is published SRPNA's website: [www.srbatom.gov.rs](http://www.srbatom.gov.rs)

Serbian Radiation Protection and Nuclear Safety Agency delivering radiological monitoring data from its national surveillance networks to EURDEP system. EURDEP system foresees a standard format for radiological environmental monitoring data and a platform by which to exchange this data. The data-exchange is regulated for EU Member States by the Recommendation 2000/473/EURATOM, for the ECUIRE Member States by the Council Decision 87/600/EURATOM and for the other EURDEP participants by the gentlemen's agreement stipulating that data will be made available or be sent at least once a day under routine conditions and at the least once every two hours during an emergency.

If the Agency, based on the information received from the system for early warning of emergency, direct from a nuclear or radiation facility operator, or through international cooperation, establishes that an emergency has occurred that may cause an additional exposure of the population and the environment of the Republic of Serbia, then an additional number of locations will be determined, as well as the measurement frequency, and the authorized institutions will be required to perform such measurements. Figure 2 shows system for early warning of emergency in Republic of Serbia.



**Figure 2. Radiological early warning system**

#### 4. Conclusion

Human and logistic capabilities, although sufficient, are scattered over several authorized laboratories. Environmental radioactivity monitoring network should be increased by higher number of samples and locations for environmental radioactivity monitoring.

#### 5. Acknowledgment

The investigation was partially supported by the Ministry of Education and Science of the Republic of Serbia under the following Projects III43009 and III43002.

#### 6. References

- [1] Rulebook for establishing Programme of systematic environmental radioactivity examination. *Official Gazette of RS*, No. 100/2010
- [2] Rulebook on Radioactivity Monitoring. *Official Gazette of RS*, No. 97/2011
- [3] Rulebook on limits of exposure to ionizing radiation and measurements for assessment of the exposure levels. *Official Gazette of RS*, No. 86/2011
- [4] Rulebook on conditions for obtaining decision to perform activities in the field of radiation protection. *Official Gazette of RS*, No. 61/2011

## ISPITIVANJE RADIOAKTIVNOSTI U ŽIVOTNOJ SREDINI U PROPISIMA U SRBIJI

**Jasminka D. JOKSIĆ<sup>1</sup>, Mirjana B. RADENKOVIĆ<sup>2</sup>, Vladimir UDOVIČIĆ<sup>3</sup>**

- 1) *Agencija za zaštitu od jonizujućih zračenja i nuklearnu sigurnost Srbije, Beograd, Srbija, joksic@srbatom.gov.rs*
- 2) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke Vinča, P.O. Box 522, 11001 Beograd, Srbija, mirar@vinca.rs*
- 3) *Univerzitet u Beogradu, Institut za fiziku, Beograd, Srbija, udovicic@ipb.ac.rs*

### SADRŽAJ

Glavni cilj monitoringa radioaktivnosti u životnoj sredini je praćenje nivoa radioaktivne kontaminacije i prirodne radioaktivnosti u životnoj sredini kao i praćenje koncentracije radionuklida i upozorenje u slučaju povišenih nivoa zračenja na teritoriji Republike Srbije. Monitoring radioaktivnosti životne sredine u Republici Srbiji se sprovodi u skladu sa dva podzakonska akta: Pravilnikom o utvrđivanju Programa sistematskog ispitivanja radioaktivnosti u životnoj sredini i Pravilnikom o monitoringu radioaktivnosti. Pravilnikom o utvrđivanju programa sistematskog ispitivanja radioaktivnosti u životnoj sredini utvrđuju se mesta, vremenski intervali, vrste i način sistematskog ispitivanja radioaktivnosti u životnoj sredini, dok se Pravilnikom o monitoringu radioaktivnosti uređuju način i uslovi sistematskog ispitivanja radioaktivnosti u životnoj sredini i u životnoj sredini u okolini nuklearnog objekta. Agencija za zaštitu od jonizujućih zračenja i nuklearnu sigurnost (Agencija), regulatorno telo u oblasti zaštite od zračenja i nuklearne sigurnosti, ovlašćuje tehničke servise koji obavljaju uzorkovanje i vrše potrebne analize. Agencija objavljuje godišnji izveštaj o nivou izlaganja stanovništva jonizujućem zračenju u Republici Srbiji.

## POTREBA ZA UVOĐENJEM KONTROLE KVALITETA I OSIGURANJA KVALITETA U BRAHITERAPIJI

**Stefan RAFAJLOVIĆ<sup>1</sup>, Gordan NIŠEVIĆ<sup>2</sup>**

1) Agencija za zaštitu od jonizujućih zračenja i nuklearnu sigurnost Srbije, Beograd,  
Republika Srbija, rafajlovic@srbatom.gov.rs

2) ORTHO Aid, Beograd, Republika Srbija, gordan.nisevic@bestoncosupport.com

### SADRŽAJ

*U važećem Pravilniku o primeni izvora jonizujućih zračenja u medicini brahiterapija kao modalitet radioterapije nije prepoznata. Imajući u vidu regulativu u susjednim državama u regionu i obavezu usklađivanja zakonodavnog okvira Republike Srbije sa pravnim tekovinama Evropske unije u radu je dat pregled zakonske regulative, kada je reč o kontroli kvaliteta u brahiterapiji kod nas i u okruženju. Zaključak je da je uređaje za brahiterapiju neophodno uvesti u zakonsku regulativu i to kroz definisanje testova za kontrolu kvaliteta samog brahiterapijskog uređaja, sistema za planiranje terapije i simulatora koji se koriste u brahiterapiji.*

### 1. Uvod

Brahiterapija je modalitet radioterapije u kome se koriste zatvoreni izvori jonizujućeg zračenja pri čemu se izvor zračenja dovodi u neposredni kontakt sa tumorom, a zbog strmog pada doze, moguće je poštediti okolno zdravo tkivo. U Republici Srbiji postoji pet radioterapijskih centara koji sprovode brahiterapiju, tj. imaju odgovarajuće uređaje i to u: Beogradu, Nišu, Sremskoj Kamenici, Kragujevcu i Kladovu. Zakonskim okvirom koji je usvojen i koji je stupio na snagu u periodu od 2009. do 2012. godine, brahiterapijski centri podležu obavezi dobijanja licence za obavljanje radijacione delatnosti u oblasti radioterapije i rešenja kojima se odobrava korišćenje brahiterapijskih uređaja (slika 1). U skladu sa članom 37. Zakona o zaštiti od jonizujućeg zračenja i o nuklearnoj sigurnosti [1], nosilac licence za obavljanje radijacione delatnosti ima obavezu da uspostavi i da sprovodi sistem upravljanja kvalitetom zajedno sa ovlašćenim pravnim licima. Pravilnikom o primeni izvora jonizujućih zračenja u medicini [2] su u Prilogu 3. dati vremenski intervali i veličine koje se proveravaju u sklopu prijemnih i periodičnih ispitivanja izvora jonizujućih zračenja u medicinskoj primeni koji ne pokrivaju izvore jonizujućih zračenja koji se koriste u brahiterapiji, kao ni brahiterapijske uređaje zbog čega postoji potreba za uvođenjem vrsta merenja i za definisnjem vremenskih intervala za obavljanje merenja. Osnovni cilj programa osiguranja kvaliteta je da obezbedi tačno i pouzdano funkcionisanje kompletnog brahiterapijskog sistema, odnosno mehanike, softvera i uređaja sa radioaktivnim izvorom pri planiranju i primeni terapije kako bi pouzdanost primene izvora, a na prvom mestu isporuka propisane doze pacijentu u regionu od interesa, bila u skladu sa standardima i kako bi se rizik od akcidentalnih situacija sveo na minimum [3,4]. Sa aspekta pacijentne dozimetrije je neophodno uvesti u domaću regulativu program osiguranja kvaliteta u brahiterapiji u skladu sa međunarodnim standardima i preporukama [5,6,7,8]. Osiguranje kvaliteta predstavlja planirane i sistematske aktivnosti koje su neophodne za obezbeđivanje adekvatne pouzdanosti da deo sistema, sistem ili čitav proces zadovoljava uslove kvaliteta, i obuhvata procedure i aktivnosti koje obezbeđuju siguran brahiterapijski tretman. Cilj uspostavljanja osiguranja kvaliteta je prevencija, odnosno redukcija grešaka i nesigurnosti sa aspekta dozimetrije, isporuke

doze i performansi uređaja i opreme, kako bi se tačnost i preciznost brahiterapijskog postupka povećala, a sama verovatnoća akcidenata smanjila. Kontrola kvaliteta predstavlja deo osiguranja kvaliteta i obuhvata skup postupaka koji se primenjuju u cilju održavanja i unapređenja kvaliteta. Kontrola kvaliteta obuhvata ispitivanje, ocenu i održavanje svih merljivih i proverljivih parametara uređaja i opreme na propisanom nivou (prilikom puštanja u rad novih brahiterapijskih sistema, regularna ispitivanja u određenim vremenskim intervalima, ispitivanja nakon servisnih intervencija) i pokazuje aktuelne performanse uređaja i opreme u poređenju sa regulatornim zahtevima.

## **2. Pregled stanja kod nas i u regionu**

Svi korisnici zatvorenih izvora jonizujućih zračenja u radioterapiji podležu obavezi dobijanja licence za obavljanje radijacione delatnosti, što predstavlja usklađivanje sa zakonskim okvirom u Republici Srbiji. Korisnici navedenih izvora jonizujućih zračenja, odnosno nosioci licence za obavljanje radijacione delatnosti su prema članu 11. Pravilnika o uslovima za dobijanje licence za obavljanje radijacione delatnosti [9] dužni da obezbede redovnu godišnju dozimetrijsku kontrolu izvora jonizujućih zračenja



**Slika 1. HDR uređaj za brahiterapiju sa Ir-192 izvorom**

angažovanjem pravnog lica koje poseduje ovlašćenje za merenja radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima profesionalno izloženih lica, pacijenata i stanovništva. Nosioci licence za obavljanje radijacione delatnosti u medicinskoj primeni izvora jonizujućih zračenja su u obavezi prema članu 12. istog pravilnika da sprovedu mere radi kontrole sistema upravljanja kvalitetom mera zaštite od jonizujućih zračenja dinamikom propisanom u Prilogu 3. Pravilnika o primeni izvora jonizujućih zračenja u medicini. U navedenom prilogu date su liste parametara koje je potrebno ispitivati i proveravati na dnevnom, nedeljnom, mesečnom, polugodišnjem ili godišnjem nivou. Navedenim prilogom nisu pokriveni zatvoreni izvori jonizujućih zračenja u brahiterapiji i nisu definisani parametri i veličine koje bi se morale proveravati prilikom prijemnih ispitivanja, kao i u određenom vremenskom intervalu prilikom periodičnih ispitivanja. Imajući u vidu usklađivanje zakonodavnog okvira sa pravnim tekovinama Evropske unije, zemlje u regionu, potrebno je u narednoj izmeni propisa koji regulišu primenu izvora jonizujućih zračenja uvrstiti i prijemna i periodična ispitivanja izvora u

brahiterapiji, sistema za planiranje terapije i simulatora koji se koristi u brahiterapiji. U direktivi Evropske komisije [8] u članu 60. se govori o obavezi posedovanja programa za osiguranje kvaliteta sa ciljem verifikacije doza koje se isporučuju pacijentima, kao i obavljanje prijemnih i periodičnih ispitivanja opreme koja se koristi za kliničke potrebe, što brahiterapija svakako jeste – pa čak možemo konstatovati da po svojoj prirodi predstavlja invazivniji radioterapijski modalitet od transkutane radioterapije.

Neke od zemalja u okruženju (Bosna i Hercegovina, Hrvatska, Slovenija, BJR Makedonija) prepoznaju brahiterapijske primene izvora jonizujućih zračenja u nacionalnim propisima koji regulišu oblast zaštite od zračenja i oblast primene izvora jonizujućih zračenja u medicini. Npr. u Bosni i Hercegovini, u Pravilniku o zaštiti od jonizujućeg zračenja kod medicinske ekspozicije [10], Tabela 35. je dat pregled parametara koje je potrebno proveravati za visokodozne brahiterapijske uređaje, što je u skladu sa kriterijumima datim u preporukama Evropske komisije [6].

Takođe u Hrvatskoj u Pravilniku o uvjetima i mjerama zaštite od ionizirajućeg zračenja za obavljanje djelatnosti s radioaktivnim izvorima [11] u delu: VI.3.1.2. TERAPIJA, kontrola kvaliteta uređaja za brahiterapiju je adekvatno pokrivena.

U Sloveniji, čiji Institut za onkologiju u Ljubljani predstavlja jednu od vodećih evropskih ustanova, kada je brahiterapija u pitanju, zakonska regulative iz 2006. godine na adekvatan način pokriva sve aspekte kontrole kvaliteta uređaja za brahiterapiju [12], u navedenom Pravilniku u delu: IV. 2.2 Brahiradioterapija.

Republika Srbija nije jedina država u regionu u kojoj u odgovarajućim pravilnicima kontrola kvaliteta uređaja za brahiterapiju nije obuhvaćena – isti je slučaj i sa BJR Makedonijom [13].

### **3. Zaključak**

U radu je ukazano da je potrebno uvesti osiguranje kvaliteta uređaja za brahiterapiju u nacionalnu regulativu i to kroz definisanje testova za kontrolu kvaliteta samog brahiterapijskog uređaja, sistema za planiranje terapije i simulatora koji se koristi za planiranje brahiterapije kako bi se u ovoj oblasti definisao odgovarajući regulatorni okvir sa ciljem usklađivanja propisa sa pravnim tekovinama Evropske unije.

### **4. Literatura**

- [1] Zakon o zaštiti od jonizujućeg zračenja i o nuklearnoj sigurnosti. („Službeni glasnik RS“, br. 36/09 i 93/12)
- [2] Pravilnik o primeni izvora jonizujućih zračenja u medicini („Službeni glasnik RS“, br. 1/12)
- [3] Lessons learned from accidental exposures in radiotherapy, IAEA Safety Report Series No. 17, IAEA, 2000.
- [4] Prevention of high-dose-rate brachytherapy accidents, ICRP Publication 97, ICRP, 2004.
- [5] Code of practice for brachytherapy physics: Report of the AAPM Radiation Therapy Committee Task Group No. 56, *Med. Phys.* 24 (10), October 1997.
- [6] Criteria for Acceptability of Medical Radiological Equipment used in Diagnostic Radiology, Nuclear Medicine and Radiotherapy, European Commission, *Radiation Protection No. 162*.
- [7] Setting Up a Radiotherapy Programme: Clinical, Medical Physics, Radiation Protection and Safety Aspects, IAEA, 2008.



[8] COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/EURATOM of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing Directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom

[9] Pravilnik o uslovima za dobijanje licence za obavljanje radijacione delatnosti („Službeni glasnik RS“, br. 61/11)

[10] Pravilnik o zaštiti od jonizujućeg zračenja kod medicinske ekspozicije („Službeni glasnik BiH“, br. 13/11)

[11] Pravilniku o uvjetima i mjerama zaštite od ionizirajućeg zračenja za obavljanje djelatnosti s radioaktivnim izvorima („Narodne novine“, br. 41/13).

[12] Pravilnik o uporabi virov sevanja in sevalni dejavnosti. (“Uradni list RS”, št. 27/2006)

[13] Pravilnik za načinot i rokovite na ispitivanje na izvorite na joniziračko zračenje, merenje na izloženost na pacientite pri dijagnostički i terapevtski postapki, vodenje na evidencija i podnesovanje na izveštai („Službeni vesnik na Republika Makedonija“, br. 126/2010)

## **THE NEED FOR INTRODUCTION QUALITY CONTROL AND QUALITY ASSURANCE IN BRACHYTHERAPY**

**Stefan RAFAJLOVIĆ<sup>1</sup>, Gordan NIŠEVIĆ<sup>2</sup>**

1) *Serbian Radiation Protection and Nuclear Safety Agency, Belgrade, Republic of Serbia, rafajlovic@srbatom.gov.rs*

2) *ORTHOAID, Belgrade, Republic of Serbia, gordan.nisevic@bestoncosupport.com*

### **ABSTRACT**

In current national legislation and in Rulebook on application of the ionizing radiation sources in medicine (Official Gazette of RS, No. 1/12) brachytherapy as radiotherapy modality has not been recognized. Taking into account legal framework in neighboring countries and obligation for aligning national legal framework with EU acquis, an overview of prescribed quality control in brachytherapy in domestic and neighboring countries regulations is given in this paper. The conclusion is that it is necessary to cover brachytherapy through prescribing and defining quality control tests for brachytherapy devices, treatment planning systems and devices used for simulation purposes.

# **МЕТОДЕ ДЕТЕКЦИЈЕ И МЕРНА ИНСТРУМЕНТАЦИЈА**

## ОДРЕЂИВАЊЕ НАЈПОГОДНИЈЕ ГЕОМЕТРИЈЕ УЗОРКА ИЗ ЖИВОТНЕ СРЕДИНЕ ЗА NaI(Tl) ДЕТЕКТОР ОБЛИКА ЈАМЕ

**Јан ХАНСМАН, Миодраг КРМАР, Душан МРЂА, Наташа ТОДОРОВИЋ, Јована НИКОЛОВ, Никола ЈОВАНЧЕВИЋ, Софија ФОРКАПИЋ, Иштван БИКИТ, Кристина БИКИТ**

*Природно-математички факултет, Лабораторија за нуклеарну физику, Нови Сад, Србија, [jan.hansman@df.uns.ac.rs](mailto:jan.hansman@df.uns.ac.rs)*

### **Садржај**

*У овом раду је описана зависност ефикасности  $9'' \times 9''$  NaI(Tl) детектора облика јаме, од величине и геометрије стандардног узорка из животне средине. За тестирање детектора су коришћени абразивни песак са високим садржајем торијума, сирови фосфат са високим садржајем радијума и хемијски чисто једињење калијум хлорида.*

### **1. Увод**

NaI(Tl) детектори облика јаме могу бити веома корисни у нискофонској гамаспектрометрији због практично  $4\pi$  просторног угла који може бити добијен оваквом конфигурацијом. За достизање што је могуће нижих активности, детектор се налази у пасивној заштити од 15 cm олова [1]. Тестирање квалитета пасивне заштите и самог детекторског система је представљено у ранијим радовима [2].

### **2. Експеримент**

У овим експериментима коришћен је NaI(Tl) детектор  $9'' \times 9''$  са јамом и са  $3'' \times 3''$  NaI(Tl) у детектору. Детектор је калибрисан IAEA референтним материјалима [3,4,5]. Коришћење детекторског система у одређивању активности узорка из животне средине, захтева познавање ефикасности детекције, што се може урадити експериментално или Monte-Carlo симулацијама [2,6]. Сам експеримент није урађен са IAEA референтним материјалима због недовољне количине истих. Због тога су узети у обзир материјали који садрже појединачне радионуклиде у свом саставу а којих има довољно у залихама у лабораторији. Погодни материјали су абразивни песак са садржајем  $^{232}\text{Th}$  активности 491(10) Bq/kg, сирови фосфат са  $^{238}\text{U}$  активности 591(9) Bq/kg и хемијски чист калијум хлорид са  $^{40}\text{K}$  активности 16300(200) Bq/kg, где бројеви у загради представљају грешку активности узорка. Треба такође напоменути да сваки од наведених коришћених материјала не садржи другу врсту радионуклида тј. остали радионуклиди ако их и има, су испод граница детекције. Наведене активности материјала са појединачним радионуклидима су одређене калибрисаним, нискофонским, германијумским детекторима. Узорци сваког од појединачних материјала су упаковани у пластичне кутијице димензија наведених у Табели 1. Време мерења појединачних узорка је било ограничено на 1000 секунди. Због слабе резолуције NaI(Tl) детектора, у експерименту су узимане у обзир само гама линије које се налазе саме у спектру и не подлежу под утицај осталих линија из посматраног низа или од других радионуклида. Из тих разлога је за  $^{238}\text{U}$  одабрана гама линија на 1764,5 keV која потиче од  $^{214}\text{Bi}$  а за  $^{232}\text{Th}$  гама линија на 3197 keV која је уствари

сумирана линија од 583 keV и 2614 keV а потиче од  $^{208}\text{Tl}$ . Ефикасност за сваку од појединих гама линија је одређена као у [7]:

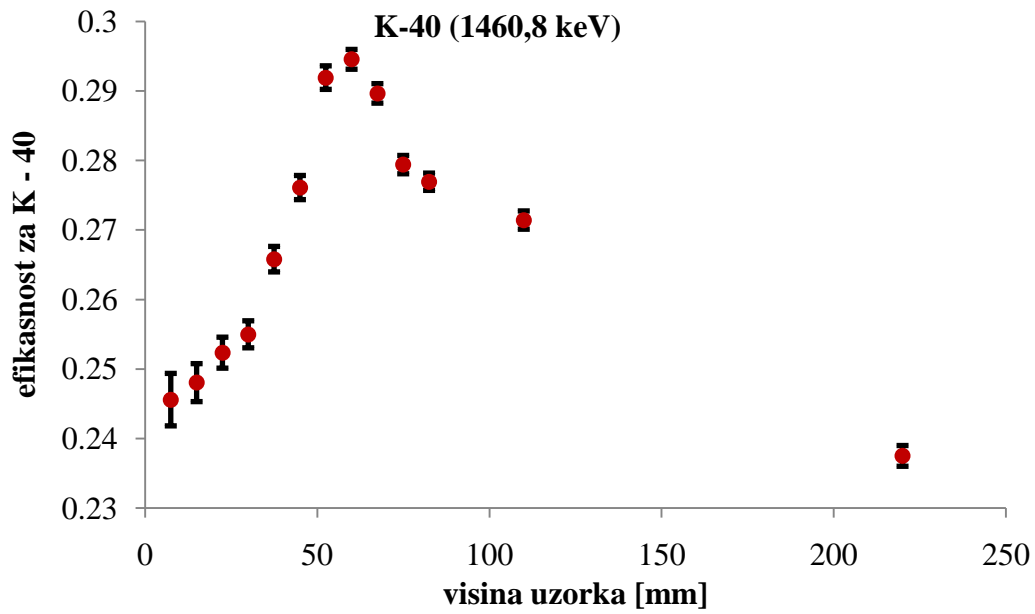
$$\varepsilon = \frac{I_U - I_B}{A m p_\gamma}$$

где су:  $\varepsilon$  - ефикасност,  $I_U$  и  $I_B$  - интензитети линија узорка и фона,  $A$  - активност узорка,  $m$  - маса узорка,  $p_\gamma$  - квантни принос.

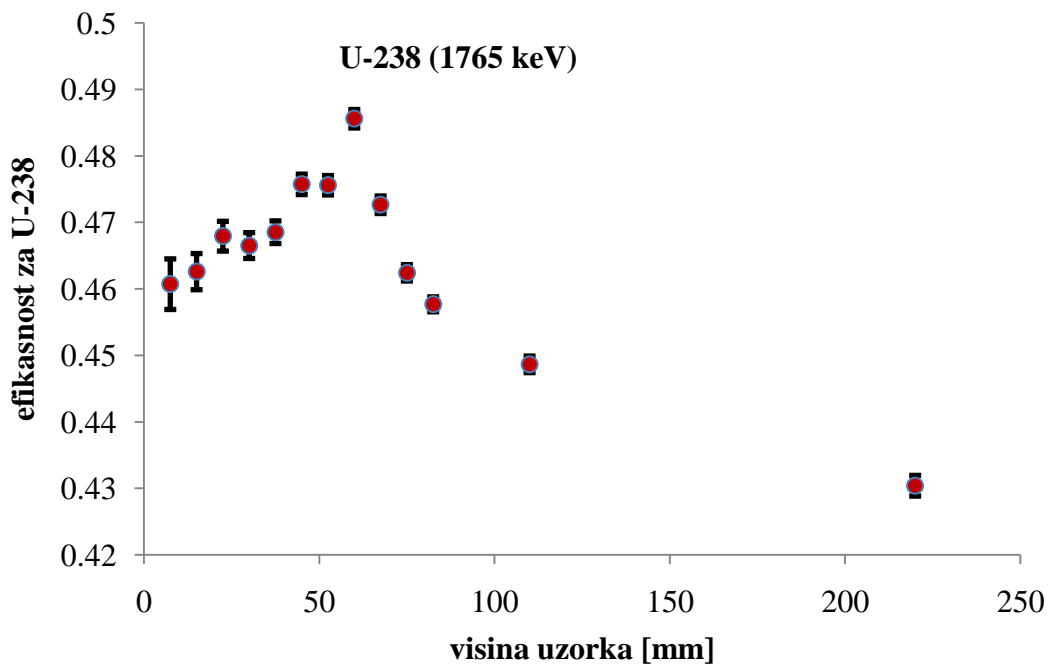
### 3. Резултати

**Табела 1 - геометрије узорка са одговарајућим масама појединих материјала и ефикасностима на посматраној енергији (одговарајућа грешка мерења је наведена у заграда)**

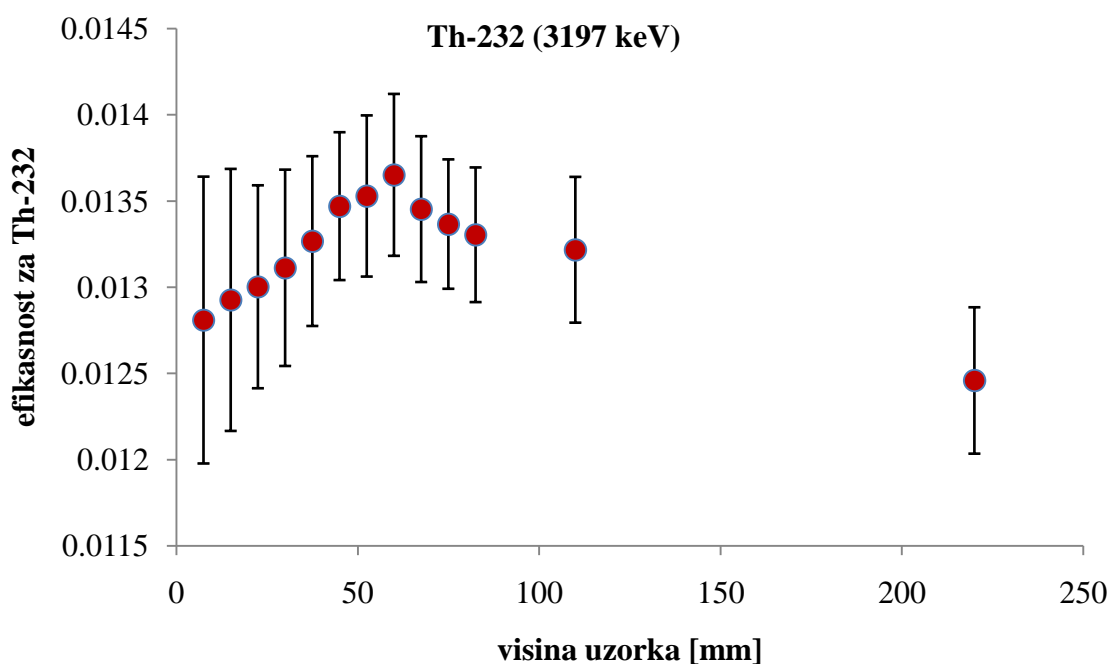
геометрија узорка: висина x пречник (mm)	калијум хлорид маса (g)	сирови фосфат маса (g)	абразивни песак маса (g)	ефикасност $^{40}\text{K}$ (1460 keV)	ефикасност $^{238}\text{U}$ (1765 keV)	ефикасност $^{232}\text{Th}$ (3197 keV)
7,5 x 70	23,8	43,0	63,6	0,246(4)	0,461(4)	0,0128(8)
15 x 70	47,2	86,1	125,3	0,248(3)	0,4626(27)	0,0129(8)
22,5 x 70	71,0	129,1	188,9	0,2523(23)	0,4679(22)	0,0130(6)
30 x 70	126,6	172,0	250,0	0,2550(19)	0,4665(19)	0,0131(6)
37,5 x 70	150,4	215,0	313,6	0,2658(18)	0,4685(17)	0,0132(5)
45 x 70	173,8	258,1	375,3	0,2761(17)	0,4757(15)	0,0135(4)
52,5 x 70	197,6	301,1	438,9	0,2919(17)	0,4756(15)	0,0135(5)
60 x 70	252,8	345,4	498,9	0,2945(14)	0,4856(14)	0,0137(5)
67,5 x 70	276,6	388,4	562,5	0,2896(14)	0,4726(13)	0,0135(4)
75 x 70	300,0	431,5	624,2	0,2794(13)	0,4624(12)	0,0134(4)
82,5 x 70	323,8	474,5	687,8	0,2769(12)	0,4577(11)	0,0133(4)
110 x 50	250,0	299,0	457,7	0,2714(13)	0,4486(12)	0,0132(4)
220 x 30	178,0	211,0	325,0	0,2375(15)	0,4304(16)	0,0125(4)



Слика 1. Зависност ефикасности NaI(Tl) детектора облика јаме од геометрије узорка K-40



Слика 2. Зависност ефикасности NaI(Tl) детектора облика јаме од геометрије узорка U-238



Слика 3. Зависност ефикасности NaI(Tl) детектора облика јаме од геометрије узорка Th-232

#### 4. Закључак

Из наведених резултата и графика се може закључити да се највећа ефикасност код великог NaI(Tl) детектора облика јаме добија за цилиндричну геометрију висине 60 mm а пречника 70 mm. Са повећањем висине узорка почиње да опада и ефикасност детекције гама зрачења, што потиче од смањења просторног угла узорка у односу на детектор. Такође се може видети да и смањење пречника узорка доводи до смањења ефикасности детекције. Ситуација би могла бити другачија у случају посматрања ниских енергија гама зрачења, где би вероватно најпогоднију/највећу ефикасност имали узорци мање висине због самоапсорпције у материјалу узорка [7].

#### 5. Захвалница

Аутори се захваљују на финансијској помоћи Министарства просвете и науке Републике Србије, у оквиру пројекта Нуклеарне методе истраживања ретких процеса и космичког зрачења број 171002 и Испитивање климатских промена и њихов утицај на окружење: импакт, адаптација и митигација број 43007.

#### 6. Литература

- [1] J. Hansman - Design and Construction of a Shield for the 9" x 9" NaI(Tl) Well Type Detector, *Nuclear Technology & Radiation Protection*, Vol. 29, No. 2 (2014) 165-169.
- [2] J.Hansman, D.Mrdja, M.Krmar, I.Bikit, J.Slivka - Efficiency study of a big volume well type NaI(Tl) detector by point and voluminous sources and Monte-Carlo simulation, *Applied Radiation and Isotopes*, ARI-D-14-00575, [Volume 99](#) (2015) 150–154.
- [3] IAEA-RGU-1 Uranium Ore - reference materials, <http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/ReferenceMaterials/Radionuclides/IAEA-RGU-1.htm>

- [4] IAEA-RGTh-1 Thorium Ore - reference materials, <http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/ReferenceMaterials/Radionuclides/IAEA-RGTh-1.htm>
- [5] IAEA-447, Natural and artificial radionuclides in moss-soil - reference materials <http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/ReferenceMaterials/Radionuclides/IAEA-447.htm>
- [6] S. Baccouche, D.Al-Azmi , N.Karunakara , A.Trabelsi - Application of the Monte Carlo method for the efficiency calibration of CsI and NaI detectors for gamma-ray measurements from terrestrial samples, *Applied Radiation and Isotopes* 70 (2012) 227–232.
- [7] F.Cejnar, I.Kovar - Experimental and calculated photopeak efficiency values for well-type NaI(Tl) detectors, *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 31 (1980) 79-84.

### **DETERMINATION OF ENVIRONMENTAL SAMPLE MOST SUITABLE GEOMETRY FOR WELL TYPE NAI(TL) DETECTOR**

**Jan HANSMAN, Miodrag KRMAR, Dusan MRDJA, Natasa TODOROVIC, Jovana NIKOLOV, Nikola JOVANCEVIC, Sofija FORKAPIC, Istvan BIKIT, Kristina BIKIT**

*University of Novi Sad, Faculty of Science, Department of Physics, Novi Sad, Serbia*  
[jan.hansman@df.uns.ac.rs](mailto:jan.hansman@df.uns.ac.rs)

#### **Abstract**

This paper describes, how well type 9`x 9`` NaI(Tl) detector efficiencies depend from size and geometry of standard environmental sample. For detector testing it was used abrasive sand with thorium, raw phosphate with radium and chemically pure potassium chloride.

# NEKE PREDNOSTI VELIKOG NAI DETEKTORA OBLIKA JAME U MERENJU NISKIH AKTIVNOSTI $^7\text{Be}$ U UZORCIMA BIOMONITORA

**Agota KOSORUŠ<sup>1</sup>, Jan HANSMAN<sup>1</sup>, Dragan RADNOVIĆ<sup>2</sup>, Nataša TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Jovana NIKOLOV<sup>1</sup>, Nikola JOVANČEVIĆ<sup>1</sup> i Miodrag KRMAR<sup>1</sup>**

1) Departman za fiziku, Novi Sad, Srbija, [krmar@df.uns.ac.rs](mailto:krmar@df.uns.ac.rs)

2) Departman za biologiju, Novi Sad, Srbija, [dragan.radnovic@dbe.uns.ac.rs](mailto:dragan.radnovic@dbe.uns.ac.rs)

## SADRŽAJ

*U ovom radu su prikazani rezultati ispitivanja primene NaI(Tl) detektora oblika jame u određivanju aktivnosti kosmogenog radionuklida  $^7\text{Be}$  u uzorcima mahovina. Uzorci su mereni u NaI(Tl) detektoru oblika jame zbog potrebe za dobrom statistikom i brzim merenjima za potrebe monitoringa  $^7\text{Be}$ . Rezultati su upoređeni sa onima dobijenim na HPGe detektoru. Kod spektara snimljenih u NaI(Tl) detektoru oblika jame problem predstavlja veliki fon koji otežava njihovu analizu tako da je oduzimanju fona poklonjena posebna pažnja. Analiziran je uticaj oduzimanja fona na dobijene rezultate i na njihove greške. Pokazano je da su aktivnosti dobijene u NaI(Tl) detektoru oblika jame u dobroj saglasnosti sa aktivnostima dobijenim na HPGe detektoru uz zadovoljavajući nivo eksperimentalne greške dobijenih rezultata.*

## 1. Uvod

Kosmogeni radionuklid  $^7\text{Be}$  ( $T_{1/2}=53.12$  dana) nastaje u stratosferi i u gornjim slojevima troposfere usled interakcije kosmičkog zračenja sa atomima azota i kiseonika [1-2]. Nakon stvaranja se vezuje za čestice aerosola i transportuje na površinu zemlje. Praćenjem aktivnosti  $^7\text{Be}$  mogu da se dobiju informacije o procesima koji se odvijaju u atmosferi, npr. kao što je mešanje vazdušnih masa [3]. Mahovine su poznate kao dobri apsorberi teških metala [4], i pokazalo se da uspešno akumuliraju i radionuklid  $^7\text{Be}$ .

U cilju dobijanja pouzdanih i reprezentativnih rezultata o aktivnosti  $^7\text{Be}$  u mahovinama na nekoj teritoriji potrebno je prikupiti veći broj uzoraka, u kojima je aktivnost  $^7\text{Be}$  relativno niska, obično reda veličine nekoliko stotina Bq/kg. Koncentracija  $^7\text{Be}$  se određuje merenjem intenziteta fotolinije na energiji od 477.6 keV, a da bi se dobio statistički pouzdan rezultat vreme merenja je od velike važnosti.

Germanijumski detektori su nenadmašni u gama spektrometriji, međutim ukoliko energijska rezolucija nije od prevashodnog značaja, NaI(Tl) detektori oblika jame se ipak pokazuju korisnijim zbog velike brzine brojanja i velike efikasnosti za detekciju gama fotona. Zahvaljujući ovim pogodnostima, za merenje uzoraka u NaI(Tl) detektoru oblika jame je potrebno manje vremena nego na germanijumskom detektoru.

Laboratorija za nuklearnu fiziku u Novom Sadu raspolaže NaI(Tl) detektorom oblika jame, koji načinjen od anti-komptonskog štita dimanzija 9'x9''. Prikazani rezultati su dobijeni merenjem uzoraka na ovom detektoru. Rezultati dobijeni na NaI detektoru su upoređeni sa rezultatima merenja na HPGe detektoru.

## 2. Merenje i obrada podataka

Mereni su uzorci mahovina koji su prikupljeni na različitim lokacijama tokom leta i jeseni 2014. godine. Uzorci su sušeni do konstantne mase pa su iz njih uklonjene mehaničke nečistoće, uglavnom zemlja, lišće i kora drveta. Uzorci su pakovani u plastične kutijice cilindričnog oblika poluprečnika 67 mm i visine 31 mm. U detektor se



stavljaju dve kutijice. Masa uzorka je bila oko 50 g. Merenja su vršena na HPGe detektoru relativne efikasnosti 25%, kao i u NaI detektoru oblika jame. Dužina merenja na HPGe detektoru je bila reda veličine  $60 \cdot 10^3$  s, dok su u NaI detektoru trajala između jednog i dva sata.

Problem kod analize spektara koji su snimljeni u NaI(Tl) detektoru oblika jame predstavlja fon koji je neizbežan i u debeloj olovnoj zaštiti prvashodno zbog velikih dimenzija i efikasnosti detektora. S obzirom da je ovaj fon relativno stabilan i ne menja se tokom merenja, najbolji način da se smanji njegov uticaj je putem prostog oduzimanja. Iz tog razloga su snimani fonski spektri neposredno pred merenje uzorka i nakon toga da bi se od spektra merenog uzorka oduzeo fonski spektar normiran na vreme trajanja merenja.

**Tabela 1. Aktivnosti dobijene primenom tri različite metode i njihove nesigurnosti**

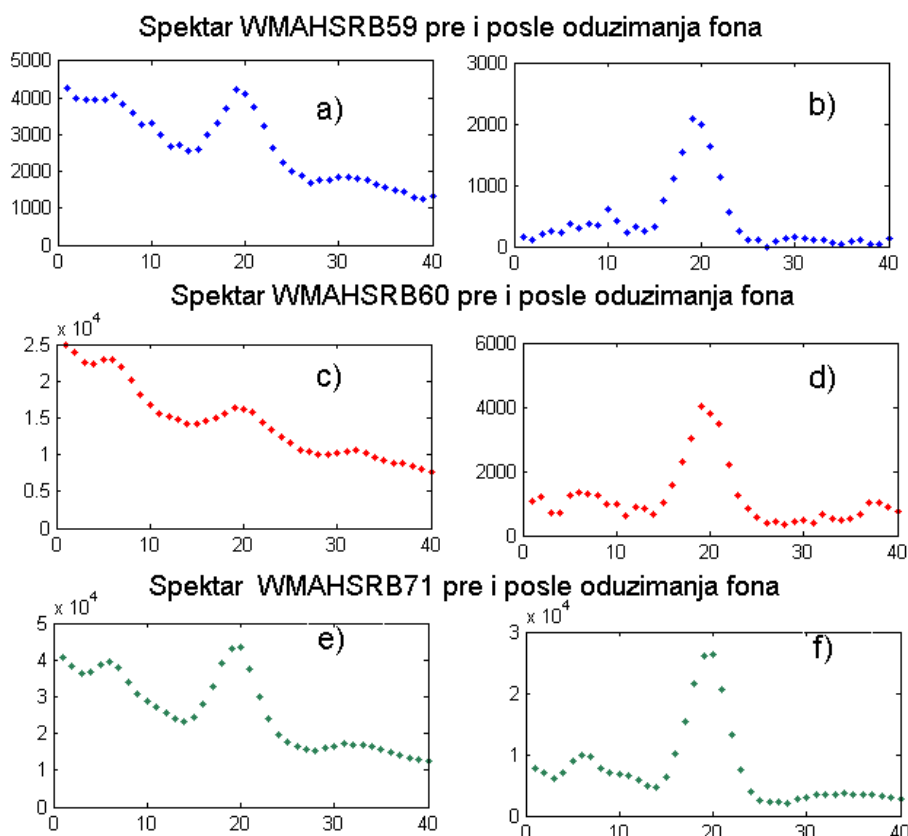
Naziv	HPGe		NaI(Tl)		NaI(Tl) bez fona	
	A [Bq/kg]	Greška [%]	A [Bq/kg]	Greška [%]	A [Bq/kg]	Greška [%]
WMAHTOP1	1290	6,20	1130	0,88	1344	0,97
WMAHTOP2	470	6,38	430	1,16	526	1,14
WMAHSRB56	910	14,29	797	2,13	1006	2,39
WMAHSRB57	430	13,95	501	3,19	461	4,99
WMAHSRB58	480	14,58	872	1,83	571	3,68
WMAHSRB59	990	14,14	1465	1,16	1128	1,86
WMAHSRB60	260	15,38	523	1,15	330	2,42
WMAHSRB61	610	14,75	876	1,14	681	1,91
WMAHSRB62	890	14,61	1191	0,67	1051	0,86
WMAHSRB63	410	14,63	561	2,32	418	4,31
WMAHSRB64	600	15,00	802	1,62	695	2,45
WMAHSRB65	480	14,58	640	1,41	557	2,33
WMAHSRB66	640	14,06	860	1,63	708	2,54
WMAHSRB67	890	14,61	1337	0,45	1140	0,70
WMAHSRB68	950	14,74	1330	0,75	1182	0,93
WMAHSRB69	280	17,86	367	1,36	329	2,13
WMAHSRB70	510	15,69	662	1,81	634	2,52
WMAHSRB71	590	6,78	713	0,84	575	1,04
WMAHSRB72	423	6,62	594	0,67	435	1,15

Aktivnosti uzoraka su dobijane primenom tri metode obrade spektara: (1) automatska analiza pomoću programa Genie-2000 kod merenja na HPGe detektoru, (2) analiza spektara pomoću Aptec programa i (3) analiza u Aptec programu nakon oduzimanja fona od originalnog spektra kod merenja na NaI(Tl) detektoru. Postupak kalibracije detektora na efikasnost je bio sledeći: odabrani uzorak mahovina je snimljen na nekoliko postojećih HPGe detektora da bi se odredila aktivnost  $^7\text{Be}$  u njemu. Efikasnost detektora je kalibrisana pomoću referentnih IAEA materijala (soil – moss, hay). Ovaj je

uzorak poslužio kao referentni za NaI spektre, i na osnovu njega je određena efikasnost detekcije na energiji od 477.6 keV.

### 3. Rezultati i diskusija

Aktivnosti uzoraka dobijene na tri različita načina su prikazane u tabeli 1. Može se videti da postoji izvesna saglasnost između dobijenih vrednosti. Takođe je uočljivo da se vrednosti dobijene sa originalnim spektrima i nakon oduzimanja fona do izvesne mere razlikuju. Na slici 1 prikazani su delovi tri spektra koji sadrže gama liniju od 477.6 keV, pre i nakon oduzimanja fona. Može se videti da se, u nekim slučajevima gde je gama linija bila locirana na visokom kontinuumu (spektar c), nakon oduzimanja fona dobija veoma uočljiva i lepo izolovana gama linija, što znatno olakšava obradu.



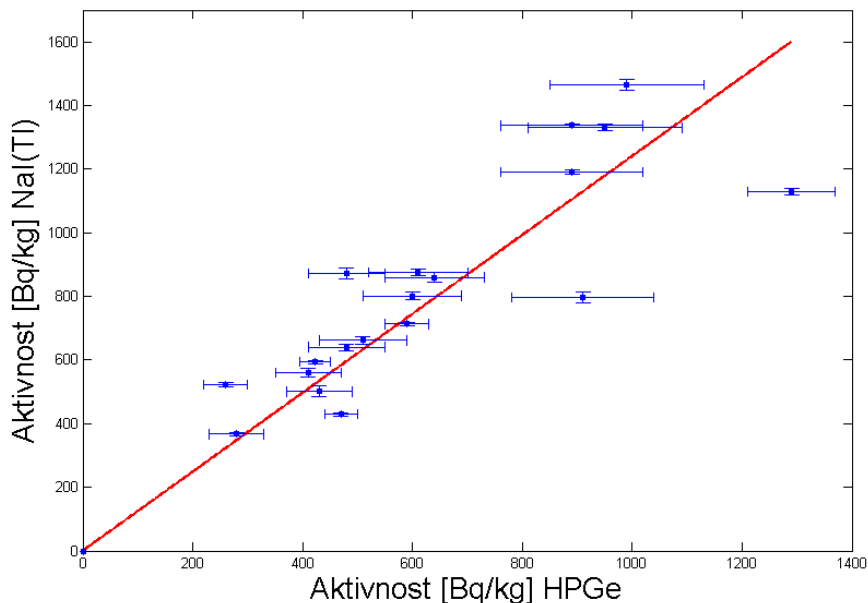
**Slika 1. Izgled dela spektra sa gama linijom od 477.6 keV pre (a, c i e) i nakon oduzimanja fona (b, d i f)**

Za sve spektre, sa i bez fona su određeni odnosi odbroja u fonu i u piku totalne apsorpcije. Kod svih originalnih spektara ovaj odnos je bio manji od 0.6, dok se nakon oduzimanja fona ovaj odnos kreće čak i do 20.

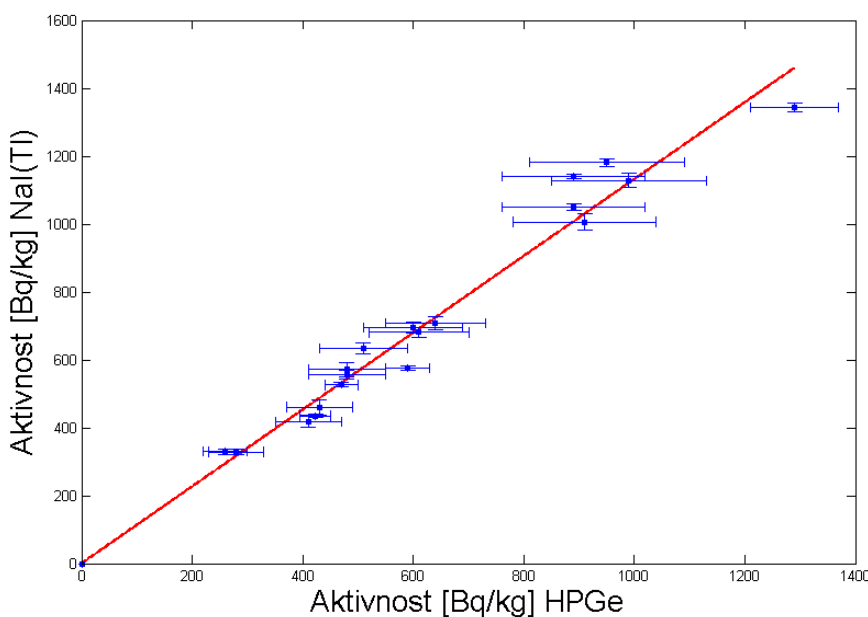
Prilikom procene statističke neodređenosti rezultata mora se voditi računa o tome da su odbroji koji se dobijaju u spektrima nakon oduzimanja fona rezultati matematičke operacije. Ako je  $N_S$  ukupan odbroj u originalnom spektru na mestu pika totalne apsorpcije a  $N_F$  predstavlja fon koji je oduzet, tada se greška određuje po formuli:

$$\sigma_N = \sqrt{\sigma_{NS}^2 + \sigma_{NF}^2} = \sqrt{N_S + N_F} \quad (1)$$

Jasno je da se metodom oduzimanja fona povećaju greške u određivanju aktivnosti. U tabeli 1 se može videti da su greške vrednosti dobijenih nakon oduzimanja fona u nekim slučajevima i do dva puta veće nego greške za aktivnosti dobijene iz originalnih spektara. Međutim, zahvaljujući velikoj brzini detektovanja fotona i velikoj efikasnosti NaI(Tl) detektora oblika jame, možemo očekivati da su ove greške i dalje manje od onih koji se dobijaju u HPGe detektoru. Iz tabele 1 se vidi da su eksperimentalne greške vrednosti aktivnosti izmerenih HPGe detektorom i do deset puta veće od grešaka dobijenih NaI detektorom.



**Slika 2. Korelacija vrednosti dobijenih na HPGe detektoru i na NaI(Tl) detektoru oblika jame bez oduzimanja fona**



**Slika 3. Korelacija vrednosti dobijenih na HPGe detektoru i na NaI(Tl) detektoru oblika jame bez oduzimanja fona**

Ukoliko prihvatimo da su vrednosti koncentracija  $^7\text{Be}$  dobijene merenjima na HPGe detektoru merodavne, kvalitet rezultata merenja na NaI detektoru možemo proceniti samo ukoliko ih poredimo sa rezultatima merenja na HPGe detektoru. Do koje su mere rezultati dobijeni na dva detektora korelirani može se videti na slikama 2 i 3. Iz tabele 1 se može videti da se merenjima na NaI detektoru, sa i bez oduzimanja fona, sistematski dobijaju nešto malo veći rezultati. To se takođe može videti i iz koeficijenta pravca lineane funkcije dobijene fitom postojećih podataka. Naime nagib prave koja se dobija fitom podataka dobijenih merenjima na NaI bez korekcije na fon iznosi 1.24(13). Koeficijent pravca prave koja se izračunava fitom tačaka dobijenih nakon oduzimanja fona je 1.13(4).

Kod originalnih spektara snimljenih u NaI(Tl) detektoru oblika jame, najveća odstupanja od fitovane krive su približno  $\pm 200$  Bq/kg, sa jednom tačkom kod koje ono prelazi 400 Bq/kg. Kod rezultata dobijenih metodom oduzimanja fona najveća odstupanja su približno  $\pm 100$  Bq/kg. Određena je i standardna devijacija, kao mera odstupanja vrednosti dobijenih NaI detektorom u odnosu na merodavne vrednosti merene HPGe detektorom. Za slučaj kada su posmatrani rezultati merenja bez korekcije na fon, standardna devijacija je 259 Bq/kg. U slučaju podataka dobijenih pomoću spektara od kojih je oduzet fon, dobija se da je standardna devijacija jednaka 114 Bq/kg.

#### 4. Zaključak

Rezultati prikazani u ovom radu pokazuju da se NaI(Tl) detektor oblika jame može uspešno koristiti u određivanju aktivnosti  $^7\text{Be}$  u mahovini. Velika efikasnost ovog detektora omogućuje da se i u relativno kratkom intervalu vremena dobiju rezultati kojima je statistička greška za red veličine manja nego kod merenja HPGe detektorom koja traju 15 puta duže. Ukoliko se od spektara uzoraka u NaI detektoru oduzme fon, statistička greška se skoro udvostručava, ali to je još uvek znatno manje od greške koja se dobija HPGe detektorima. Dodatna prednost merenja NaI detektorom se sastoji u tome da se u slučaju kada se od originalnih spektara snimljenih u NaI(Tl) detektoru oblika jame oduzme fon, dobije bolje slaganje rezultata sa onima dobijenim na HPGe detektoru.

#### 5. Literatura

- [1] D. Lal and B. Peters. Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth. *Handbuch der Physik*. 46 (1967) 551-612.
- [2] J. Masarik and J. Beer. Simulation of Particle fluxes and Cosmogenic Nuclides Production in the Earth's Atmosphere. *J Geophys. Res.* 104 No D10 (1999) 12099-12111.
- [3] M. Yoshimori. Atmospheric transport inferred from seasonal variations in cosmogenic Be-7 concentrations. *International Cosmic Ray Conference*. Vol 1 (2008) 669-672.
- [4] Ruhling A. (ed) Atmospheric heavy metal deposition in Europe – estimation based on moss analysis, *Nordic Council of Ministers*, vol 9, AKA Print, Athus, (1994) 1-53.

**SOME ADVANTAGES OF WELL-TYPE NaI DETECTOR IN MEASUREMENTS OF LOW  $^7\text{Be}$  ACTIVITIES IN BIOMONITOR SAMPLES**

**Agota KOSORUŠ<sup>1</sup>, Jan HANSMAN<sup>1</sup>, Dragan RADNOVIĆ<sup>2</sup>, Nataša TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Jovana NIKOLOV<sup>1</sup>, Nikola JOVANČEVIĆ<sup>1</sup> and Miodrag KRMAR<sup>1</sup>**

*1) Department of Physics, Novi Sad, Serbia, krmr@df.uns.ac.rs*

*2) Department of Biology, Novi Sad, Serbia, dragan.radnovic@dbe.uns.ac.rs*

**ABSTRACT**

Possible application of big well-type NaI detector in measurement of activity of  $^7\text{Be}$  in moss samples was investigated. Well-type NaI detector was chosen because short-time and statically well defined results are necessary in some monitoring involving large number of samples. Obtained results are compared with ones gained by the use of HPGe detector. Considering that unavoidable background radiation can make extraction of useful information from spectra much harder, special care was taken to background subtraction. Possible influence of background subtraction on results and experimental uncertainty was analyzed. It was shown that results obtained by NaI detector are in good agreement with HPGe results with much lower statistical uncertainty.

## ЗАВИСНОСТ ЕФИКАСНОСТИ NaI(Tl) ДЕТЕКТОРА ОБЛИКА ЈАМЕ ОД ПОЛОЖАЈА ИЗВОРА

**Јан ХАНСМАН, Миодраг КРМАР, Агота КОСОРУШ, Бранкица АНЂЕЛИЋ**

*Природно-математички факултет, Лабораторија за нуклеарну физику,*

*Нови Сад, Србија, [jan.hansman@df.uns.ac.rs](mailto:jan.hansman@df.uns.ac.rs), [krmar@df.uns.ac.rs](mailto:krmar@df.uns.ac.rs)*

### **Садржај**

*У овом раду је описана зависност ефикасности  $9'' \times 9''$  NaI(Tl) детектора облика јаме у 15  $\mu$ m оловној заштити од положаја тачкастог радиоактивног извора. Да би биле избегнуте велике вредности мртвог времена, због велике ефикасности детектора, коришћени су релативно стари и слаби тачкасти извори са активношћу од неколико хиљада бекерела. Тачкасти извори са одговарајућим особинама у Лабораторији за нуклеарну физику, Нови Сад су  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  и  $^{22}\text{Na}$ . Представљени су резултати за појединачне и сумиране гама линије.*

### **1. Увод**

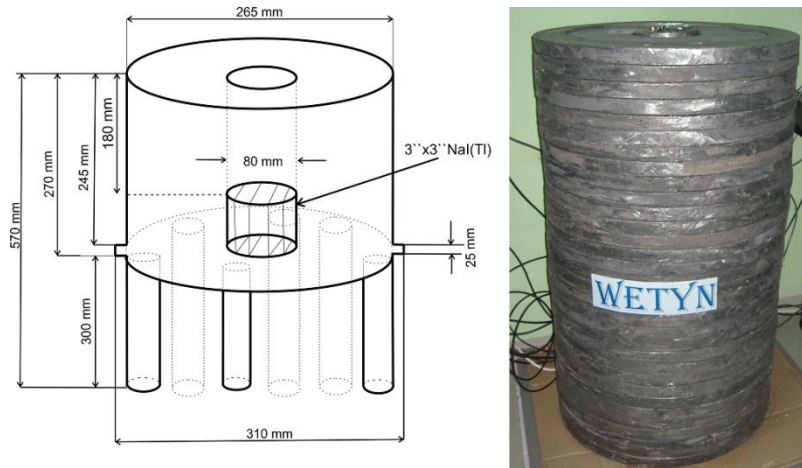
NaI(Tl) детектори облика јаме су веома корисни у нискофонској гамаспектрометрији због практично  $4\pi$  просторног угла који може бити добијен оваквом конфигурацијом. За употребу оваквог типа детектора у гама спектрометрији, неопходно је знати зависност ефикасности и резолуције детектора од енергије и дубине јаме детектора [1,2,3]. Такође, самоапсорпција гама зрачења у узорку доводи до смањења ефективне ефикасности система [4,5,6]. У овом раду, представљене су вредности ефикасности  $9'' \times 9''$  NaI(Tl) детектора облика јаме за три радиоактивна, тачкаста извора на различитим дубинама у јами детектора.

### **2. Експеримент**

NaI(Tl) детектор облика јаме који је коришћен у овим експериментима је био  $9'' \times 9''$  са  $3'' \times 3''$  NaI(Tl) унутар јаме детектора (слика 1). Сигнали из „великог“ и „малог“ детектора се сумирају у појачавачу Canberra модел 2022. Из појачавача, сигнали иду у Canberra Multiport II Multichannel Analyzer и онда даље у Genie 2000 софтвер.

Пре склапања целог детекторског система, тестирани су сви фотомултипликатори појединачно, тачкастим извором  $^{137}\text{Cs}$ .  $9'' \times 9''$  NaI(Tl) детектор је повезан на извор високог напона Canberra Model 3002D и подешен на 1000 V, док је  $3'' \times 3''$  NaI(Tl) подешен на 680 V преко Canberra Model 3005. Фино подешавање напона сваког од детектора је веома важно, јер и мала промена од 1 V може допринети размазивању и проширењу линија у спектру.

Коришћени тачкасти извори у експерименту су релативно стари и слаби, да би се избегло велико мртво време детектора. Активности коришћених извора су:  $^{54}\text{Mn}=396$  Bq (датум производње 15.02.2005.),  $^{60}\text{Co}=2795$  Bq (датум производње 01.06.1976.) и  $^{22}\text{Na}=27200$  Bq (датум производње 01.05.2002.), сваки са несигурношћу од 1,5%. Мртво време детектора је било испод 0,5% са  $^{54}\text{Mn}$  и  $^{60}\text{Co}$  и око 6% са  $^{22}\text{Na}$ . Укупна времена мерења су била ограничена на по 600 секунди по једном спектру. Као носач и држач тачкастог извора унутар јаме детектора, коришћена је клизна, двострука картонска цев са маркираним вредностима дубине.



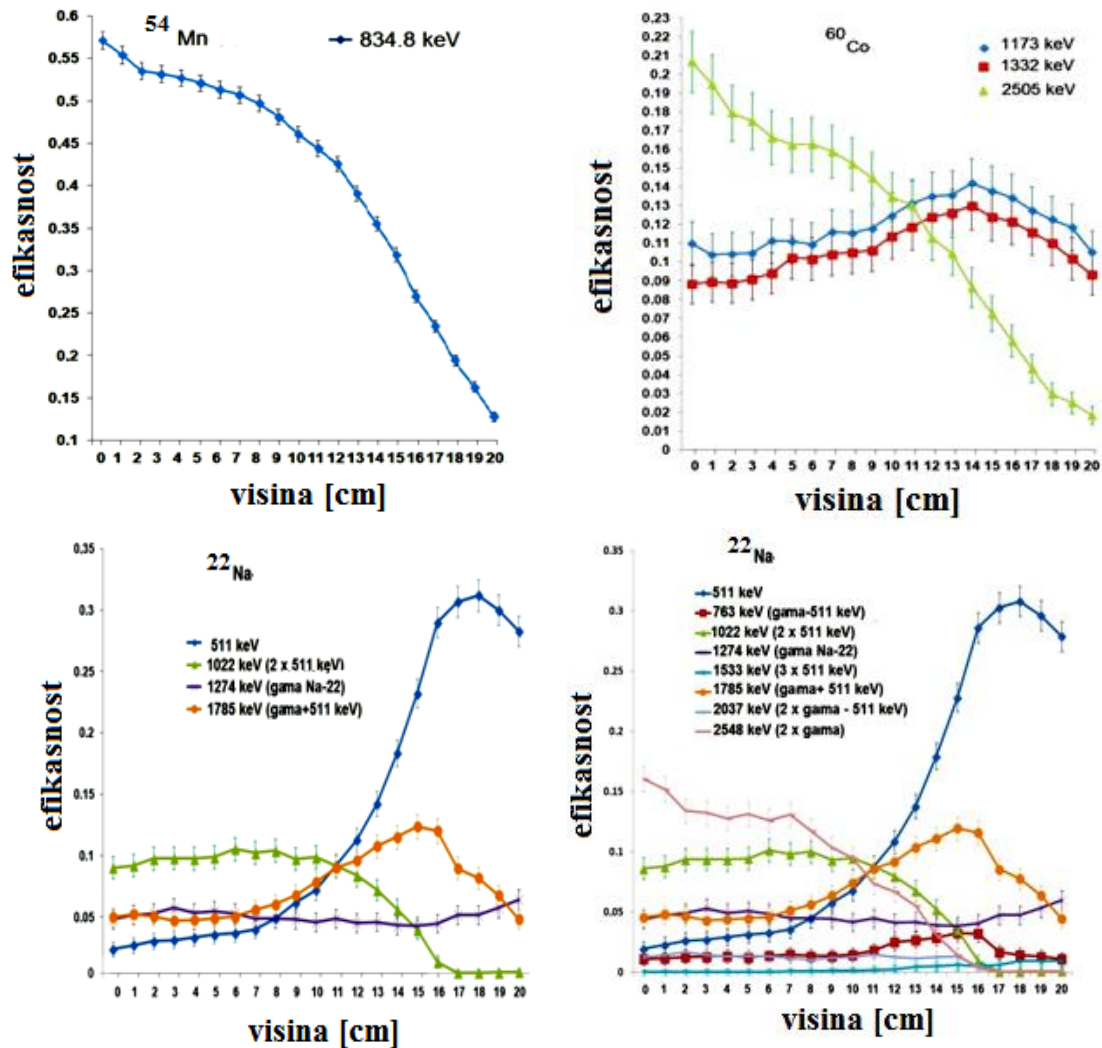
Слика 1. Шематски приказ и фотографија NaI(Tl) детектора облика јаме

### 3. Резултати

У Табели 1 су приказани резултати за сва три коришћена извора ( $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  и  $^{22}\text{Na}$ ) у корацима по 1 cm почевши од дна јаме (обележено са 0 cm - на капи 3'' x 3'' NaI(Tl) детектора) па до 20 cm (2 cm изван јаме детектора).

Табела 1. Ефикасности детектора за тачкасте изворе Mn-54, Co-60 и Na-22 (h представља удаљеност положаја извора од дна јаме детектора)

h (cm)	Ефикасност											
	$^{54}\text{Mn}$ 834,8	$^{60}\text{Co}$			$^{22}\text{Na}$							
	1173	1332	2505	511	763	1022	1274	1533	1785	2037	2548	
0	0,567(9)	0,109(12)	0,088(11)	0,206(16)	0,019(6)	0,011(5)	0,086(9)	0,043(8)	0,000(3)	0,045(8)	0,012(6)	0,160(11)
1	0,552(9)	0,103(11)	0,089(11)	0,194(15)	0,022(6)	0,011(5)	0,087(9)	0,047(8)	0,000(3)	0,048(8)	0,014(6)	0,151(11)
2	0,535(9)	0,104(11)	0,088(11)	0,179(15)	0,026(6)	0,012(5)	0,093(9)	0,048(8)	0,000(3)	0,046(8)	0,016(6)	0,134(10)
3	0,532(9)	0,104(11)	0,090(11)	0,175(14)	0,026(6)	0,013(5)	0,093(9)	0,053(8)	0,000(3)	0,043(8)	0,014(6)	0,132(10)
4	0,528(9)	0,111(12)	0,093(11)	0,166(14)	0,029(6)	0,013(5)	0,093(9)	0,049(8)	0,000(3)	0,043(8)	0,013(6)	0,127(10)
5	0,522(9)	0,111(12)	0,102(11)	0,162(14)	0,031(7)	0,012(5)	0,094(9)	0,050(8)	0,000(3)	0,044(8)	0,013(6)	0,131(10)
6	0,515(9)	0,109(12)	0,101(11)	0,162(14)	0,032(7)	0,013(5)	0,101(9)	0,048(8)	0,000(3)	0,046(8)	0,013(6)	0,125(10)
7	0,510(9)	0,115(12)	0,104(11)	0,158(14)	0,035(7)	0,014(5)	0,098(9)	0,044(8)	0,000(3)	0,051(8)	0,012(6)	0,130(10)
8	0,501(9)	0,115(12)	0,105(11)	0,152(13)	0,044(7)	0,013(5)	0,100(9)	0,044(8)	0,000(3)	0,056(8)	0,010(5)	0,117(10)
9	0,487(9)	0,117(12)	0,106(12)	0,144(13)	0,057(8)	0,013(5)	0,093(9)	0,044(8)	0,001(3)	0,063(8)	0,012(6)	0,103(10)
10	0,469(8)	0,124(13)	0,113(12)	0,134(13)	0,067(8)	0,014(5)	0,094(9)	0,041(8)	0,001(3)	0,074(8)	0,012(6)	0,094(9)
11	0,454(8)	0,131(13)	0,118(12)	0,130(12)	0,087(9)	0,018(6)	0,087(9)	0,044(8)	0,002(4)	0,086(9)	0,014(6)	0,073(8)
12	0,437(8)	0,135(13)	0,123(12)	0,112(11)	0,108(9)	0,024(6)	0,079(8)	0,041(8)	0,002(4)	0,091(9)	0,012(6)	0,066(8)
13	0,406(8)	0,135(13)	0,126(12)	0,104(11)	0,137(10)	0,026(6)	0,068(8)	0,041(8)	0,004(4)	0,103(9)	0,011(5)	0,055(8)
14	0,375(7)	0,141(13)	0,129(12)	0,086(10)	0,179(11)	0,028(6)	0,052(7)	0,039(7)	0,005(4)	0,111(9)	0,012(6)	0,030(6)
15	0,342(7)	0,137(13)	0,123(12)	0,072(9)	0,228(11)	0,032(7)	0,035(7)	0,038(7)	0,006(5)	0,119(9)	0,013(6)	0,014(5)
16	0,299(7)	0,134(13)	0,121(12)	0,058(8)	0,285(12)	0,031(7)	0,009(5)	0,040(7)	0,005(4)	0,116(9)	0,005(4)	0,003(4)
17	0,267(6)	0,127(13)	0,115(12)	0,043(7)	0,302(12)	0,016(5)	0,000(3)	0,047(8)	0,006(5)	0,085(9)	0,000(2)	0,000(2)
18	0,231(6)	0,122(12)	0,110(11)	0,029(6)	0,307(12)	0,014(5)	0,000(3)	0,047(8)	0,009(5)	0,077(8)	0,000(2)	0,000(2)
19	0,203(5)	0,118(12)	0,101(11)	0,025(5)	0,295(12)	0,013(5)	0,000(3)	0,053(8)	0,009(5)	0,063(8)	0,000(2)	0,000(2)
20	0,172(5)	0,105(12)	0,093(11)	0,018(4)	0,278(12)	0,011(5)	0,001(3)	0,059(8)	0,009(5)	0,044(8)	0,000(2)	0,000(2)



Слика 2. Зависност ефикасности детектора облика јаме од положаја извора  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  и  $^{22}\text{Na}$

На слици 2 су графички представљене зависности ефикасности детектора од положаја тачкастог извора за  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  и  $^{22}\text{Na}$ . Најједноставнији случај је наравно код  $^{54}\text{Mn}$  са само једном гама линијом (834,8 keV). Ефикасност је највећа када је извор дубоко у јами детектора и полако опада до 10 cm висине када почиње нагло опадање ефикасности.

$^{60}\text{Co}$  има две гама линије (1173 keV и 1332 keV) и због велике вероватноће сумирања, у спектру постоји и линија на 2505 keV (1173+1332). Понашање линије на 2505 keV је слично као и код линије  $^{54}\text{Mn}$ . Линије на 1173 keV и 1332 keV показују тренд лаганог повећања ефикасности све до неких 14 cm и после ефикасност опада. Изненађујуће је да чак и кад се извор извади сасвим напоље из јаме детектора (после 18 cm) ефикасност за ове две линије има практично вредности у опсегу оних кад је извор дубоко у јами детектора. За овакав експеримент се може закључити да би најподеснији положај узорка/извора био између 12-15 cm висине, где је вероватноћа сабирања линија пуно мања (ако је циљ посматрања само директна гама линија, без сумирања).

Најкомплекснији случај је код  $^{22}\text{Na}$  у чијем спектру се налазе анихилациона линија на 511 keV и гама линија на 1274 keV. Понекад се могу пронаћи и линије



на 1022 keV (511+511 keV) и 1785 keV (гама+511 keV). У случају великог NaI(Tl) детектора облика јаме, у спектру су присутне и: 763 keV (гама-511 keV), 1533 keV (511+511+511 keV), 2037 keV (гама+гама-511 keV) и 2548 keV (гама+гама). Сви резултати за  $^{22}\text{Na}$  су приказани на 3. и 4. графику на слици 2.

Интересантно је, да је ефикасност линије 1274 keV практично константна и као да не зависи од положаја извора. То је због ефеката бежања фотона од 511 keV, сумирања са 511 keV и сумирања гама линије саме са собом (2548 keV). Ефикасност на 511 keV се не мења до 8 cm кад почиње рапидно расти све до 18 cm (дубина јаме) и после тога опада. 1022 keV (511+511 keV) је константна до око 10 cm, кад почиње да опада и постаје 0 када се извор налази ван јаме детектора. Понашање осталих поменутих линија је приказано на 4.-ом графику слике 2.

#### 4. Закључак

Као што се може видети са графика, ефикасност великог NaI(Tl) детектора облика јаме, зависи не само од саме позиције извора него и од активности извора, броја фотопикова у спектру и саме шеме распада посматраног радионуклида (да ли су гама линије коинцидентне или не, да ли постоји угаона зависност емитовања гама линија итд.).

Када је радиоактивни извор релативно слаб, са малом брзином бројања, мала је вероватноћа сумирања линија у спектру, па су и резултати релативно једноставни ( $^{54}\text{Mn}$ ). Више проблема настаје кад извори имају већу активност ( $^{22}\text{Na}$ ) и када имају угаону зависност ( $180^\circ$  за 511 keV) [7]. У таквом случају, чисти фоторх без утицаја сумирања се може добити само у случају да се извор налази ван јаме детектора. Унутар јаме ће увек бити сумирања линија што често може отежати одређивање тачне активности извора.

*Представљени резултати су део објављеног рада:*

**J.Hansman, D.Mrdja, M.Krmar, I.Bikit, J.Slivka** - *Efficiency study of a big volume well type NaI(Tl) detector by point and voluminous sources and Monte-Carlo simulation, Applied Radiation and Isotopes, ARI-D-14-00575, [Volume 99](#), May 2015, Pages 150–154*

#### 5. Захвалница

Аутори се захваљују на финансијској помоћи Министарства просвете и науке Републике Србије, у оквиру пројекта Нуклеарне методе истраживања ретких процеса и космичког зрачења број 171002 и Испитивање климатских промена и њихов утицај на окружење: импакт, адаптација и митигација број 43007.

#### 6. Литература

- [1] W. Mannhart, H. Vonach. A new method for the experimental determination of the efficiency of a large well type detector, *Nuclear Instruments and Methods*. 151 (1978) 157-162.
- [2] G.A. Brinkman, A.H.W. Aten, Jr. and J.Th. Veenboer. Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal, *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, Vol.14 (1963) 153-157, 433-437, 503-510.

- [3] F. Cejnar, I. Kovar. Experimental and calculated photopeak efficiency values for well-type NaI(Tl) detectors, *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*. 31 (1979) 79-84.
- [4] S. Pomme - STEFFY software to calculate nuclide specific total counting efficiency in well type gamma ray detectors , *Applied Radiation and Isotopes*. 70 (2012) 2070–2074.
- [5] S. Pomme - Methods for primary standardization of activity, *Metrologia*. 44 (2007) S17–S26.
- [6] U. Akar Tarim, E. N. Ozmutlu, O. Gurler, S. Yalcin - The Effect of the Housing Material on the NaI(Tl) Detector Response Function, [\*Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry\*](#). 293 (2012) 425–429.
- [7] I. Sýkora, M. Jeřkovský, R. Janik, K. Holý, M. Chudý, P. P. Povinec - [Low-level single and coincidence gamma-ray spectrometry](#). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistr*. 276 (3) (2008) 779–787.

## **DEPENDENCE OF WELL TYPE NAI(TL) DETECTOR EFFICIENCY FROM SOURCE POSITION**

**Jan HANSMAN, Miodrag KRMAR, Ágota KOSZORÚS, Brankica ANDJELIC**  
*University of Novi Sad, Faculty of Science, Department of Physics, Novi Sad, Serbia*  
[jan.hansman@df.uns.ac.rs](mailto:jan.hansman@df.uns.ac.rs) , [krmar@df.uns.ac.rs](mailto:krmar@df.uns.ac.rs)

### Abstract

This paper describes, how does detector efficiency of well type 9``x 9`` NaI(Tl) inside 15 cm lead shield, depend from positions of radioactive point source. To avoid large dead time, due to large detector efficiency, old/weak point sources with relatively small activity of couple thousands Bq were used. Point sources with desirable characteristics in Laboratory for Nuclear Physics, Novi Sad were <sup>54</sup>Mn, <sup>60</sup>Co and <sup>22</sup>Na. Results for single gamma lines and also for coincidence summing gamma lines are presented.

# МЕРЕЊЕ ПРИРОДНЕ РАДИОАКТИВНОСТИ NaI(Tl) ДЕТЕКТОРОМ КАЛИБРИСАНИМ GEANT4 СИМУЛАЦИЈАМА

**Јан ХАНСМАН, Душан МРЂА, Иштван БИКИТ, Јарослав СЛИВКА,  
Кристина БИКИТ, Јована НИКОЛОВ, Софија ФОРКАПИЋ, Наташа  
ТОДОРОВИЋ**

*Природно-математички факултет, Лабораторија за нуклеарну физику,  
Нови Сад, Србија  
[jan.hansman@df.uns.ac.rs](mailto:jan.hansman@df.uns.ac.rs)*

## САДРЖАЈ

*Радиоактивност узорака из животне средине се обично одређује високо резолуционим HPGe детекторима. Ипак, због велике ефикасности и запремине, NaI(Tl) детектор облика јаме, упркос много слабијој резолуцији, захтева релативно кратка времена мерења, а даје чак и ниже границе детекције. За одређивање садржаја U-238, Th-232 и K-40 у узорцима, помоћу оваквог NaI(Tl) детектора, морају бити познате ефикасности одговарајућих фотоврхова које се могу одредити и симулацијама Geant4 софтвером. У овом раду су упоређене ефикасности добијене експерименталним путем у односу на оне добијене Monte-Carlo симулацијама у Geant4. Добијена одступања у резултатима су 5%-50%, што се може највише приписати ефектима колекције светла у запремини детектора и ефектима који нису били узети у обзир у симулацијама. Показано је да је утицај случајних коинцидентних сумирања на ефикасност детекције за радионуклиде активности од 130 Bq - 4000 Bq занемарив.*

## 1. Увод

Главни мотив за коришћење великих NaI(Tl) детектора облика јаме за мерење радиоактивности узорака из животне средине, јесте пуно већа ефикасност детекције у поређењу са HPGe детектора [1]. Ово за собом повлачи краћа времена мерења и могућност достизања детекције нижих активности. Коришћени NaI(Tl) детектор има масу кристала 41,4 кг (дебљине зидова 3 инча, дубине јаме 6 инча) и постављен је у 15 cm оловну заштиту домаће производње. Максимална запремина узорка за мерење је око 800 cm<sup>3</sup>.

Иако се ефикасност детекције фотоврха може одредити експериментално помоћу одговарајућих запреминских извора, разлике у саставу и геометрији осталих типова узорака из животне средине, захтевају нове калибрације ефикасности референтним материјалима, што често није могуће да се изведе у пракси. Као могуће решење овог проблема јесте одређивање ефикасности детекције Monte-Carlo симулацијама.

Овакав приступ захтева експериментална тестирања, где се резултати симулација упоређују са експерименталним вредностима, користећи запреминске изворе познатих активности природних изотопа као што су <sup>40</sup>K, <sup>232</sup>Th и <sup>238</sup>U. Ово даје основу у поузданост нових симулација за различите типове састава и геометрија узорка а без накнадних експерименталних проверавања. Због велике ефикасности поменутог NaI(Tl) детектора облика јаме, посебно треба обратити пажњу на могући ефекат случајних коинциденција [2] на ефикасност детекције за различите активности мерених узорака.

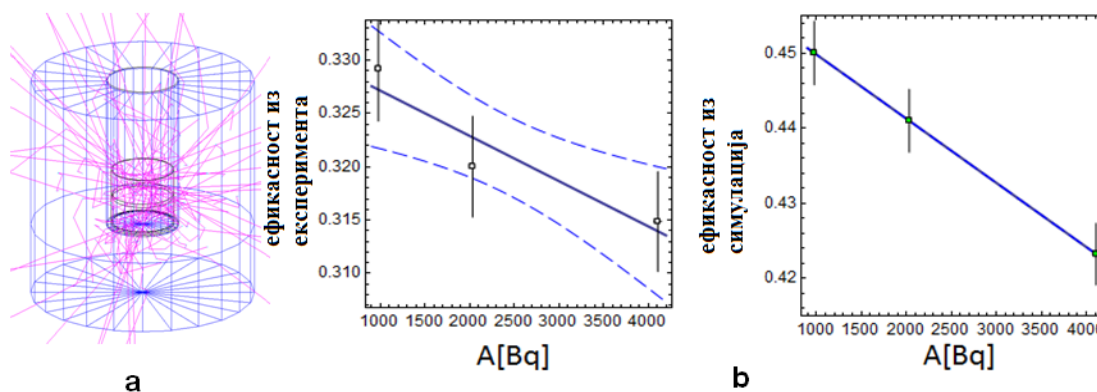
## 2. Експериментални резултати и Monte-Carlo симулације

Ефикасности енергијских врхова су експериментално одређене за следеће гама енергије: <sup>40</sup>K (1460.8 keV), <sup>212</sup>Bi/<sup>232</sup>Th (238.6 keV) и <sup>234</sup>Th/<sup>238</sup>U (63.29 keV, 92.56 keV,

92.78 keV). Као запремински извори са познатим активностима  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$  коришћени су KCl, абразивни песак ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) и моноамонијум фосфат ( $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ ), упаковани у пластичне, цилиндричне бочице промера 70 mm и висине 60 mm. Да би се достигле и ниже активности наведених радионуклида у извору, коришћени материјали су разређивани хемијски чистим прашком калцијум оксида (CaO) (Табела 1), док је геометрија извора остала непромењена. Укупан број припремљених извора је био 10.

**Табела 1. Материјали коришћени као запремински извори са припадајућим активностима сваког извора и експериментално одређеним ефикасностима.**

Састав запреминског извора	Активност $^{40}\text{K}$ [Bq]	Ефикасност на 1460,8 keV
KCl (252,8 g)	4110(40)	0,315(5)
KCl (124,8 g) + CaO (60 g)	2030(20)	0,320(5)
KCl (60 g)+CaO (90 g)	975(10)	0,329(5)
	Активност $^{232}\text{Th}$ [Bq]	Ефикасност на 238,6 keV
$\text{Al}_2\text{O}_3$ (499,1 g)	3880(60)	0,420(10)
$\text{Al}_2\text{O}_3$ ( 256 g) + CaO (74,7 g)	1992(29)	0,390(10)
$\text{Al}_2\text{O}_3$ (120 g) + CaO (103 g)	934(14)	0,410(10)
$\text{Al}_2\text{O}_3$ (20 g)+ CaO(119,5 g)	155,6(24)	0,520(12)
	Активност $^{238}\text{U}$ [Bq]	Ефикасност на 63-93 keV
$\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (209,9 g)	360(30)	0,66(6)
$\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (104,4 g)+CaO(105,8 g)	179(15)	0,69(6)
$\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (74,4 g) + CaO(119,6 g)	128(11)	0,68(6)



**Слика 1. а) симулиране путање фотона енергије 1460,8 keV, емитованих из цилиндричног извора KCl, смештеног у јами NaI(Tl) детектора**

**б) експерименталне и симулиране ефикасности на 1460,8 keV добијене за различите матрице извора (најнижа активност  $^{40}\text{K}$  одговара највишем садржају CaO у извору)(тачке представљају експерименталне а криве рачунске вредности)**

Експерименталне ефикасности  $\epsilon$ , које су наведене у трећој колони Табеле 1, су одређене из  $\epsilon = R/(A p_\gamma)$ , где су R-нето одброј под енергијским врхом, A-активност извора и  $p_\gamma$ -вероватноћа емисије гама зрака. У случају гама емисије из  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ , један фотоврх у региону спектра 63-93 keV NaI(Tl) детектора, потиче од 3 енергије (63,29 keV, 92,56 keV, 92,78 keV), па је тако укупна вероватноћа емисије гама зрака  $p_\gamma = p_{\gamma 1} + p_{\gamma 2} + p_{\gamma 3}$ .

За све наведене саставе запреминских узорака, урађене су Monte-Carlo симулације софтвером Geant4 [3] (слика 1). Укупан број генерисаних фотона у свакој од

симулација је био  $10^5$ . Осим детаљних података о детектору и геометрији извора, улазни параметри симулација су били енергија емитованих фотона и састав и густина сваког извора.

**Табела 2. релативне разлике симулираних у односу на експериментално добијене ефикасности**

Састав запреминског извора	релативна разлика [%] на 1460,8 keV
KCl (252,8 g)	34
KCl (124,8 g) + CaO (60 g)	38
KCl (60 g)+CaO (90 g)	37
	релативна разлика [%] на 238,6 keV
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (499,1 g)	52
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ( 256 g) + CaO (74,7 g)	64
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (120 g) + CaO (103 g)	50
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (20 g)+ CaO(119,5 g)	30
	релативна разлика [%] на 63-93 keV
NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (209,9 g)	5
NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (104,4 g) + CaO(105,8 g)	-5
NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (74,4 g) + CaO(119,6 g)	3

Релативне разлике симулираних ефикасности према експерименталним резултатима су приказани у Табели 2. Разлике су израчунате као  $((\epsilon_{sim}-\epsilon_{exp})/\epsilon_{exp})\cdot 100\%$ , где су  $\epsilon_{sim}$  и  $\epsilon_{exp}$  симулиране и експерименталне ефикасности.

Како се може видети из резултата у Табели 2, симулиране ефикасности се слажу са експериментално добијеним вредностима на ниским енергијама (63-93 keV). Већа одступања су се појавила у резултатима добијеним на вишим енергијама, где су симулиране вредности веће од експерименталних за око 35% на 1460,8 keV и за око чак 50% на 238,6 keV. Могући узрок ових одступања би могао бити у ефектима енергијске зависности приноса фотона и некомплетне колекције светлости у валикој запремини детектора и ови ефекти нису били узети у обзир приликом симулација. На слици 1б приказано је како експериментално одређене ефикасности опадају за  $\sim 5\%$ , када се користи чисти извор KCl уместо разређеног материјала (са приближно 35% на 30%). Исти ефекти су такође видљиви и на следећој слици на којој су представљене симулиране вредности ефикасности. Имајући у виду да ефекти коинциденција нису урачунати у симулацијама, може се доћи до закључка да смањење ефикасности није узроковано случајним коинциденцијама него променом матрице извора.

### 3. Закључак

Упоређивање експериментално добијених вредности ефикасности са симулираним резултатима за NaI(Tl) детектор облика јаме, заснованих на неколико цилиндричних, извора са различитим матрицама, показало је да се вредности добијене софтвером Geant4 могу користити за различите материјале у нискоенергетском региону са великом поузданошћу. Са друге стране, за веће енергије, потребно је ове симулиране вредности помножити припадајућим корекционим факторима (за 1460,8 keV  $\sim 1/1,35=0,67$  а за 238,6 keV  $\sim 1/1,5=0,75$ ) или побољшати симулације тако да се узму у обзир ефекти који су овом приликом занемарени.

Представљени резултати су део објављеног рада:

**J.Hansman, D.Mrdja, M.Krmar, I.Bikit, J.Slivka** - *Efficiency study of a big volume well type NaI(Tl) detector by point and voluminous sources and Monte-Carlo simulation, Applied Radiation and Isotopes, ARI-D-14-00575, Volume 99, May 2015, Pages 150–154*

#### 4. Захвалница

Аутори се захваљују на финансијској помоћи Министарства просвете и науке Републике Србије, у оквиру пројекта Нуклеарне методе истраживања ретких процеса и космичког зрачења број 171002.

#### 5. Литература

- 1) P.P. Povinec: Low-level gamma-ray spectrometry for environmental samples, *J. Radioan. Nucl. Chem.* 276(3) (2008) 771-777.
- 2) [Sh. S. Al-Dargazelli](#), [A. Sh. Mahmood](#): Sum peak in gamma-energy spectra of NaI(Tl) detectors, *J. Radioan. Nucl. Chem.* 139(1) (1990) 3-14.
- 3) Geant4 User's Guide for Application Developers, Geant4 Collaboration, Version: geant4 9.6.0, (2012), <http://geant4.web.cern.ch/geant4/UserDocumentation/UsersGuides/ForApplicationDeveloper/html/>

### ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITY MEASUREMENT BY NaI(Tl) CALIBRATED WITH GEANT4 SIMULATION

**Jan HANSMAN, Dusan MRDJA, Istvan BIKIT, Jaroslav SLIVKA, Kristina BIKIT, Jovana NIKOLOV, Sofija FORKAPIC, Natasa TODOROVIC**

*University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Novi Sad, Serbia*  
[jan.hansman@df.uns.ac.rs](mailto:jan.hansman@df.uns.ac.rs)

#### Abstract

The radioactivity of environmental samples is usually determined by high resolution HPGe gamma spectrometers. However, huge efficiency big volume, well-type NaI(Tl) detector (3 inch wall thickness, 6 inch well depth), in spite of its much poorer resolution, requires relatively short measurement times and can give better detection limits. In order to determine the  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{40}\text{K}$  content in the samples by this NaI(Tl) detector, the corresponding photopeak efficiencies must be known. These efficiencies can be found for certain source matrix and geometry by Geant4 simulation software. In this work we studied in details efficiencies determined experimentally and those arising from Monte-Carlo simulations by Geant4 toolkit. We found discrepancy in obtained results of 5%-50%, which can be mainly due to effects of light collection within detector volume, an effect which was not taken into account by simulations. It was shown that the influence of chance coincidence summing on detection efficiency for radionuclide activities in the range 130 Bq - 4000 Bq, was negligible.

# ODREĐIVANJE KRIVE EFIKASNOSTI PRENOSNOG *HPGe* DETEKTORA ZA TAČKASTI IZVOR ZRAČENJA EKSPERIMENTALNO I *MCNP-X* SIMULACIJOM

Čedomir BELIĆ<sup>1</sup>, Luka PERAZIĆ<sup>1</sup> i Koviljka STANKOVIĆ<sup>2</sup>

1) JP „Nuklearni objekti Srbije“, Beograd, Srbija, [cedomir.belic@nuklearniobjekti.rs](mailto:cedomir.belic@nuklearniobjekti.rs)

2) Univerzitet u Beogradu-Elektrotehnički fakultet, Beograd, Srbija

## SADRŽAJ

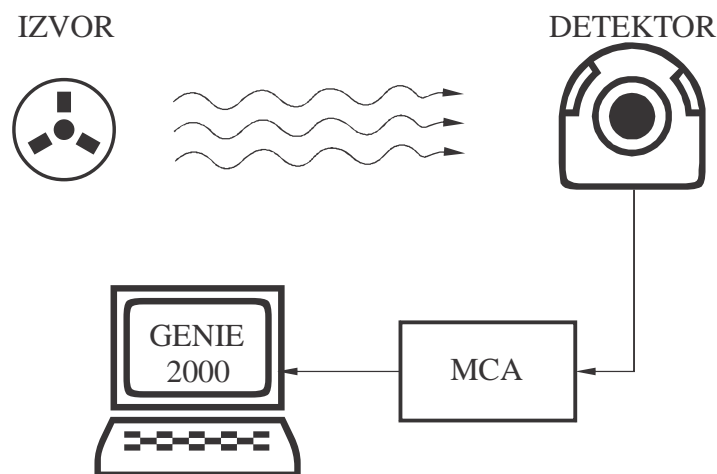
Cilj ovog rada je da se postavi i proveriti Monte Carlo model korišćenjem softvera *MCNP*, za prenosivi germanijumski detektor visoke čistoće – *HPGe*, koji može da se koristi za radiološku karakterizaciju objekta i površina, više različitih izvora zračenja. Radi obavljanja radiološke karakterizacije kontaminiranih područja i objekata određena je efikasnost spektroskopskog sistema. U ovoj studiji, prikazano je određivanje efikasnosti detektora pomoću standardnih tačkastih izvora i softverskog koda *MCNP-X* za simulaciju.

## 1. Uvod

Zadatak, koji je definisan u potrebi postavljanja jasnog modela za praćenje i radiološku karakterizaciju posmatranih objekata i prostora, zahtevao je sprovođenje potrebnih eksperimenata i računarsku simulaciju za određivanje efikasnosti detekcije. Praćenje emisije radionukleida iz burića i kontejnera sa radioaktivnim otpadom (RAO), odnosno određivanje gama zračenja, može da se vrši širokoenergetskim germanijumskim detektorom BEGe-2020. Radi toga je neophodno utvrditi njegovu efikasnost. U ovom radu efikasnost je određena je pomoću standardnih tačkastih izvora i programskog koda *MCNP-X* za simulaciju energija od 60 keV do 1 500 keV.

## 2. Eksperiment

Eksperimentalna metoda obuhvata merenje sandardnih radionukleidnih izvora, u različitim eksperimentalnim okruženjima, na različitim rastojanjima i pod različitim uglovima (slika 1).



Slika 1. Blok šema eksperimenta

Standardni kalibracioni izvori pokrivaju široki energetska opseg kojim se određuje apsolutna efikasnost i FWHM (puna širina na polovini energetska maksimuma) u funkciji od upadnog fotona. In-situ gama spektrometrija je brza nedestruktivna metoda za kvalitativno i kvantitativno određivanje radionuklida. Korišćeni detektor je n-type Canberra BE 2020 HPGe, relativne efikasnosti 15% za 1 332,5 keV - <sup>60</sup>Co. Energetska kalibracija urađena je primenom standardnih kalibracionih krivih. Višekanalni analizator raspolaže sa 8 192 kanala. Obrada signala rađena je programskim paketom GENIE2000, koji obrađuje  $\gamma$ -deo spektra. Osnovna karakteristika programa je u tome da prikazuje energetska pik za svaki angažovani kanal ponaosob i istovremeno omogućava poređenje signala sa kalibracionim krivama. Detektor HPGe integrisan je sa elektronskim uređajima (predpojačavač, pojačavač, visokonaponski blok, A/D konvertor). Multikanalni analizator je InSpector-2000 (MCA). Rezolucija detektora (R) definisana je težišnim brojem  $H_0$  i punom širinom na polovini maksimuma Gausove raspodele (FWHM) kao:

$$R = \frac{FWHM}{H_0} . \quad (1)$$

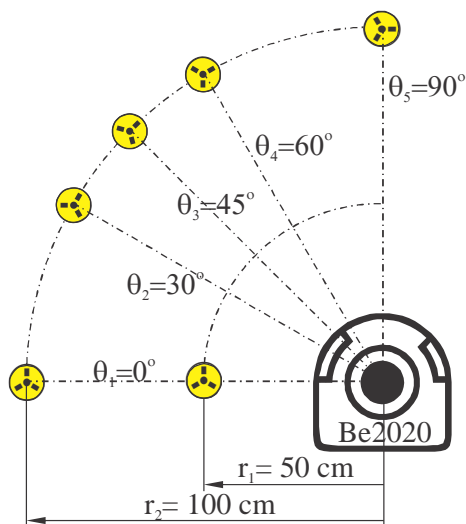
Kako je već rečeno, standardne izvore pokriva široki spektar energija od 60 keV do 1 500 keV, što omogućava utvrđivanje efikasnosti i FWHM (tabela 1).

**Tabela 1. Energetska opseg različitih izvora**

Izvor	Vreme poluraspada T ½ god.	Aktivnost A <sub>0</sub> [Bq]	br.linije	energija [KeV]	Prinos Y [%]
Am-241	432,60	37 200	1	59,54	35,9
Cs-133	30,08	40 200	1	661,657	85,1
Eu-152	13,53	41 300	1	121,78	28,58
			2	344,28	26,5
			3	778,9	12,942
			4	964,08	14,605
			5	1 112,07	13,644
			6	1 408,01	21,005
Co-60	5,27	4 620	1	1 332,5	99,986
			2	1 173,24	99,974

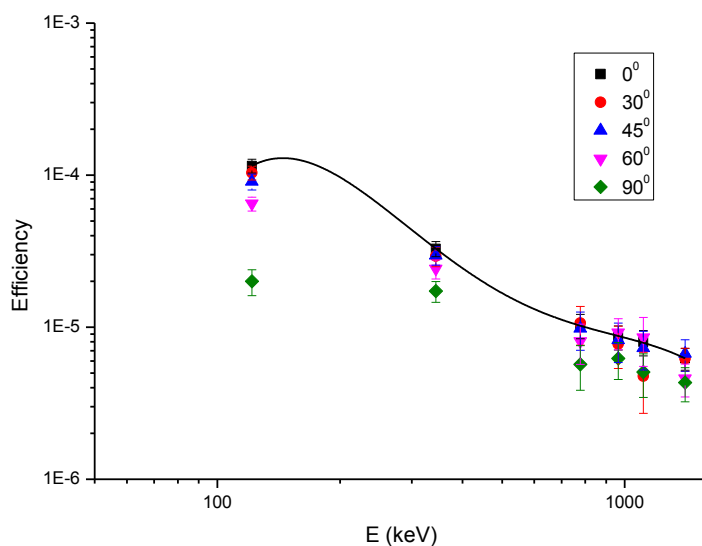
Probni eksperiment sa Eu-152 (zbog toga što on ima više linija) imao je za cilj da se utvrdi uticaj promene položaja tačkastog izvora na efikasnost. Izvor je pomeran u ravni koja je normalna na osu detektora (slika 2).





**Slika 2. Različiti položaji detektora u odnosu na izvor zračenja**

Utvrđeno je da je efikasnost u direktnoj zavisnosti od upadnog ugla fotona (slika 3). Efikasnost smanjuje sa povećanjem upadnog ugla (tabela 2).



**Slika 3. Promena efikasnosti pri različitim upadnim uglovima**

**Tabela 2. Prikaz efikasnosti pri različitim upadnim uglovima ( $\theta$ ) zračenja izvora Eu-152**

En (keV)	$0^0$	$30^0$	$45^0$	$60^0$	$90^0$
121,6	1,15E-04	1,04E-04	9,07E-05	6,49E-05	2,00E-05
343,9	3,28E-05	2,93E-05	2,97E-05	2,42E-05	1,73E-05
778,1	1,03E-05	1,07E-05	9,82E-06	8,08E-06	5,70E-06
963,4	8,64E-06	7,75E-06	8,24E-06	9,23E-06	6,22E-06
1 111,1	7,98E-06	4,77E-06	7,31E-06	8,55E-06	5,06E-06
1 407,4	6,22E-06	6,20E-06	6,70E-06	4,60E-06	4,32E-06

Za proračun efikasnosti (Eff) korišćen je sledeći obrazac [2]:

$$Eff = \frac{N_{net}}{Y \cdot t \cdot A}, \quad (2)$$

gde su:

- $N_{net}$  neto površina nakon pozadinskog smanjenja,
- $Y$  vršni intenzitet - prinos izvora na određenoj liniji,
- $t$  vreme merenja i
- $A$  aktivnost kalibracionog izvora na datum merenja.

Puna širina na polovini energetskog maksimuma Gausove raspodele intenteziteta (FWHM) određena je eksperimentom. Već pomenutim programskim paketom GENIE2000 utvrđene su vrednosti FWHM i dalje su korišćene za određivanje konstanti: a, b i c (tabela 3), a koje su vezane za upadnu energiju zračenja [6]:

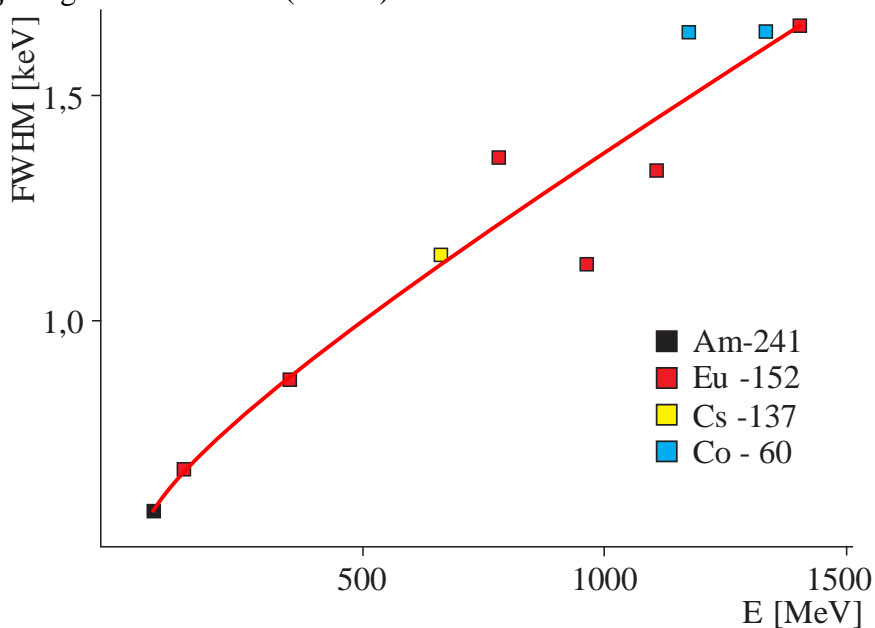
$$FWHM = a + b\sqrt{E} + cE^2. \quad (3)$$

Veći broj standarda za izvore  $\gamma$  zračenja daje vrednosti upadne energije (E) za različite izvore.

**Tabela 3. Vrednosti izračunatih parametara a,b,c**

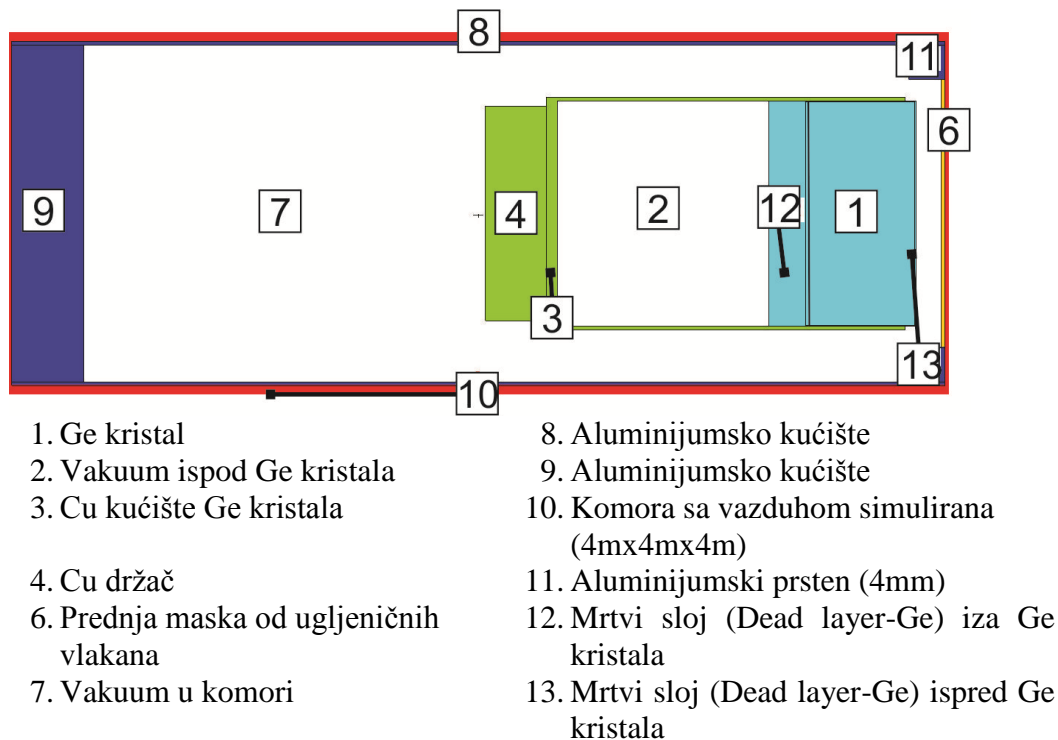
Parametar	Vrednost	Standarna greška
a	4,33139E-4 MeV	0,2103
b	6,74317E-4 MeV <sup>1/2</sup>	0,01744
c	0,92872 MeV <sup>-1</sup>	0,00227

Prethodni parametri razvijeni su u GEB (Gaussian Energy Broadening) opciju za generisanje odgovora detektora (slika 4).

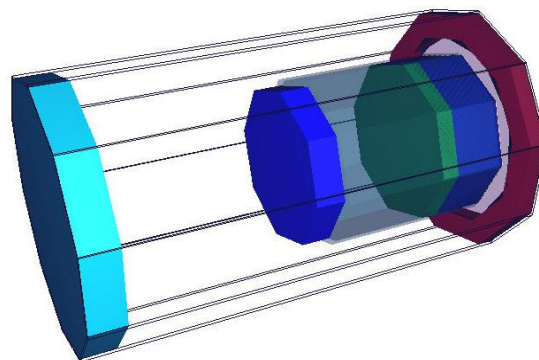


**Slika 4. Orijentaciona kriva za GEB**

GEB je segment Monte Karlo paketa, koji bolje simulira fizički karakter i raspodelu zračenja. GEB se smatra ulazom MCNP datoteke. Eksperimentalni paket, detektor i izvor simulirani su u MCNP datoteci, a na slikama 5 i 6 dat je prikaz glave detektora sa osnovnim sastavnim delovima [3][4][5].



**Slika 5. Glava detektora sa sastavnim delovima**



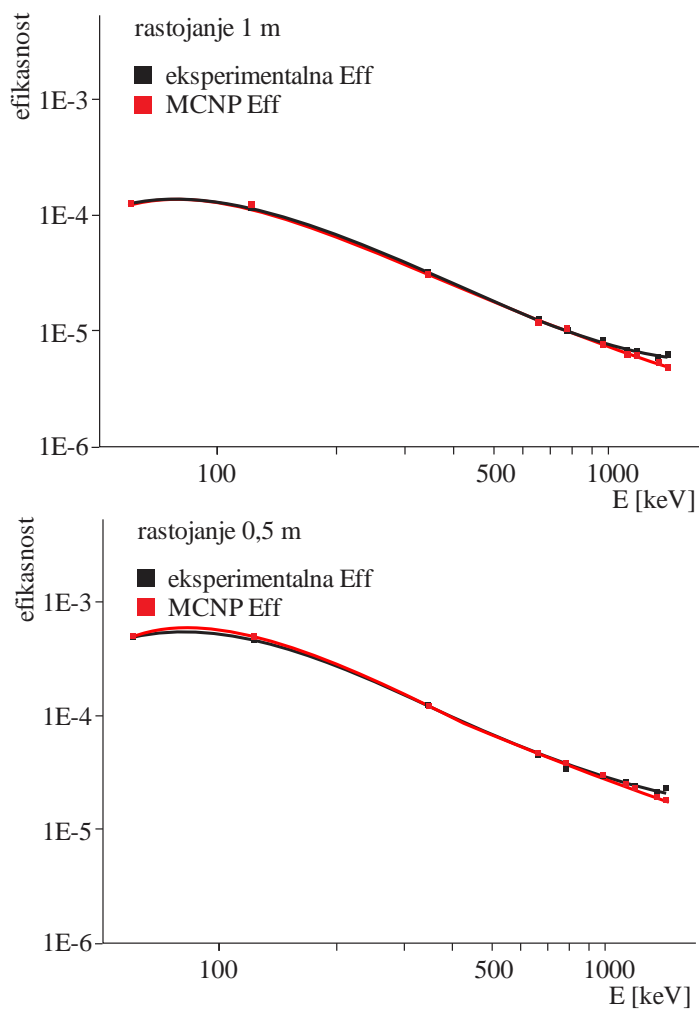
**Slika 6. 3D model kompletnog detektora**

### 3. Analiza i zaključak

U tabeli 4. navedene su vrednosti efikasnosti dobijene eksperimentom i efikasnosti izračunate na osnovu postavljenog modela. Poređenje navedenih vrednosti pokazuje značajnu usaglašenost izuzev linije Eu 152 na 1 408,0 keV, na oba rastojanja, i 0,5 m i 1 m, sa vrednostima odstupanja od 23,3 %, odnosno 24,0 %. Razlog ove neusaglašenosti nije analizirana u ovom radu.

**Tabela 4. Eksperimentalne i simulirane vrednosti efikasnosti i njihovo uporedjenje**

izvor	1 m			0,5 m		
	Eff	Eff MCNP	%	Eff	Eff MCNP	%
Am-241	1,2495E-04	1,2400E-04	<b>-0,4</b>	4,9183E-04	4,9400E-04	<b>0,8</b>
Eu-152	1,1579E-04	1,2300E-04	<b>-7,5</b>	4,5659E-04	4,9100E-04	<b>-6,2</b>
	3,2265E-05	3,0900E-05	<b>-0,6</b>	1,2032E-04	1,2100E-04	<b>4,2</b>
Cs-137	1,2345E-05	1,1924E-05	<b>-0,3</b>	4,6220E-05	4,6354E-05	<b>3,4</b>
Eu-152	9,9830E-06	1,0300E-05	<b>-16,3</b>	3,3704E-05	3,9200E-05	<b>-3,2</b>
	8,3745E-06	7,6900E-06	<b>-0,1</b>	2,9866E-05	2,9900E-05	<b>8,2</b>
	6,7338E-06	6,1400E-06	<b>6,4</b>	2,7149E-05	2,5400E-05	<b>8,8</b>
Co-60	5,9623E-06	6,1806E-06	<b>4,7</b>	2,4222E-05	2,3092E-05	<b>-3,7</b>
	5,8176E-06	5,3497E-06	<b>0,0</b>	2,0302E-05	2,0309E-05	<b>8,0</b>
Eu-152	6,3149E-06	4,8000E-06	<b>23,3</b>	2,3980E-05	1,8400E-05	<b>24,0</b>



**Slika 7. Dijagrami eksperimentalne i MCNP Eff**  
**a) za rastojanje 1 m**  
**b) za rastojanje 0,5 m**

Dijagramski prikazi na slici 7 (a i b) predstavlja potvrdu ispravnosti predloženog modela. Podudarnost krivih je takva da se sva odstupanja mogu smatrati zanemarljivom. Krive pokazuju da se sa udaljavanjem od izvora efikasnost smanjuje. Sve prethodno daje za pravo tvrdnji da se ovakvim i sličnim pristupima omogućava jednostavnije ispunjenje postavljenog zadatka u vezi sa utvrđivanjem nivoa aktivnosti izvora. To otvara mogućnost usavršavanja modela radi omogućavanja merenja aktivnosti izvora složene geometrijske konfiguracije.

#### 4. Literatura

- [1] Čedomir Belić, *Experimental and Monte Carlo efficiency determination for in-situ gamma spectroscopic measurements*, Project GAEC-Greek Atomic Energy Commission, Supervisors: Constantinos Potriadis, Maria Nikolaki, Athens, March, 2015.
- [2] G. E. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley and Sons, Inc., United States, 3<sup>rd</sup> edition 2000.
- [3] *Monte Carlo Team a general Monte Carlo N-Particle Transport Code*, Version X-5. Volume II, 2008.
- [4] J.K. Shultis and R. E. Faw, *An MCNP primer*, 2011.
- [5] D. B. Pelowitz, *MCNPX User's Manual*, Version 2.6.0," Los Alamos National Laboratory Report LA-CP-07-1473, 2008.
- [6] E. Eftekhari Zadeh, S. A. H. Feghi, E. Bayat and G. H. Roshani, *Gaussian Energy Broadening Function of an HPGe Detector in the Range of 40 keV to 1.46MeV*, Journal of Experimental Physics Volume 2014, Article ID 623683.
- [7] ORIGINLAB, *Data Analysis and Graphing Software*, <http://www.originlab.com>

### DETERMINATION OF EFFICIENCY CURVE TRANSMISSION HPGE DETECTOR FOR POINT SOURCE RADIATION EXPERIMENTAL AND MCNP-X SIMULATION

**Čedomir BELIĆ<sup>1</sup>, Luka PERAZIĆ<sup>1</sup> i Kovička STANKOVIĆ<sup>2</sup>**

1) *Public Company "Nuclear Facilities of Serbia", Belgrade, Serbia,*

[cedomir.belic@nuklearniobjekti.rs](mailto:cedomir.belic@nuklearniobjekti.rs)

2) *University of Belgrade-Faculty of Electrical Engineering, Belgrade, Serbia*

#### ABSTRACT

A The aim of this study is to set and check the Monte Carlo model using MCNP software for portable germanium detector with high purity - HPGe, which can be used for radiological characterization of the object and the surface, a number of different radiation sources. In order to perform radiological characterization of contaminated areas and objects is determined by the efficiency spectroscopic systems. In this study, showing the determination of the efficiency of the detector with a standard point source and software code MCNP-X for the simulation.

# EKSPERIMENTALNA KALIBRACIJA HPGE DETEKTORA ZA MERENJE UZORAKA IZ ŽIVOTNE SREDINE

**Jelena KRNETA NIKOLIĆ, Milica RAJAČIĆ, Dragana TODORVIĆ, Gordana  
PANTELIC, Marija JANKOVIĆ i Nataša SARAP**

*Univerzitet u Beogradu Institut za nuklearne nauke Vinča, Beograd, Srbija,  
jnikolic@vinca.rs*

## SADRŽAJ

*Direktno merenje različitih kalibracionih izvora koji sadrže izolovane emitere  $\gamma$  zračernja i fitovanje dobijenih rezultata parametarskom funkcijom, predstavlja najtačniji metod kalibracije efikasnosti detektora. Ovaj vid kalibracije je u redovnoj primeni u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta za nuklearne nauke Vinča. Za potrebe kalibracije detektora za merenje uzoraka iz životne sredine, napravljeni su sekundarni referentni radioaktivni materijali i upotrebljeni kao kalibracioni standardi. Eksperimentalno dobijene efikasnosti su fitovane odgovarajućom funkcijom i dobijene su kalibracione krive za različite matrikse i geometrije merenja. Tačnost kalibracije je zatim proverena merenjem četiri sekundarna referentna materijala koji su sadržali prirodne i proizvedene radionuklide, koje je obezbedila Međunarodna Agencija za Atomsku Energiju (IAEA) u okviru međulaboratorijskih interkomparacija. Poređenje rezultata merenja sa tačnim vrednostima datim u sertifikatu IAEA je potvrdilo da je kalibracija uspešno sprovedena.*

## 1. Uvod

Jedan od glavnih problema u kvantitativnoj gama spektrometriji je određivanje efikasnosti detekcije za različite energije, geometrije merenja i različite sastave voluminoznih uzoraka. Eksperimentalni pristup kalibraciji efikasnosti koristi standardizovane uzorke čiji su hemijski sastav, gustina i geometrija najbližiji uzorcima koji se mere. Direktno merenje različitih kalibracionih izvora koji sadrže izolovane emitere  $\gamma$  zračernja u opsegu energija koji je od interesa i fitovanje dobijenih rezultata parametarskom funkcijom daje najbolje rezultate. Međutim, kada se radi o širokom rasponu energija za koje se vrši kalibracija, to zahteva veliki broj primarnih standarda što implicira velike materijalne troškove, dugo vreme merenja i pripreme uzoraka za merenje. Ovaj problem je naročito naglašen kad su u pitanju uzorci iz životne sredine, koji mogu biti najrazličitije strukture i sastava [1]. To je uzrok zbog kojeg merenje standarda koji su po hemijskom sastavu, strukturi i geometriji najbližiji uzorcima iz životne sredine, daje bolje rezultate. Takođe, zbog toga je neophodno tako izvršenu kalibraciju proveriti merenjem uzoraka poznate aktivnosti i dobro definisati budžet merne nesigurnosti.

U ovom radu predstavljani su rezultati kalibracije tri HPGe detektora, izvršene merenjem sekundarnih referentnih materijala koje je obezbedila Međunarodna Agencija za Atomsku Energiju (IAEA) u okviru međulaboratorijskih interkomparacija.

## 2. Metode i materijali

Eksperimentalna kalibracija efikasnosti se redovno izvodi u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta za nuklearne nauke Vinča. Za potrebe kalibracije detektora za merenje uzoraka iz životne sredine, napravljeni su sekundarni referentni radioaktivni materijali i upotrebljeni kao kalibracioni standardi. Ovi

sekundarni referentni radioaktivni materijali su napravljeni spajkovanjem različitih matriksa standardnim radioaktivnim rastvorom ER X 9031-OL-426/12 proizvođača Czech Metrological Institute, Inspectorate for Ionizing Radiation koji je sadržao sledeće radionuklide:  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{88}\text{Y}$ , ukupne aktivnosti 1342 Bq na dan 31.08.2012. Matriksi koji su korišćeni su aerosol, zemlja, pesak, aktivni ugalj, mineralizovana trava i voda, a procedura po kojoj je priprema izvršena, detaljno je opisana u referencama [2, 3]. S obzirom na to da pojedini matriksi, kao što su zemlja, pesak i aerosol sadrže i određenu koncentraciju prirodnih radionuklida, uz sekundarne referentne radioaktivne materijale napravljeni su i tzv. blank uzorci, istog hemijskog sastava, geometrije i gustine kao i sekundarni referentni radioaktivni materijali, ali bez dodatog radioaktivnog rastvora. Geometrija, hemijski sastav i gustina sekundarnih referentnih radioaktivnih materijala data je u Tabeli 1. Merenje je izvršeno na 3 HPGe detektora, označenih sa D1, D2 i D3, relativne efikasnosti 20%, 18% i 50% respektivno, u trajanju od 60000 s. Detektori D1 i D3 su p-tipa sa Al prozorom, dok je D2 n-tip detektora sa Be prozorom. Uzorci su mereni u kontaktnoj geometriji a akvizicija i analiza spektra je obavljena korišćenjem programa GENIE2000.

Nakon analiziranja spektra, efikasnost na datoj energiji je računata po formuli

$$\varepsilon = \frac{N \cdot C(E)}{t \cdot P_{\gamma} \cdot A} \quad (1)$$

gde je  $N$  broj detektovanih fotona u foto piknu na energiji  $E$ ,  $t$  je vreme merenja,  $P_{\gamma}$  je verovatnoća emisije,  $C(E)$  je factor korekcije na koincidentno sumiranje i  $A$  je aktivnost uzorka na datoj energiji korigovana na vreme poluraspada.

Proširena relativna merna nesigurnost se dobija preko Gausovog zakona propagacije merne nesigurnosti i određena je na osnovu sledeće jednakosti:

$$u(\varepsilon) = \sqrt{(\delta A)^2 + (\delta N)^2 + (\delta M)^2 + (\delta P)^2} \quad (2)$$

gde  $\delta A$  predstavlja relativnu mernu nesigurnost aktivnosti radioaktivnog rastvora, kako je definisana u sertifikatu,  $\delta N$  je relativna merna nesigurnost broja detektovanih fotona,  $\delta M$  je nesigurnost koja je uvedena prilikom pravljenja sekundarnih referentnih radioaktivnih materijala i  $\delta P$  predstavlja ostale doprinose mernoj nesigurnosti kao što je nesigurnost položaja izvora u odnosu na osu simetrije detektora, nesigurnost merenja vremena, male korekcije na raspad radionuklida u toku merenja itd. Ukupan doprinos  $\delta A + \delta M$  je procenjen na 2-3% [3], dok je  $\delta P$  procenjen na 2%, na osnovu iskustva rada u Laboratoriji. Relativna merna nesigurnost  $u(\varepsilon)$  za sve energije i sve matrikse i geometrije nije prelazila 10% na nivou poverenja od  $2\sigma$ .

Da bi se definisala kalibraciona kriva, eksperimentalne tačke su fitovane funkcijom koja opisuje zavisnost efikasnosti od energije. Funkcija koja najbolje opisuje ovu zavisnost u opsegu energija od 40 do 3000 keV, data je u jednačini [4]:

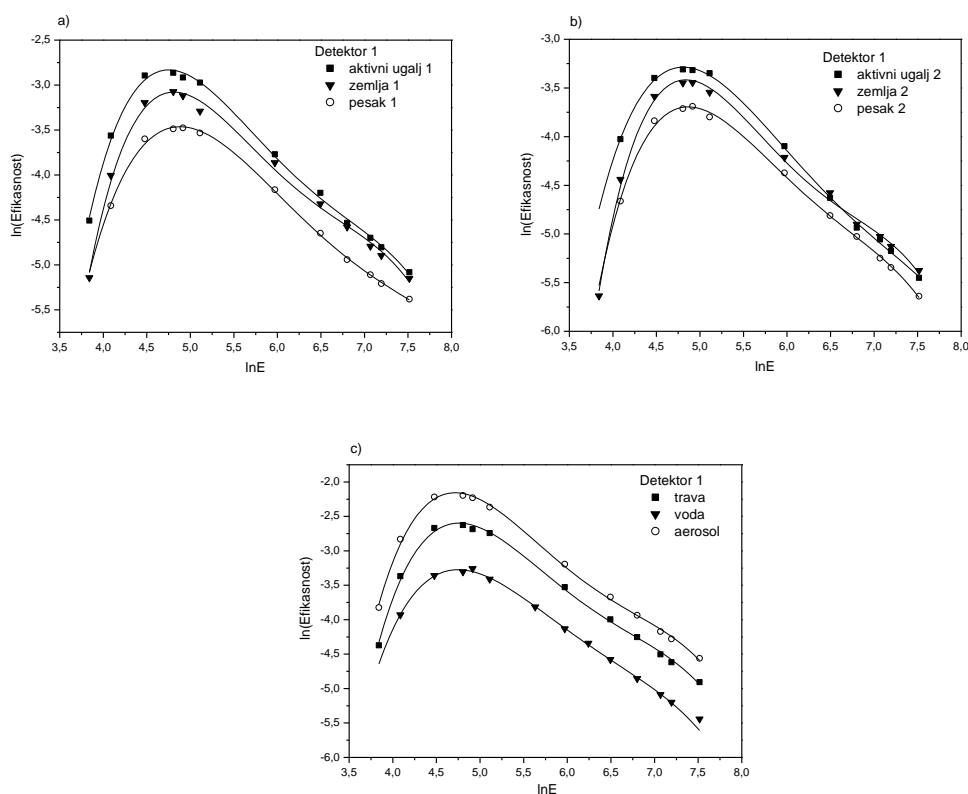
$$\ln \varepsilon = \sum_{i=1}^5 a_i (\ln E)^{i-1} \quad (3)$$

gde su  $a_i$  koeficijenti fita.

### 3.Rezultati i diskusija

Merenje sekundarnih referentnih radioaktivnih materijala i blank uzoraka je izvršeno na sva tri detektora u trajanju od 60000s i zatim je spektar blank uzorka oduzet od spektra sekundarnih referentnih radioaktivnih materijala. Nakon analize spektra, efikasnost na svim energijama je izračunata na osnovu jednačine (1). Korekcionni faktori za koincidentno sumiranje su dobijeni korišćenjem programa EFTRAN [5]. Veličina korekcionnih faktora se kretala od 0.1% do 9%. Korekcija je bila izraženija za detektor D2 zbog veće propusnosti berilijumskog prozora i činjenice da je D2 n-tip detektora. Za detektore D1 i D3, korekcije su bile potrebne na energijama koje emituju  $^{88}\text{Y}$  i  $^{60}\text{Co}$ .

Eksperimentalne tačke, fitovane funkcijom datom u jednačini (3), predstavljene su na Slikama 1, 2 i 3 za detektor D1, D2 i D3 respektivno. Kalibracione krive na graficima su grupisane tako da se slike 1a, 2a i 3a odnose na tri matriksa različite gustine i sastava u istoj geometriji (cilindrična posuda zapremine 125 ml), slike 1b, 2b i 3b se odnose na tri različita matriksa u cilindričnoj posudi zapremine 250 ml, dok se slike 1c, 2c i 3c odnose na različite matrikse u različitim geometrijama. Kvalitet fita, izražen faktorom  $R^2$ , se kretao u rasponu od 99%-99.9%.



**Slika 1. Eksperimentalna efikasnost (tačke) i fitovana kalibraciona kriva za detektor D1.**

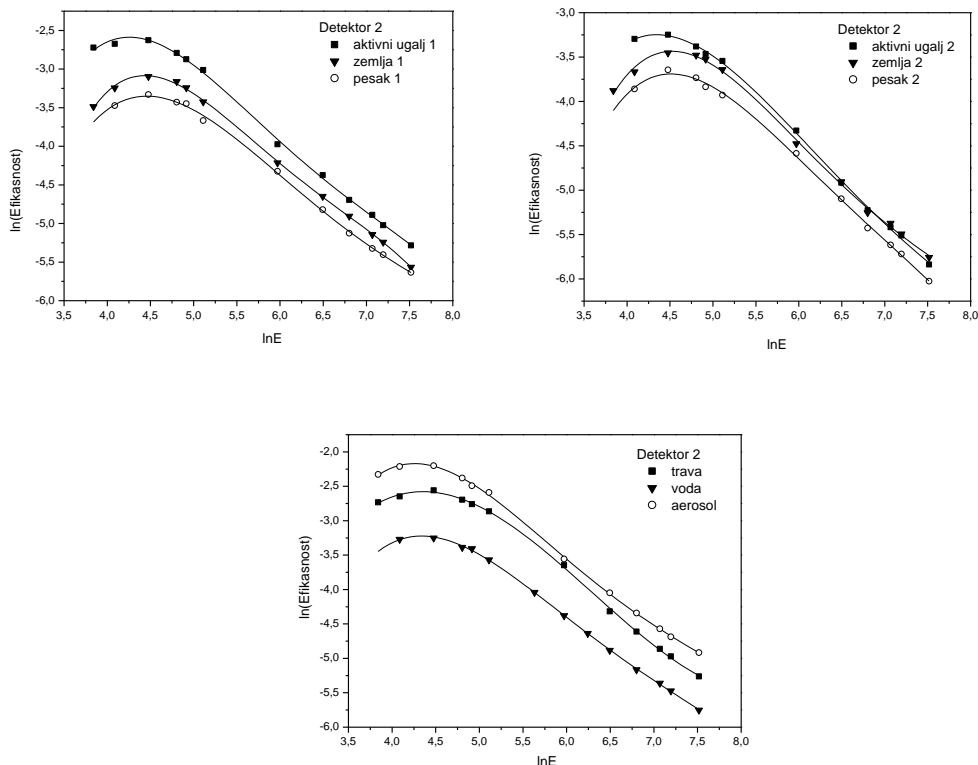
**Slika a) predstavlja tri matriksa različite gustine i sastava u cilindričnoj posudi zapremine 125 ml, b) predstavlja tri matriksa različite gustine i sastava u cilindričnoj posudi zapremine 250 ml i c) predstavlja tri matriksa različite gustine i sastava u različitim geometrijama**

Na slikama 1b, 2c i 3b uočava se lokalni minimum u okolini energije od 600 keV. Ovaj fenomen je karakterističan za HPGe detektore i pripisuje se višestrukome Komptonovom rasejanju, koje je dominantni proces interakcije fotona srednjih energija sa materijom



[6]. Takođe, uočljiva je zavisnost efikasnosti od gustine matriksa [7] koja je izraženija od zavisnosti od zapremine uzorka (Slike 1c, 2c i 3c).

Da bi se potvrdila tačnost dobijenih efikasnosti, izvršeno je merenje sekundarnih referentnih materijala koje je obezbedila IAEA u okviru nekoliko međulaboratorijskih



**Slika 2. Eksperimentalna efikasnost (tačke) i fitovana kalibraciona kriva za detektor D2.**

**Slika a) predstavlja tri matriksa različite gustine i sastava u cilindričnoj posudi zapremine 125 ml, b) predstavlja tri matriksa različite gustine i sastava u cilindričnoj posudi zapremine 250 ml i c) predstavlja tri matriksa različite gustine i sastava u različitim geometrijama**

interkomparacija. Mereni su sledeći uzorci: IAEA-477 mahovina i uzorak vode izdati u okviru interkomparacije IAEA-CU-2009-03 i uzorak sena i zemljišta izdati u okviru interkomparacije IAEA-TEL-2012-03.

Uzorak mahovine i zemljišta su odmereni u cilindrične posude zapremine 250 ml, uzorak sena u cilindričnu posudu zapremine 125 ml a uzorak vode je odmeren u bocu zapremine 125 ml. Merenja su izvršena na sva tri detektora i konačan rezultat je dobijen kao srednja vrednost više merenja. Da bi se ocenila tačnost rezultata primenjen je  $u_{test}$  kriterijum po preporuci IAEA [8].

$$u_{test} = \frac{|A_{IAEA} - A_{LAB}|}{\sqrt{u_{IAEA}^2 + u_{LAB}^2}} \quad (4)$$

gde  $A_{LAB}$  i  $u_{LAB}$  predstavljaju aktivnost i mernu nesigurnost aktivnosti uzorka izmerenu u laboratoriji, dok  $A_{IAEA}$  i  $u_{IAEA}$  predstavljaju tačne vrednosti aktivnosti i merne nesigurnosti aktivnosti koje su date u sertifikatu IAEA. Merna nesigurnost  $u_{LAB}$  je izračunata na osnovu sledeće jednakosti:

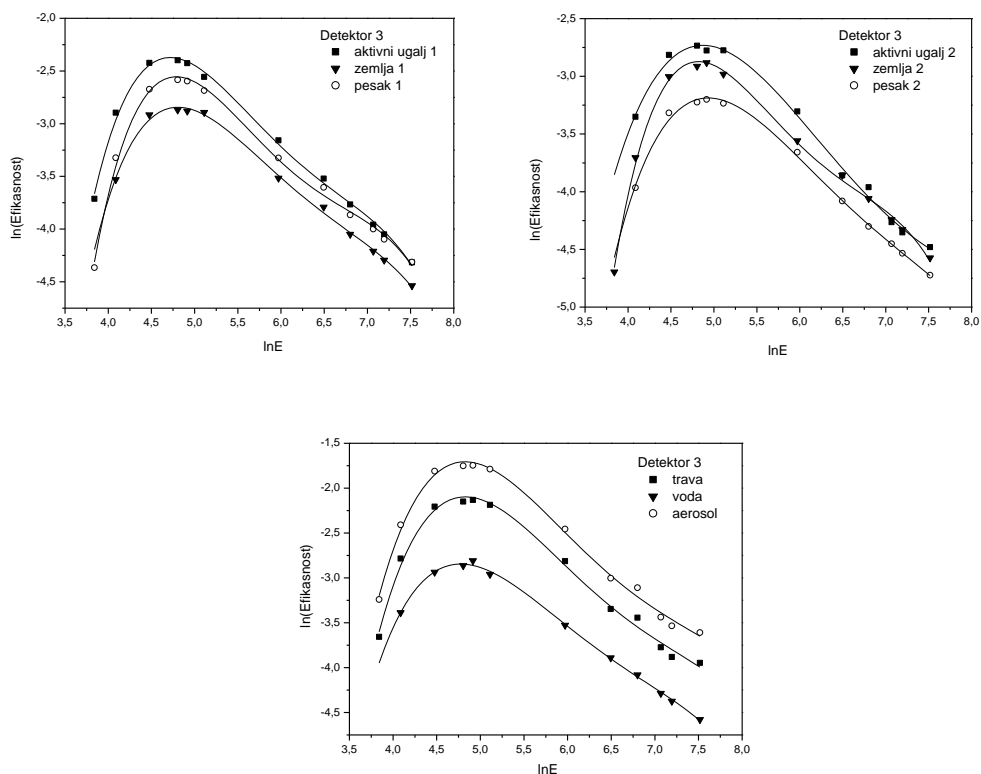
$$u_{LAB} = \sqrt{u(\varepsilon)^2 + (\delta N)^2 + (\delta_{fit})^2} \quad (5)$$

Gde je  $u(\varepsilon)$  definisano u jednačini (2),  $\delta N$  je relativna merna nesigurnost broja detektovanih fotona i  $\delta_{fit}$  je relativna merna nesigurnost uvedena fitovanjem eksperimentalnih tačaka funkcijom datom u jednačini (3). Ostali doprinosi mernoj nesigurnosti su bili zanemarljivi. Vrednost  $u_{test}$  je upoređena sa kritičnom vrednošću definisanom od strane IAEA, koja iznosi 2.58 za nivo poverenja od 99%. Rezultat se smatra prihvatljivim (tačnim) ako je vrednost  $u_{test}$  parametra manja od 2.58, a neprihvatljiva u suprotnom [8]. Rezultati merenja i evaluacija tačnosti rezultata korišćenjem  $u_{test}$  parametra, dati su u Tabeli 2.

Kako se vidi iz Tabele 2, svi sem jednog rezultata su prihvatljivi. Neprihvatljiv je rezultat dobijen za  $^{210}\text{Pb}$  u zemljištu. S obzirom na to da detektori D1 i D3 imaju nisku efikasnost na energiji od 46 keV (energija na kojoj emituje  $^{210}\text{Pb}$ ), neprihvatljiv rezultat je indicacija da je efikasnost na niskim energijama potcenjena. Ovo je bio povod za dodatnu proveru rezultata eksperimentalne kalibracije. U tu svrhu iskorišćen je program GEANT4 i izvršena je simulacija spektralnog odgovora detektora. U simulaciji, karakteristike detektora i cele geometrije detektor-izvor su detaljno rekonstruisane na osnovu podataka proizvođača i procena datih na osnovu referenci [9, 10]. Na ovaj način je određena nova efikasnost za detektore D1 i D3 na energiji od 59 keV, prisutnoj u sekundarnim referentnim radioaktivnim materijalima korišćenim za kalibraciju. Efikasnosti dobijene simulacijom su bile 10% i 11% više od eksperimentalno dobijenih za D1 i D3 respektivno. Ako pretpostavimo da će ista popravka važiti i za energiju od 46 keV, korigovani rezultat merenja aktivnosti  $^{210}\text{Pb}$  u uzorku zemljišta IAEA-TEL-2012-03 bi bio prihvatljiv ( $u_{test}=1.34$ ).

## 5. Zaključak

U ovom radu prezentovani su rezultati eksperimentalne kalibracije tri HPGe detektora u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta za nuklearne nauke Vinča i validacija merenih rezultata. Set sekundarnih referentnih materijala različitih matriksa i geometrija je napravljen korišćenjem standardnog radioaktivnog rastvora ER X 9031-OL-426/12 proizvođača Czech Metrological Institute, Inspectorate for Ionizing Radiation. Eksperimentlano dobijene efikasnosti su zatim fitovane odgovarajućom funkcijom, čime je ustanovljena zavisnost efikasnosti od energije i određena kalibraciona kriva. Da bi se potvrdila tačnost izmerenih rezultata, mereni su sekundarni referentni materijali koje je izdala IAEA u okviru nekoliko međulaboratorijskih interkomparacija. Tačnost rezultata merenja je proverena korišćenjem  $u_{test}$  kriterijuma. Po ovom kriterijumu, svi sem jednog rezultata su bili tačni. Neprihvatljivi rezultat je bio indicacija da su potrebne popravke efikasnosti na niskim energijama za matriks zemljište. Popravka je izvršena korišćenjem GEANT4 programa kojim je izvršena simulacija i određene nove efikasnosti. Korišćenjem ovako dobijenih efikasnosti dobijeni su tačni rezultati merenja aktivnosti.



Slika 3. Eksperimentalna efikasnost (tačke) i fitovana kalibraciona kriva za detektor D3.

Slika a) predstavlja tri matriksa različite gustine i sastava u cilindričnoj posudi zapremine 125 ml, b) predstavlja tri matriksa različite gustine i sastava u cilindričnoj posudi zapremine 250 ml i c) predstavlja tri matriksa različite gustine i sastava u različitim geometrijama

Tabela 1. Geometrija, hemijski sastav i gustina sekundarnih referentnih materijala

Sekundarni referentni materijal	Geometrija	Hemijski sastav	Gustina [g/cm <sup>3</sup> ]
Aktivni ugalj 1	Cilindar 125 ml	C 100%	0.49
Zemlja 1	Cilindar 125 ml	SiO <sub>2</sub> 90%, Ca 1%, K 4%, Fe 1%, C 4%	1.38
Pesak 1	Cilindar 125 ml	SiO <sub>2</sub> 100%	1.59
Aktivni ugalj 2	Cilindar 250 ml	C 100%	0.45
Zemlja 2	Cilindar 250 ml	SiO <sub>2</sub> 90%, Ca 1%, K 4%, Fe 1%, C 4%	1.43
Pesak 2	Cilindar 250 ml	SiO <sub>2</sub> 100%	1.56
Trava	Cilindar 125 ml	C 99%, drugo 1%	0.30
Voda	Boca 125 ml	C 99%, drugo 1%	0.26
Aerosol	Fiola	H <sub>2</sub> O 100%	1.01

**Tabela 2. Rezultati merenja i evaluacija tačnosti rezultata korišćenjema  $u_{test}$  parametra**

Uzorak	Radionuklid	$A_{LAB} \pm u_{LAB}$	$A_{IAEA} \pm u_{IAEA}$	$u_{test}$
Voda IAEA-CU- 2009-03	<sup>57</sup> Co	8.0 ± 0.5	7.5 ± 0.15	0.96
	<sup>60</sup> Co	6.4 ± 0.4	6.0 ± 0.12	0.96
	<sup>137</sup> Cs	8.6 ± 0.5	9.5 ± 0.19	1.68
	<sup>152</sup> Eu	10.3 ± 0.7	11.3 ± 0.23	1.36
	<sup>134</sup> Cs	12.8 ± 0.7	13.9 ± 0.28	1.46
Mahovina IAEA-CU- 2009-03	<sup>241</sup> Am	2.2 ± 0.3	2.2 ± 0.2	0
	<sup>228</sup> Ac	32 ± 2	37 ± 2	1.77
	<sup>226</sup> Ra	27 ± 2	25.1 ± 2.0	0.67
	<sup>214</sup> Bi	27 ± 2	24.8 ± 2.0	0.78
	<sup>214</sup> Pb	27 ± 2	26.0 ± 2.0	0.35
	<sup>212</sup> Pb	31 ± 4	37.0 ± 1.5	1.40
	<sup>210</sup> Pb	440 ± 20	420 ± 20	0.71
	<sup>208</sup> Tl	13 ± 1	13.0 ± 0.5	0
	<sup>40</sup> K	530 ± 30	550 ± 20	0.55
Seno IAEA- TEL-2012-03	<sup>137</sup> Cs	420 ± 20	425 ± 10	0.22
	<sup>137</sup> Cs	860 ± 30	785 ± 24	1.95
	<sup>134</sup> Cs	320 ± 10	306 ± 20	0.63
Zemljište IAEA-TEL- 2012-03	<sup>228</sup> Ac	34.0 ± 1.4	32.4 ± 1.6	0.75
	<sup>241</sup> Am	1.5 ± 0.2	1.78 ± 0.1	1.25
	<sup>137</sup> Cs	120 ± 4	118.6 ± 2.9	0.28
	<sup>40</sup> K	228 ± 7	207.7 ± 8.3	1.87
	<sup>210</sup> Pb	700 ± 20	595 ± 19	<b>3.81 N</b>
	<sup>212</sup> Pb	28.3 ± 1.4	31.0 ± 1.2	1.46
	<sup>208</sup> Tl	11.6 ± 0.4	11.5 ± 0.6	0.14

## 6. Zahvalnica

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva za nauku i tehnološki razvoj Srbije pod projektom III 43009.

## 7. Literatura

- [1] M.J. Daza, B. Quintana, M. Garcia Tavalera, F. Frnandez. Efficiency calibration of a HPGe detector in the [46.54-2000] keV energy range for the measurement of environmental samples. *Nucl. Instr. Meth. A* 470 (2001) 520–532.
- [2] M. Taskaeva E. Taskaev, I. Penev, On the preparation of efficiency standards for gamma-ray spectrometers. *Appl. Radiat. Isot.* 47/9 (1996) 981–990.
- [3] I. Vukanac, M. Djurasevic, A. Kandic, D. Novkovic, L. Nadjerdj, Z. Milosevic. Experimental determination of the HPGe spectrometer efficiency curve. *Appl. Radiat. Isot.* 66 (2008) 792-95.
- [4] E. K. Osaе, B. J. B. Nyarko, Y. Serfor-Armah, E. O. Darko. An Empirical Expression for the full energy peak efficiency of an N-type high purity germanium detector. *J. Radioan. Nucl. Chem.* 242 (1999) 617-622.

- [5] T. Vidmar, G. Kanisch, G. Vidmar. Calculation of true coincidence summing corrections for extended sources with EFFTRAN. *Appl. Radiat. Isot.* 69 (2011) 908-911.
- [6] S. Park, M. S. Gwang, H. D. Choi. Experimental and Simulated Efficiency of a HPGe Detector in the Range of 0.6-11MeV *Journal of the Korean Nuclear Society* 35 (2003) 234-242.
- [7] I. Vukasinovic, D. Todorovic, D. Popovic. The dependence of Ge detectors efficiency on the density of the samples in gamma-ray spectrometry. *Nucl. Technolog. Radiat. Prot.* 22 (2007) 58-63.
- [8] IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series No. 18. 2010. IAEA, Vienna.
- [9] T. Vidmar, A. Likar. On the invariability of the total-to-peak ratio in gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 60 (2004) 191-195.
- [10] P. Dryak, P. Kovar. Experimental and MC determination of HPGe detector efficiency in the 40 – 2754 keV energy range for measuring point source geometry with the source-to-detector distance of 25 cm. *Appl. Radiat. Isot.* 64 (2006) 1346-1349.

## **EXPERIMENTAL EFFICIENCY CALIBRATION OF HPGE DETECTORS FOR ENVIRONMENTAL SAMPLES MEASUREMENT**

**Jelena KRNETA NIKOLIĆ, Milica RAJAČIĆ, Dragana TODOROVIĆ, Gordana PANTELIĆ, Marija JANKOVIĆ and Nataša SARAP**

*University of Belgrade Institut for Nuclear Sciences Vinča Institution, Belgrade, Serbia,  
jnikolic@vinca.rs*

### ABSTRACT

The direct measurement of different calibration sources containing isolated  $\gamma$ -ray emitters within the energy range of interest, and their subsequent fitting to a parametric function, is the most accurate method of efficiency calibration and is readily performed in the Laboratory for Environment and Radiation Protection. For the purpose of calibrating a measurement system for environmental samples, a set of secondary reference materials was produced in order to serve as calibration samples. Experimentally obtained efficiencies were then fitted with the appropriate parametric function and calibration curves for different matrices and different geometries were obtained. The efficiency calibration was then validated by measurement of four different secondary reference materials with naturally occurring and artificial radionuclides, issued by IAEA within a framework of several proficiency tests. The comparison showed good agreement between the measured and target values of the activity concentrations, thus confirming that the efficiency calibration was accurately performed. All but one result were found to be acceptable. The unacceptable result indicated that the efficiency for lower energies in the soil matrix was underestimated. To correct this, a GEANT4 simulation was conducted and it produced a correction of about 10% that proved to produce acceptable result.

# PRIMENA SOFTVERA EFFTRAN U ANALIZI SPECIFIČNIH AKTIVNOSTI UZORAKA UGLJA, ŠLJAKE I PEPELA IZ TERMOELEKTRANA

**Aleksandar KANDIĆ<sup>1</sup>, Bojan ŠEŠLAK<sup>1</sup>, Mirjana ĐURAŠEVIĆ<sup>1</sup>, Milić ERIĆ<sup>2</sup>, Ivana VUKANAC<sup>1</sup>, Zoran MARKOVIĆ<sup>2</sup> i Zoran MILOŠEVIĆ<sup>1</sup>**

1) Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za nuklearnu i plazma fiziku, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija, akandic@vinca.rs

2) Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za termostehniku i energetiku, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija, milic@vinca.rs

## SADRŽAJ

*Ugalj, šljaka i pepeo iz termoelektrana sadrže prirodne radionuklide čije se specifične aktivnosti mogu odrediti pomoću poluprovodničke gama spektrometrijske analize. Ove specifične aktivnosti su uglavnom niske, pa se stoga uzorci mere na malim rastojanjima od detektora, gde su izraženi efekti koincidentnog sumiranja. U radu su prikazani korekcionni faktori za sumacione efekte za radionuklide iz uranovog (<sup>234m</sup>Pa, <sup>234</sup>Th, <sup>226</sup>Ra, <sup>214</sup>Bi i <sup>214</sup>Pb) i torijumovog niza (<sup>228</sup>Ac, <sup>224</sup>Ra, <sup>212</sup>Pb, <sup>212</sup>Bi i <sup>208</sup>Tl) dobijeni primenom softvera EFFTRAN, kao i korigovane vrednosti specifičnih aktivnosti.*

## 1. Uvod

Pouzđano određivanje specifičnih aktivnosti radionuklida u uzorcima iz okoline zahtevaju dobro definisanu proceduru uzorkovanja, odgovarajuće tehnike pripreme i merenja uzoraka, kao i sveobuhvatnu analizu dobijenih rezultata. Specifične aktivnosti uzoraka iz okoline su uglavnom niske, pa se stoga uzorci mere na malim rastojanjima od detektora, gde su izraženi efekti koincidentnog sumiranja. Ovi efekti su naročito izraženi kod visokoeffikasnih poluprovodničkih germanijumskih detektora širokog energetskog opsega i ne mogu se zanemariti. Zbog toga, za pouzdano određivanje specifičnih aktivnosti radionuklida u uzorcima iz okoline, neophodno je odrediti i korekzione faktore za koincidentno sumiranje kod prirodnih radionuklida.

Korekcionni faktori za koincidentno sumiranje zavise od vrste uzorka, geometrije merenja i karakteristika samog detektora, tako da korišćenje nekih opštih tablica sa korekcionnim faktorima, kao što su Debertain i Schötzig [1], ne daje dovoljno precizane rezultate. Međutim, postoje brojni numerički programi zasnovani na Monte Carlo proračunima, kao što su GESPECOR, ETNA, EFFTRAN, ANGLE, pomoću kojih je moguće za svaki konkretan slučaj izračunati ove faktore.

U radu su prikazani korekcionni faktori za sumacione efekte za radionuklide iz uranovog (<sup>234m</sup>Pa, <sup>234</sup>Th, <sup>226</sup>Ra, <sup>214</sup>Bi i <sup>214</sup>Pb) i torijumovog niza (<sup>228</sup>Ac, <sup>224</sup>Ra, <sup>212</sup>Pb, <sup>212</sup>Bi i <sup>208</sup>Tl). Korekcionni faktori su dobijeni za matrikse uglja, šljake i pepela, smeštene u cilindrične PVC kutije od 125 ml i poluprovodnički HPGe spektrometar p-tipa, primenom softvera EFFTRAN [2], kao i korigovane vrednosti specifičnih aktivnosti.

## 2. Ugalj, šljaka, pepeo

Ugalj kao sedimentna stena organskog porekla osim ugljenika i ugljovodonika, između ostalog sadrži i tragove radionuklida iz uranovog i torijumovog niza. Upravo zbog toga što sadrži prirodne radionuklide, ugljalj se može svrstati u NORM (Naturally Occurring Radioactive Materials), kao uostalom i šljaka i pepeo, odnosno, nesagorivi i nesagoreli ostatak pri sagorevanju uglja. U slučaju kada se odlazu u životnu sredinu mogu dovesti do uvećanja i/ili promene raspodele sadržaja prirodnih radionuklida. Takođe, treba imati

u vidu i činjenicu da u Srbiji svake godine nastaje više miliona tona šljake i pepela kao produkata sagorevanja uglja u termoelektranama, od čega se samo mali deo koristi u građevinske svrhe. Ipak, prema nekim autorima [3], potrebno je da se u Republici Srbiji šljaka i elektrofilterski pepeo upotrebljavaju u većim količinama u građevinarstvu, putogradnji i kao sirovina za proizvodnju građevinskog materijala. Međutim, bez obzira da li se šljaka ili pepeo odlažu na deponije ili se upotrebljavaju u građevinske svrhe potrebno je pouzdano odrediti njihove specifične aktivnosti. Da bismo dobili što pouzdanije rezultate merenja specifičnih aktivnosti šljake i pepela koristili smo i softver EFFTRAN [2] pomoću koga su određeni korekcionni faktori za sumacione efekte kod radionuklida iz uranovog i torijumovog niza.

### 3. Softver EFFTRAN

Softver EFFTRAN [2] je numerički Monte Carlo program zasnovan na metodi transfera efikasnosti [4], u kojoj se za određivanje totalne efikasnosti koristi ili gausijanska ili Monte Carlo integracija po zapremini detektora i uzorka. Njegovom primenom mogu da se odrede i korekcionni faktori za koincidentno sumiranje. Ulazni podaci koje koristi EFFTRAN [2] su parametri detektora koji se obično nalaze u specifikaciji proizvođača, a to su: dimenzije i materijal kristala, držača kristala, kućišta i prozora detektora kao i debljina mrtvog sloja. Takođe, kao ulazni podaci, potrebni su i parametri koji se odnose na uzorak, a koji uključuju dimenzije i materijal posude u kojoj se nalazi uzorak, količinu tj. masu i visinu punjenja, kao i hemijski sastav uzorka.

### 4. Uzorkovanje i priprema uzoraka

Tokom periodičnih testova na jedinici A2 termoelektrane “Nikola Tesla”, koja su obavljena krajem septembra 2012. godine, prikupljena su i analizirana po tri uzorka uglja i šljake, kao i šest uzoraka pepela. Ugalj je uzorkovan na dodavačima uglja, pre procesa mlevenja i sušenja uglja u mlinskim postrojenjima. Šljaka je prikupljena tokom procesa transporta iz kotlovskeg postrojenja ka deponiji, dok je leteći pepeo prikupljen iz levkova elektrofilterskog postrojenja.

Uzorci za analizu su pripremljeni (mlevenje, sušenje, prosejavanje) odgovarajućim standardnim metodama u Laboratoriji za termotehniku i energetiku Instituta za nuklearne nauke “Vinča”, gde su obavljene i laboratorijske analize. U akreditovanoj Laboratoriji za nuklearnu i plazma fiziku Instituta za nuklearne nauke “Vinča” pripremljeni uzorci smešteni su u cilindrične PVC kutije od 125 ml, zatopljeni prirodnim voskom i skladišteni tokom šest nedelja, da bi se uspostavila radioaktivna ravnoteža između  $^{226}\text{Ra}$  i njegovih potomaka. U zavisnosti od gustine, u kutije su smešteni uzorci čije su mase bile u opsegu od 73.91 g do 105.17 g. Srednje vrednosti gustina koje su korišćene u softveru EFFTRAN za određivanje korekcionnih faktora za koincidentno sumiranje su:  $0.420 \text{ g/cm}^3$ ,  $0.617 \text{ g/cm}^3$  i  $0.758 \text{ g/cm}^3$ , za ugalj, šljaku i pepeo, respektivno.

### 5. Gamaspktrometrijska merenja

Uzorci uglja, šljake i pepela mereni su na poluprovodničkom HPGe spektrometru (ORTEC GEM-30,  $\epsilon_r = 37 \%$ ,  $FWHM = 1.8 \text{ keV}$ ), kalibrisanom pomoću odgovarajućih standarda spajkovanih uobičajenom smešom veštačkih radionuklida. Merenja su trajala između 70 000 s i 250 000 s da bi se postigla prihvatljiva statistička greška.

Specifična aktivnost  $^{238}\text{U}$  određena je preko potomka  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  (1001.01 keV i 766.42 keV), uz korekciju za doprinos  $^{214}\text{Bi}$  (768.36 keV), uz dodatnu proveru određivanjem

specifične aktivnosti potomka  $^{234}\text{Th}$  (63.3 keV). Specifična aktivnost  $^{226}\text{Ra}$  određena je analizom pika na energiji 186.21 keV uz korekciju za doprinos  $^{235}\text{U}$  (185.72 keV), uz dodatnu proveru određivanjem specifičnih aktivnosti potomaka  $^{214}\text{Pb}$  (295.21 keV i 351.92 keV), kao i  $^{214}\text{Bi}$  (609.31 keV, 1120.29 keV i 1764.49 keV). Specifična aktivnost  $^{235}\text{U}$ , potrebna za određivanje doprinosa  $^{235}\text{U}$  u analizi pika  $^{226}\text{Ra}$  na energiji 186.21 keV, određena je analizom pika na energiji 143.77 keV. Specifična aktivnost  $^{232}\text{Th}$  određena je preko potomka  $^{228}\text{Ac}$  (911.16 keV i 968.97 keV) uz dodatnu proveru određivanjem specifične aktivnosti potomka  $^{224}\text{Ra}$  (240.99 keV) uz korekciju za doprinos  $^{214}\text{Pb}$  na energiji (242.00 keV), kao i specifičnih aktivnosti potomaka  $^{212}\text{Pb}$  (238.58 keV),  $^{212}\text{Bi}$  (727.25 keV) i  $^{208}\text{Tl}$  (583.19 keV i 860.56 keV).

## 6. Korekcionni faktori za sumacione efekte dobijeni pomoću softvera EFFTRAN

Za potrebe analize specifičnih aktivnosti uzoraka uglja, šljake i pepela iz termoelektrane "Nikola Tesla", određeni su korekcionni faktori za sumacione efekte za radionuklide iz uranovog i torijumovog niza, za poznate parametre analiziranih uzoraka i koaksijalnog poluprovodničkog HPGe detektora p-tipa, korišćenjem softvera EFFTRAN [2]. U Tabeli 1. prikazane su vrednosti korekcionnih faktora za energije koje su korišćene u analizi specifičnih aktivnosti za pojedine radionuklide iz uranovog i torijumovog niza.

**Tabela 1. Vrednosti korekcionnih faktora za energije koje su korišćene u analizi specifičnih aktivnosti za pojedine radionuklide iz uranovog i torijumovog niza**

Radionuklidi	Energija [keV]	Korekcionni faktori		
		Ugalj	Šljaka	Pepeo
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	766.42	1.003	1.003	1.003
	1001.01	0.996	0.997	0.996
$^{234}\text{Th}$	63.3	1.000	1.000	1.000
$^{226}\text{Ra}$	186.21	1.000	1.000	1.000
$^{214}\text{Bi}$	609.31	1.092	1.096	1.094
	768.36	1.112	1.117	1.115
	1120.29	1.100	1.104	1.102
	1764.49	0.997	0.998	0.998
$^{214}\text{Pb}$	242.00	1.001	1.001	1.001
	295.21	1.000	1.000	1.000
	351.92	1.001	1.001	1.001
$^{228}\text{Ac}$	911.16	1.021	1.022	1.022
	968.97	1.021	1.022	1.022
$^{224}\text{Ra}$	240.99	1.000	1.000	1.000
$^{212}\text{Pb}$	238.58	1.000	1.000	1.000
	300.09	1.049	1.048	1.048
$^{212}\text{Bi}$	727.25	1.028	1.029	1.028
$^{208}\text{Tl}$	583.19	1.112	1.116	1.114
	860.56	1.032	1.035	1.034
$^{235}\text{U}$	143.77	1.006	1.006	1.006
	185.72	1.006	1.006	1.006



## 7. Rezultati primene softvera EFFTRAN za određivanje specifičnih aktivnosti pojedinih radionuklida iz uranovog i torijumovog niza

Specifične aktivnosti pojedinih radionuklida iz uranovog i torijumovog niza u analiziranim uzorcima korigovane su na koincidentno sumiranje, a srednje nekorigovane i korigovane vrednosti sa proširenim mernim nesigurnostima prikazane su u Tabelama 2. i 3. za uranov, a u Tabelama 4. i 5. za torijumov niz. Treba napomenuti da je specifična aktivnost  $^{208}\text{Tl}$  normirana za faktor granjanja 0.3593 da bi mogla da se poredi sa specifičnim aktivnostima ostalih radionuklida iz torijumovog niza.

Nesigurnosti merenja mase ( $< 0,2\%$ ) i kalibracije efikasnosti ( $5\%$ ), kao i statistička nesigurnost ( $< 30\%$ ) uključene su u proširenu mernu nesigurnost sa faktorom  $k = 1$ . Srednje vrednosti i njihove proširene merne nesigurnosti dobijene su na osnovu utežnjene aritmetičke sredine uzimajući za težinske faktore proširene merne nesigurnosti uzoraka.

**Tabela 2. Nekorigovane srednje vrednosti sa proširenim mernim nesigurnostima sa faktorom  $k = 1$ , za specifične aktivnosti radionuklida iz uranovog niza**

Radionuklid	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	$^{234}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$
Uzorak	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]
Ugalj	$31.0 \pm 4.7$	$39.1 \pm 3.6$	$33.8 \pm 2.2$	$36.8 \pm 1.5$	$33.2 \pm 1.8$
Šljaka	$50.8 \pm 7.8$	$54.6 \pm 3.9$	$53.1 \pm 4.1$	$52.6 \pm 2.1$	$48.0 \pm 2.5$
Pepeo	$93.6 \pm 8.8$	$103.3 \pm 8.3$	$101.7 \pm 6.5$	$104.1 \pm 4.5$	$95.5 \pm 4.3$

**Tabela 3. Korigovane srednje vrednosti sa proširenim mernim nesigurnostima sa faktorom  $k = 1$ , za specifične aktivnosti radionuklida iz uranovog niza**

Radionuklid	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	$^{234}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$
Uzorak	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]
Ugalj	$34.3 \pm 5.2$	$39.1 \pm 3.6$	$33.7 \pm 2.2$	$36.8 \pm 1.5$	$35.6 \pm 1.9$
Šljaka	$57.0 \pm 8.8$	$54.6 \pm 3.9$	$52.8 \pm 4.1$	$52.6 \pm 2.1$	$52.7 \pm 2.7$
Pepeo	$104.6 \pm 10.0$	$103.3 \pm 8.3$	$101.0 \pm 6.5$	$104.2 \pm 4.5$	$104.4 \pm 5.1$

**Tabela 4. Nekorigovane srednje vrednosti sa proširenim mernim nesigurnostima sa faktorom  $k = 1$ , za specifične aktivnosti radionuklida iz torijumovog niza**

Radionuklid	$^{228}\text{Ac}$	$^{224}\text{Ra}$	$^{212}\text{Pb}$	$^{212}\text{Bi}$	$^{208}\text{Tl}^*$
Uzorak	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]
Ugalj	$24.6 \pm 1.6$	$23.9 \pm 1.8$	$26.2 \pm 2.4$	$25.3 \pm 2.7$	$25.3 \pm 1.6$
Šljaka	$34.4 \pm 2.3$	$35.0 \pm 2.6$	$35.3 \pm 2.1$	$37.1 \pm 3.2$	$33.5 \pm 2.0$
Pepeo	$75.2 \pm 2.8$	$74.9 \pm 3.6$	$77.4 \pm 3.4$	$75.0 \pm 3.6$	$68.3 \pm 2.7$

\* specifična aktivnost  $^{208}\text{Tl}$  normirana za faktor granjanja 0.3593

**Tabela 5. Korigovane srednje vrednosti sa proširenim mernim nesigurnostima sa faktorom  $k = 1$ , za specifične aktivnosti radionuklida iz torijumovog niza**

Radionuklid	$^{228}\text{Ac}$	$^{224}\text{Ra}$	$^{212}\text{Pb}$	$^{212}\text{Bi}$	$^{208}\text{Tl}^*$
Uzorak	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]
Ugalj	$25.2 \pm 1.6$	$23.9 \pm 1.8$	$26.4 \pm 2.4$	$25.9 \pm 2.7$	$27.5 \pm 1.8$
Šljaka	$35.5 \pm 2.4$	$35.0 \pm 2.6$	$35.5 \pm 2.1$	$38.4 \pm 3.3$	$37.9 \pm 2.3$
Pepeo	$76.7 \pm 2.9$	$74.9 \pm 3.6$	$77.7 \pm 3.4$	$77.4 \pm 3.8$	$77.1 \pm 3.3$

\* specifična aktivnost  $^{208}\text{Tl}$  normirana za faktor granjanja 0.3593

Na osnovu analize korigovanih specifičnih aktivnosti radionuklida iz uranovog i torijumovog niza u analiziranim uzorcima prikazanih u tabelama može se zaključiti da su vrednosti dobijene za specifične aktivnosti međusobno konzistentne, naročito za uranov niz, uzimajući u obzir proširene merne nesigurnosti, što donekle nije slučaj za nekorigovane vrednosti. Drugim rečima, primenom softvera EFFRTAN mogu se dobiti pouzdanije vrednosti za specifične aktivnosti radionuklida iz uranovog i torijumovog niza u analiziranim uzorcima sa relativno niskim specifičnim aktivnostima.

## 8. Zaključak

U ovom radu su prikazani korekcionni faktori za sumacione efekte za radionuklide iz uranovog ( $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  i  $^{214}\text{Pb}$ ) i torijumovog niza ( $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  i  $^{208}\text{Tl}$ ) dobijeni primenom softvera EFFTRAN [2]. Takođe, prikazane su i korigovane srednje vrednosti specifičnih aktivnosti uzoraka uglja, šljake i pepela iz termoelektrane “Nikola Tesla”.

Na osnovu analize korigovanih specifičnih aktivnosti radionuklida iz uranovog i torijumovog niza u analiziranim uzorcima prikazanih u tabelama može se zaključiti da su vrednosti dobijene za specifične aktivnosti međusobno konzistentne, naročito za uranov niz, uzimajući u obzir proširene merne nesigurnosti, što donekle nije slučaj za nekorigovane vrednosti. Drugim rečima, primenom softvera EFFRTAN [2] mogu se dobiti pouzdanije vrednosti za specifične aktivnosti radionuklida iz uranovog i torijumovog niza u analiziranim uzorcima sa relativno niskim specifičnim aktivnostima.

## Zahvalnica

Autori zahvaljuju na finansijskoj podršci Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije u okviru projekata: Nuklearna fizika, metode i primena (171018) i Smanjenje aerozagađenja iz termoelektrana u JP “Elektroprivreda Srbije” (III-42010).

## 9. Literatura

- [1] Debertin, K., Schötzig, U., 1990. Bedeutung von Summationskorrekturen bei der Gammastrahlen-Spektrometrie mit Germaniumdetektoren. PTB-Bericht PTB- Ra-24, Braunschweig ISSN0 341-6747 , ISBN 3-89429-010-2.
- [2] T. Vidmar. EFFTRAN—A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry. *Nucl. Instrum. Meth. A* 550 (2005) 603-608.
- [3] <http://www.slideshare.net/anadosen/upotreba-elektrofilterskog-pepla-i-sljake-proizvedenih-iz-termoenergetskih-postrojenja-ljljana-tanasijevi>
- [4] L. Moens, J. De Donder, X. Lin, F. De Corte, A. De Wispelaere, A. Simonits, J. Hoste. Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries. *Nucl. Instrum. Meth.* 187 (1981) 451-472.

## APPLICATION OF SOFTWARE EFFTRAN IN RADIOLOGICAL ANALYSIS OF COAL, SLAG AND ASH SAMPLES FROM THERMAL POWER PLANTS

**Aleksandar KANDIĆ<sup>1</sup>, Bojan ŠEŠLAK<sup>1</sup>, Mirjana ĐURAŠEVIĆ<sup>1</sup>, Milić ERIĆ<sup>2</sup>,  
Ivana VUKANAC<sup>1</sup>, Zoran MARKOVIĆ<sup>2</sup> and Zoran MILOŠEVIĆ<sup>1</sup>**

*1) Institute of Nuclear Sciences "Vinča", Laboratory for Nuclear and Plasma Physics,  
University of Belgrade, Belgrade, Serbia, akandic@vinca.rs*

*2) Institute of Nuclear Sciences "Vinča", Laboratory of Thermal Engineering and  
Energy, University of Belgrade, Belgrade, Serbia, milic@vinca.rs*

### ABSTRACT

Coal, slag and ash from thermal power plants contain natural radionuclides whose specific activity could be determined by semiconductor gamma spectrometry. These specific activities are generally low, and therefore the samples should be measured at small distances from the detector, where coincidence summing effect are very pronounced. The corrections factors, obtained by using software EFFTRAN, for coincidence summing effects in the case of radionuclides from uranium ( $^{234m}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  and  $^{214}\text{Pb}$ ) and thorium ( $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  and  $^{208}\text{Tl}$ ) serie are presented in this paper, as well as corrected values for specific activities.

# UTICAJ NAČINA PRIPREME, DUŽINE MERENJA I KALIBRACIJE DETEKTORA NA ODREĐIVANJE SPECIFIČNE AKTIVNOSTI RADIONUKLIDA U UZORCIMA MINERALNIH ĐUBRIVA

**Ivan PETROVIĆ<sup>1,2</sup>, Milica RAJAČIĆ<sup>1</sup>, Nataša SARAP<sup>1</sup>, Dragana TODOROVIĆ<sup>1</sup>, Marija JANKOVIĆ<sup>1</sup>, Jelena NIKOLIĆ<sup>1</sup> i Gordana PANTELIĆ<sup>1</sup>**

1) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija, milica100@vinca.rs*

2) *Univerzitet u Beogradu, Fizički fakultet, Beograd, Srbija,*

## SADRŽAJ

*Radi povećanja prinosa u poljoprivredi, zemljištu se često dodaju razne vrste mineralnih đubriva. Zbog činjenice da u njihov sastav ulaze i radioaktivni elementi, poput <sup>40</sup>K, <sup>235</sup>U i <sup>238</sup>U, čiji veštački unos može narušiti prirodan sastav zemljišta, đubriva podležu kontroli sadržaja radionuklida. Ovakva rutinska merenja, iziskuju validan rezultat u kratkom vremenskom roku. Cilj ovog rada je da se ispita da li i koliko dužina trajanja merenja, količina i način pripreme ovog tipa uzoraka utiču na rezultat merenja.*

## 1. Uvod

Zbog sve veće potrebe poljoprivrednika da povećaju svoju proizvodnju, mineralna đubriva su postala čest dodatak poljoprivrednom zemljištu. Međutim, većina ovih đubriva sadrži i izvesnu količinu radioaktivnih elemenata (<sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K, <sup>235</sup>U i <sup>238</sup>U), koja njihovom upotrebom, dospevaju u zemljište (uranijuma čak 73%) [1]. Preko 90% urana iz fosfatnih ruda ostaje u finalnim proizvodima-mineralnim đubrivima, što po nekim procenama iznosi do 30g urana po hektaru [2]. Biljka, a kasnije i životinje i ljudi, preko lanca ishrane, unose ove elemente u organizam. Ono što je važno naglasiti je da se ovi elementi već nalaze u sastavu zemljišta, ali se veštačkim dodavanjem narušava njihova prirodna koncentracija (koja takođe zavisi od vrste i geografskog položaja zemljišta, npr. afričko zemljište ima veću specifičnu aktivnost od evropskog) [3]. Sve ovo, kao i mogućnost unosa nekih proizvedenih radionuklida, je razlog zbog kog se mineralna đubriva podvrgavaju kontroli sadržaja radionuklida.

U Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Instituta „Vinča“, vrši se gamaspektrometrijsko određivanje specifične aktivnosti radioaktivnih elemenata [4]. Maksimalne vrednosti, do sada izmerenih uzoraka su iznosile 12500 Bq/kg <sup>40</sup>K, 1200 Bq/kg <sup>238</sup>U i 50 Bq/kg <sup>235</sup>U [5], što je, na osnovu zakonske regulative [6], niže od dozvoljenih granica. Zbog potrebe za, što je moguće, bržim dobijanjem rezultata, merenja se vrše u trajanju od 3000s. Ispitivano je kolika odstupanja se prave u odnosu na duže vreme merenja, kao i u slučaju dobijanja količine uzorka, nedovoljne za geometriju Marineli posude. Takođe, proveravani su i uticaj kalibracije i uspostavljanja radioaktivne ravnoteže.

## 2. Metode

Uzorak NPK đubriva (azot-fosfor-kalijum, 15:15:15), proizvod HIP-Azotare Pančevo, podeljen je na dva dela, od kojih je prvi ostavljen u obliku granula u kom je i dostavljen u laboratoriju, dok je drugi deo samleven u praškast oblik, radi povećanja homogenosti. Takođe, svaki od ovih delova spakovan je u tri različite geometrije merenja: Marineli

posudu zapremine 500 cm<sup>3</sup> i dve cilindrične posude zapremina 250 cm<sup>3</sup> i 125 cm<sup>3</sup> (slika 1). Svaki od ovih šest oblika pripreme bio je meren pre i posle uspostavljanja radioaktivne ravnoteže po 3000s i 12000s. Sva merenja su vršena na istom, poluprovodničkom HPGe detektoru firme Canberra, relativne efikasnosti 20% [7, 8]. Zapremine od 125 i 250 cm<sup>3</sup> uzorka imaju mase koje se nalaze u granicama između masa referentnih redioaktivnih materijala kojima su izvršene kalibracije, pa smo za te geometrije merenja koristili i dve različite krive efikasnosti.

### 3. Rezultati

U Tabeli 1. su prikazane mase uzorka u svakoj od korišćenih geometrija merenja, kao i mase referentnih redioaktivnih materijala korišćenih za određivanje krivi efikasnosti. Izgled korišćenih geometrija, kao i granulacija uzorka dati su na slici 1. Prikaz rezultata za svaki od načina pripreme, merenja i odabira kalibracionih krivi efikasnosti dat je u Tabeli 2.

**Tabela 1. Mase uzorka u svakoj od korišćenih geometrija merenja i mase referentnih redioaktivnih materijala (standard) korišćenih za određivanje krivi efikasnosti**

Geometrija merenja	Matriks	Masa standarda (g)	Masa uzorka (g)
Marineli	smola	492,50	552,23
Posuda od 250 cm <sup>3</sup>	ugalj	113,78	222,62
	zemljište	322,32	
Posuda od 125 cm <sup>3</sup>	ugalj	50,37	103,62
	zemljište	152,78	



**Slika 1. Izgled korišćenih geometrija merenja: a) Marineli posuda sa nesamlevenim uzorkom, b) Marineli posuda sa samlevenim uzorkom, c) cilindrična posuda od 250 cm<sup>3</sup> sa samlevenim uzorkom, d) cilindrična posuda od 125 cm<sup>3</sup> sa nesamlevenim uzorkom**

**Tabela 2. Prikaz rezultata za svaki od načina pripreme (nesamleven-samleven, nezatopljen-zatopljen), dužine merenja i odabira kalibracionih krivi efikasnosti**

Geometrija	Priprema uzorka		Matriks	<sup>40</sup> K	<sup>238</sup> U	<sup>235</sup> U
				(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
Marineli 500 cm <sup>3</sup>	nesamleven	nezatopljen	smola 1 g/cm <sup>3</sup>	3800±200	120±10	5,9±0,7
		zatopljen		3900±200	120±10	7±1
	samleven	nezatopljen*		4100±300	140±30	6,4±0,7
		nezatopljen		4100±300	120±10	5±1
		zatopljen		4100±300	100±10	6,1±0,7
Cilindrična 250 cm <sup>3</sup>	nesamleven	nezatopljen	ugalj	3900±300	120±20	7±1
			zemlja	3700±300	160±30	7±1
		zatopljen	ugalj	4100±300	110±20	6±1
			ug.-zem.	4000±300	130±20	6±1
	samleven	nezatopljen	ugalj	3900±300	100±20	6±1
			zemlja	3700±300	130±20	6±1
		zatopljen	zemlja	3700±300	130±20	6±1
			ugalj	3900±300	100±20	6±1
Cilindrična 125 cm <sup>3</sup>	nesamleven	nezatopljen	ugalj	3000±200	70±20	7±1
			zemlja	3900±300	130±30	10±2
		zatopljen	ugalj	3000±200	70±20	7±1
			zemlja	3900±300	120±30	10±2
	samleven	nezatopljen	ugalj	3000±200	90±20	5±1
			ug.-zem.	3500±200	120±20	6±1
		zatopljen	zemlja	3900±300	160±30	8±2
			ugalj	3000±200	70±20	6±1
		zemlja	3900±300	130±30	8±2	

\*Uzorak meren 3000 s, ostali uzorci mereni 12000 s

#### 4. Diskusija

Na osnovu rezultata specifičnih aktivnosti radionuklida koji su prikazani u 1. i 2. redu Tabele 2, može se videti da za uspostavljanjem radioaktivne ravnoteže nema potrebe, jer nisu detektovani potomci <sup>226</sup>Ra, što je i očekivano na osnovu poznavanja sastava ovog tipa đubriva. Poređenjem rezultata 3. i 4. reda Tabele 2, primećuje se da produžavanje merenja 4 puta, ne menja dobijene vrednosti za <sup>40</sup>K, što je posledica njegovog velikog prisustva u NPK đubrivima, odnosno njegove velike specifične aktivnosti.

Kod merenja aktivnosti <sup>235</sup>U i <sup>238</sup>U primećena je neznačajna razlika. Homogenost nesamlevenog uzorka je sasvim zadovoljavajuća, jer se njegovo usitnjavanje nije odrazilo na rezultat. Takođe, za sve tri geometrije pakovanja dobijene su približno iste vrednosti. Najveći uticaj na rezultat merenja je pokazao odabir kalibracione krive. Dobijene aktivnosti za <sup>238</sup>U i <sup>235</sup>U, u slučaju kada se koristi cilindrična geometrija 125 i 250 cm<sup>3</sup> matriksa ugalj (masa standarda je duplo manja od mase uzorka), su niže u odnosu na geometriju merenja Marineli. Kalibraciona kriva efikasnosti cilindrične geometrije 125 i 250 cm<sup>3</sup> matriksa zemlja (masa standarda je 45% i 47% veća u odnosu na masu uzorka) daje veće vrednosti aktivnosti u odnosu na geometriju merenja

Marineli. Ukoliko se koristi efikasnost dobijena na osnovu funkcionalne zavisnosti efikasnosti na datoj energiji u funkciji mase uzorka (u Tabeli 2 oznaka matriksa je ugalj-zemlja) dobijena aktivnost za  $^{238}\text{U}$  i  $^{235}\text{U}$  se ne razlikuje u odnosu na geometriju merenja Marineli. Sve izmerene vrednosti za  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  i  $^{235}\text{U}$ , zadovoljavaju Chauvenet-ov kriterijum za seriju od  $N=20$  merenja, odnosno vrednost  $Q=2,24$ .

## 5. Zaključak

Na osnovu dobijenih rezultata poređenja može se reći da, osim krive efikasnosti, parametri kao što su geometrija pakovanja uzorka, granulacija i dužina merenja, nemaju značajan uticaj na rezultat određivanja aktivnosti radionuklida u ispitivanim mineralnim NPK đubrivima. Zato, ukoliko se mase uzorka i referentnog radioaktivnog materijala značajno razlikuju, za određivanje efikasnosti, posebno na energijama 63,143 i 186 keV, trebalo bi koristiti efikasnost sa krive efikasnosti u funkciji mase uzorka za određenu geometriju merenja.

## 6. Zahvalnica

Ovaj rad je finansijski podržan od strane Ministarstva za prosvetu, nauku i tehnološki razvoj Republike Srbije, u okviru projekta broj III43009.

## 7. Literatura

- [1] M. Stojanović, D. Stevanović, J. Milojković, M. Mihajlović, Z. Lopičić and T. Šošarić. Influence of soil type and physical–chemical properties on uranium sorption and bioavailability. *Water Air Soil Pollut.* 223 (2012) 135–144.
- [2] M. Grubišić, D. Stevanović, M. Stojanović, V. Vuletić i G. Pantelić. Uticaj dugogodišnjeg đubrenja na radioaktivnost zemljišta U: M. Kovačević, ed. *Zbornik radova, XXIV Simpozijum DZZ SCG, Zlatibor, 3-5. Oktobar 2007.* Društvo za zaštitu od zračenja SCG. (2007) 17-21.
- [3] N. Akhtar. Radionuclide pollution due to fertilizer use in some saline soils of the Punjab and their potential risk assessment on human health. Department of Physics Bahauddin Zakariya University Multan, Pakistan, 2006.
- [4] G. Pantelić, D. Todorović, J. Nikolić and M. Rajačić. Interlaboratory comparison material homogeneity testing, *Central European Journal of Chemistry.* 13 (1) (2015) 656-660.
- [5] M. Rajačić, N. Sarap, M. Janković, J. Nikolić, D. Todorović i G. Pantelić. Radioactivity in chemical fertilizers. In: Ž. Knežević, M. Majer, I. Krajcar-Bronić, eds. Proceedings of 9<sup>th</sup> Symposium of the Croatia Radiation Protection Association with international participation. Krk, Croatia, April 10-12, 2013, Croatian Radiation Protection Association. (2013) 401-406.
- [6] Službeni glasnik Republike Srbije, broj 86/2011 i 97/2013. Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet. Srbija, 2013.
- [7] International Atomic Energy Agency (IAEA). Measurements of Radionuclides in Food and the Environment. Technical Report Series No. 295. 1989. IAEA, Vienna.
- [8] Canberra Industries Genie™2000 Spectroscopy Software. Customization Tools Manual, Chapter 3: Genie Algorithms, 2006, 245-383

**INFLUENCE OF SAMPLE PREPARATION, MEASUREMENT DURATION,  
AND DETECTOR CALIBRATION ON DETERMINATION OF SPECIFIC  
ACTIVITY OF RADIONUCLIDES IN MINERAL FERTILIZER**

**Ivan PETROVIĆ<sup>1,2</sup>, Milica RAJAČIĆ<sup>1</sup>, Nataša SARAP<sup>1</sup>, Dragana TODOROVIĆ<sup>1</sup>,  
Marija JANKOVIĆ<sup>1</sup>, Jelena NIKOLIĆ<sup>1</sup> and Gordana PANTELIĆ<sup>1</sup>**

*1) University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences, Radiation and  
Environmental Protection Department, Belgrade, Serbia, milica100@vinca.rs*

*2) University of Belgrade, Faculty of Physics, Belgrade, Serbia*

**ABSTRACT**

In order to increase agricultural yields, fertilizer is commonly applied to various types of land. Because fertilizers contain radioactive impurities, such as  $^{40}\text{K}$ ,  $^{235}\text{U}$  and  $^{238}\text{U}$ , which are not naturally present in soil, fertilizers are subject to control of radionuclide content. Routine measurements require valid results in a short period of time. Since the amount of sample delivered varies, it was investigated whether and how much the amount of the sample, the duration of the measurement, and the method of preparation affect the results.

Based on the obtained results of comparing several different geometries for packaging samples, as well as the selection of a matrix for determining the calibration curve, the conclusion was that the only significant impact on measurements of mineral NPK fertilizer was on the energy efficiency curve.



# ANALIZA UTICAJA MATRICE UZORKA NA EFIKASNOST DETEKCIJE HPGE DETEKTORA POMOĆU MONTE-KARLO SIMULACIJA

**Dušan MRĐA, Ivana STANKOVIĆ, Kristina BIKIT, Ištvan BIKIT, Jaroslav  
SLIVKA, Jovana NIKOLOV i Sofija FORKAPIĆ**

*Prirodno-matematički fakultet, Novi Sad, Srbija, mrdjad@df.uns.ac.rs*

## SADRŽAJ

*U radu su određene efikasnosti vrhova ukupne energije za gama kvante u energetsom opsegu 60-1800 keV za koaksijalni HPGe detektor. Ovo je najpre urađeno eksperimentalnim putem pomoću cilindričnog standarda poznatog matričnog sastava, a potom i putem Monte-Karlo simulacija, pri čemu je izvršena komparacija dobijenih rezultata. U nastavku su na bazi Monte-Karlo simulacija određene krive efikasnosti za 5 različitih matrica za cilindričnu geometriju uzorka i analizirane promene u efikasnosti detekcije koje su se javile kao posledice promene matrice uzoraka.*

## 1. Uvod

Što preciznije određivanje krive efikasnosti za datu geometriju i matricu voluminoznog uzorka predstavlja jedan od važnih zadataka u spektrometriji gama zračenja [1]. Kriva efikasnosti detektora ne zavisi samo od osobina korištenog detekcionog sistema, već i od gustine i sastava matrice uzorka, ali od njegovog oblika. Efikasnost detekcije zavisi od energije gama zračenja koje potiče iz uzorka, pri čemu su efekti samoapsorpcije utoliko više izraženi što je energija gama zračenja niža. Generalno, na efikasnost detekcije uticaj ima i koincidentno sumiranje gama zračenja, i to prave i slučajne koincidencije.

U modernom monitoringu radioaktivnosti u životnoj sredini, rutinska gama spektrometrija se primenjuje za ispitivanja velikog broja uzoraka koji sadrže male količine radionuklida, pri čemu matrični sastav uzoraka može značajno da varira. To dalje znači da će određivanje aktivnosti radionuklida u uzorcima u velikoj meri zavisiti od matrice uzorka koji se ispituje. Gama spektrometrijska merenja se obično vrše u kontaktnoj geometriji uzorka i detektora, kako bi se maksimizirala efikasnost detekcije, i to u cilindrično pakovanim uzorcima, ili u vidu Marineli geometrije. Kalibracija efikasnosti detekcije se može izvršiti eksperimentalno, poluempirijskim putem ili uz primenu Monte-Karlo simulacija. Eksperimentalno, kriva efikasnosti detektora se može odrediti pomoću standardnih referentnih materijala koji sadrže radionuklide poznatih aktivnosti i koji pokrivaju oblast energija gama zraka od interesa. Referentni materijali bi trebalo da imaju specifikacije najbliže uzorcima koji se analiziraju, u smislu geometrije i matrice (gustine i sastava). Međutim, nabavka velikog broja referentnih izvora različitih matrica je veoma skupa, te se u praksi teško realizuje. Zbog toga je značajno proveriti pouzdanost rezultata efikasnosti detekcije dobijenih na bazi Monte-Karlo simulacija, direktnim poređenjem sa eksperimentalnim podacima za jednu poznatu matricu uzorka, kako bi ovaj pristup mogao generalno da se primenjuje za dobijanje krivih efikasnosti za različite matrice uzoraka.

## 2. Eksperiment

HPGe detektor korišten u ovom radu je koaksijalni detektor p-tipa, proizvođača Canberra. Kristal germanijuma, dijametra 61 mm i visine 52 mm, je smešten u Al kućište debljine 1.5 mm. Relativna efikasnost detektora je 35.6 %.

HPGe detektor je povezan sa modulom za digitalnu obradu signala (DSP), "Inspector 2000", pri čemu se snimanje i analiza gama spektara vrši pomoću softvera Genie 2000. Oko detektora nalazi se olovna zaštita oblika cilindra unutrašnjeg dijametra 17 cm i debljine zida 12 cm. Da bi se eliminisao uticaj X-fluorescentnog zračenja olova, unutrašnjost štita je obložena slojevima kalaja i bakra čije su debljine 3 mm i 1 mm, respektivno. Prilikom eksperimenta, standardni izvor zračenja je postavljen direktno na kapu detektora, a radi smanjenja uticaja zračenja iz okruženja detektora, poklopac olovne zaštite je zatvoren.

Referentni izvor gama zračenja koji je korišten u radu sadrži 11 radionuklida homogeno raspoređenih u silikonskoj smoli čije su aktivnosti specificirane sa relativnim mernim nesigurnostima koje dostižu do 2.5%, Tabela 1. Podaci o aktivnostima su značajni za eksperimentalno određivanje krive efikasnosti, dok su maseni sastav matrice (C – 32.1%; H – 8.0%; O – 21.4%; Si – 37.5%; S – 1.0%) i gustina (0.985 g/cm<sup>3</sup>), iskorišteni prilikom simuliranja efikasnosti detektora. Referentni izvor je cilindričnog oblika prečnika 68 mm i visine 69 mm i ima zapreminu 250 cm<sup>3</sup>.

**Tabela 1. Aktivnosti radionuklida referentnog izvora u trenutku merenja (A) i referentne vrednosti (A<sub>0</sub>)**

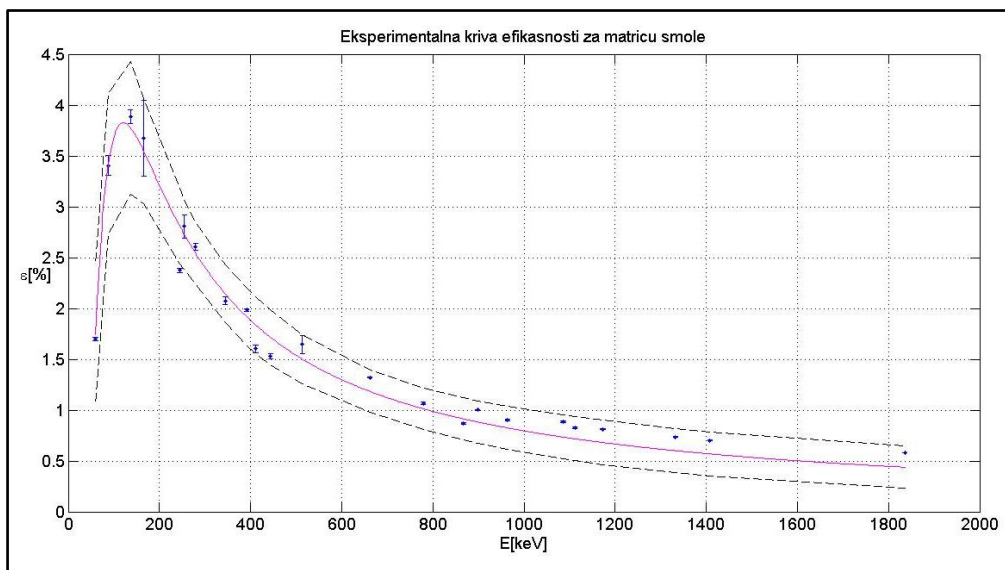
Radionuklid	T <sub>1/2</sub> [dani]	A <sub>0</sub> [kBq]	A [kBq]
<b>Am-241</b>	157800	4.266(11)	4.264(11)
<b>Cd-109</b>	462.6	16.96(14)	14.710(121)
<b>Ce-139</b>	137.5	1.004(11)	0.622(6)
<b>Co-57</b>	271.26	0.939(11)	0.737(9)
<b>Co-60</b>	1925.4	2.601(11)	2.514(11)
<b>Cs-137</b>	11019	2.468(13)	2.453(13)
<b>Sn-113</b>	115.1	3.800(22)	2.144(12)
<b>Sr-85</b>	64.78	4.176(15)	1.511 (5)
<b>Y-88</b>	106.6	4.871(12)	2.626(6)
<b>Hg-203</b>	46.72	2.034(25)	0.497(6)
<b>Eu-152</b>	4858	2.849(12)	2.811(12)

Efikasnosti detektora na odgovarajućim energijama (odabrane su 23 energije) u energetsom intervalu 59.5 keV – 1836 keV su izračunate prema formuli:

$$\varepsilon = \frac{R}{A p_{\gamma}},$$

gde je R-neto brzina brojanja vrha pune energije, A-aktivnost posmatranog radionuklida, p<sub>γ</sub>-verovatnoća emisije gama kvanta.

Dobijena eksperimentalna kriva efikasnosti detekcije prikazana je na Slici 1.

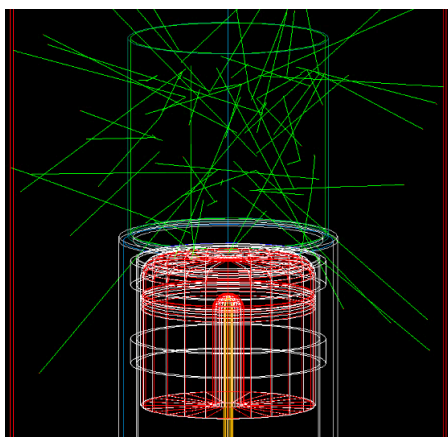


**Slika 1. Eksperimentalno određena kriva efikasnosti vrha ukupne energije za referentni izvor zračenja u matrici smole.**

### 3. Monte-Karlo simulacije

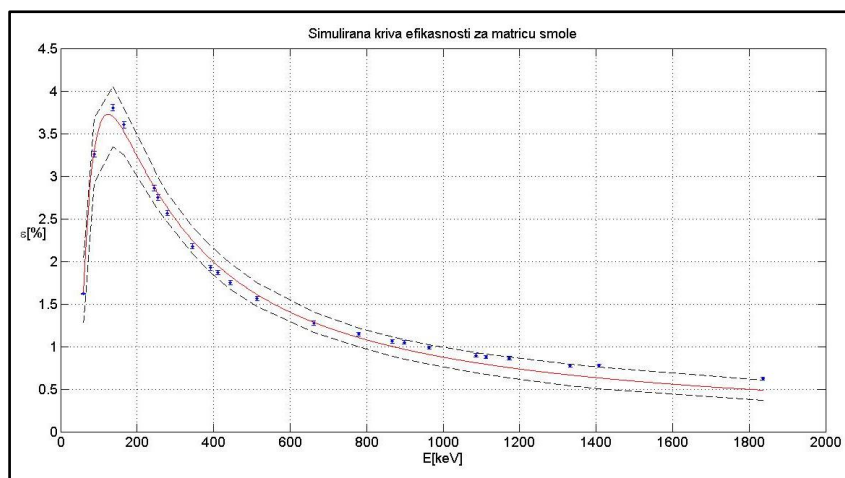
Simulirane efikasnosti su dobijene primenom *Geant4* [2] programskog paketa (verzija 4.9.5). U cilju izvođenja simulacija, detektor je modelovan na osnovu tehničke specifikacije obezbeđene od strane proizvođača, koja je obuhvatala dimenzije i vrste materijala delova detektorskog sistema. Pored matrice smole i dimenzija referentnog izvora, u *Geant4* paketu na sledeći način je definisan materijal kontejnera u kojem je bio referentni materijal: polietilen gustine  $0.93 \frac{g}{cm^3}$  sa masenim udelom elemenata:  $^{12}_6C$  – 85.7 %,  $^1_1H$  – 14.3 %.

Definisan je i položaj kontejnera (odnosno referentnog izvora gama zračenja) tako što je kontejner postavljen kao u eksperimentu - na kapu detektora (Slika 2). U simulacijama je zadata takođe i kompletna olovna zaštita, sa Sn i Cu unutrašnjim slojevima, koja je opkoljavala HPGe detektor.



**Slika 2. Vizuelni prikaz simulacije detektora, položaja polietilenskog cilindra na kapi detektora, i pojedinih putanja niskoenergetskih gama zraka emitovanih iz standardnog izvora**

Kriva efikasnosti detekcije dobijena za matricu smole na bazi simulacija data je na Slici 3. Radi dobijanja ove krive izvršene su ukupno 23 simulacije, i to na energijama gama zraka koje su korištene i u eksperimentu, a za svaku energiju je generisano  $10^6$  gama kvanata.



**Slika 3. Grafički prikaz simuliranih efikasnosti u zavisnosti od energije za matricu smola**

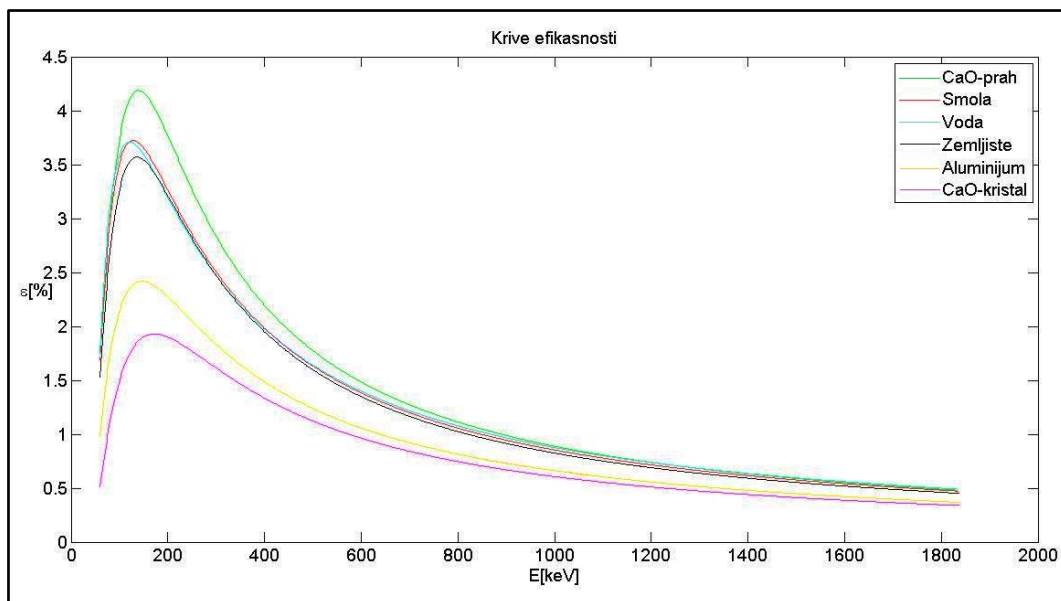
Poređenjem eksperimentalnih i simuliranih podataka za efikasnosti detekcije, utvrđeno je da se relativna odstupanja na celokupnom energetskom intervalu kreću u opsegu 1.5% - 15%, pri čemu je najveći broj rezultata imao međusobna odstupanja manja od 10%. Najveća odstupanja su uočena na pojedinim linijama koje su poreklom iz Eu-152, što je i bilo očekivano, obzirom da u simulacijama nisu bili uzeti u obzir efekti koincidentnog sumiranja. Srednja vrednost odnosa eksperimentalnih i simuliranih vrednosti efikasnosti za sve tačke iznosila je :

$\overline{\left(\frac{\varepsilon_{exp}}{\varepsilon_{sim}}\right)} = 0.96(7)$ , što ukazuje na veoma dobro slaganje simuliranih sa eksperimentalnim podacima.

Ovo je bio dobar pokazatelj da se simulirane efikasnosti mogu koristiti sa relativno visokom pouzdanošću, te da se za nekoliko drugih matrica uzorka mogu odrediti krive efikasnosti samo na osnovu simulacija da bi se utvrdilo kakve uticaje će matični efekti imati na dobijene krive.

U tom cilju je prilikom simuliranja zadato još 5 različitih matrica (Tabela 2) voluminoznih uzoraka, osim već pominjane matrice smole, i to su sledeće matrice: voda, zemljište, aluminijum, CaO-prah, CaO-kristal), gde su materijali simulirani u identičnom polietilenskom kontejneru i geometriji kao u eksperimentu. Simulirani uzorci pokrivaju širok opseg gustina od  $0.590 - 3.340 \frac{g}{cm^3}$ , te su veoma pogodni za ispitivanje efikasnosti detekcije HPGe detektora u zavisnosti od sastava matrica uzorka i razlika u gustini.

Uporedni prikaz simuliranih krivih efikasnosti vidljiv je na Slici 4.



**Slika 4. Simulirane krive efikasnosti za različite vrste matrica korištene u ovom radu**

#### 4. Diskusija rezultata i zaključak

Poređenje eksperimentalnih i simuliranih vrednosti za efikasnost detekcije i njihovo dobro slaganje je pokazalo da se *Geant4* softverski paket može koristiti kao pouzdan alat prilikom dobijanja krivih efikasnosti za različite matrice uzoraka.

Primećeno je da simulirane vrednosti efikasnosti detekcije HPGe detektora u najvećoj meri zavise od gustine matrice, barem za sastave matrica koji su ovde analizirani, a koji nisu uključivali elemente većeg atomskog broja. To je naročito uočljivo kada koristimo matrice znatno različitih gustina a istog sastava: CaO-prah i CaO-kristal. U simulacijama smo upravo i dobili najveće i najmanje vrednosti efikasnosti za ove dve matrice, koje imaju najmanju i najveću gustinu, respektivno. Sa druge strane, vidimo da se efikasnosti detekcije fotona određene energije, u istim geometrijskim uslovima merenja, za različite analizirane matrice jednake zapremine i približno iste gustine, neznatno razlikuju. Naime, u ovom radu koristili smo tri matrice relativno slične gustine: smolu, vodu i zemljište, čije se krive efikasnosti na Slici 4 gotovo potpuno preklapaju. Efekti samoapsorpcije su najizraženiji u niskoenergetskom regionu gama zračenja, što je očigledno iz poređenja simuliranih krivih efikasnosti gde na energijama od ~ 100 keV imamo znatno izraženije razlike u efikasnostima detekcije u odnosu na energije ~ 1000 keV.

#### 5. Literatura

- [1] Gilmore, G.R., Practical Gamma-ray Spectrometry, 2nd Edition. John Wiley & Sons, (2008) 150-158.
- [2] Geant4 Collaboration, Geant4 - a simulation toolkit. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 506 (2003) 250–303.

## MONTE CARLO SIMULATIONS OF SAMPLE MATRIX INFLUENCE ON DETECTION EFFICIENCY OF HPGe DETECTOR

**Dušan MRĐA, Ivana STANKOVIĆ, Kristina BIKIT, Ištvan BIKIT, Jaroslav  
SLIVKA, Jovana NIKOLOV and Sofija FORKAPIĆ**

*Faculty of Sciences, Novi Sad, Serbia, mrdjad@df.uns.ac.rs*

### ABSTRACT

In this paper we found full-energy peak efficiencies (for 60-1800 keV energy range) for coaxial HPGe detector, both experimentally and using Monte-Carlo simulations (by Geant4 simulation toolkit). Then, we compared these experimental and simulated efficiency curves, obtained for reference radioactive source in resin matrix of cylindrical geometry. Furthermore, by Monte-Carlo simulations, efficiency curves for voluminous cylindrical samples with 5 different matrices are also derived. The analysis of sample matrix influence on HPGe detection efficiency is performed by comparison of obtained Monte-Carlo simulation results.

# МОНТЕ КАРЛО СИМУЛАЦИЈА КРЕИРАЊА КОСМОГЕНИХ РАДИОНУКЛИДА У ЛЕСУ

Димитрије МАЛЕТИЋ, Никола ВЕСЕЛИНОВИЋ, Дејан ЈОКОВИЋ,  
Владимир УДОВИЧИЋ, Радомир БАЊАНАЦ, Михаило САВИЋ и  
Александар ДРАГИЋ

*Институт за физику, Земун, Београд, Србија, veselinovic@ipb.ac.rs*

## САДРЖАЈ

*Коришћењем Монте Карло симулационог пакета Corsika симулиран је флуks космичког зрачења на површини. Простирање и интеракција космичког зрачења кроз земљиште, као и креирање радионуклида у земљишту је затим симулирано коришћењем Geant4 симулационог пакета. Дистрибуција и концентрација радионуклида у зависности од дубине земљишта је приказана при чему је и зависност од брзине таложења земљишта узета у обзир. Могућност експерименталног мерења радионуклида у Нискофонској лабораторији Института за физику у Земуну је дискутована.*

## 1. Увод

Космички зраци (КЗ) су енергичне честице које долазе из спољног свемира после интеракције са Соларним и Земљиним магнетним пољем до атмосфере. Интеракција ових, примарних КЗ са атмосфером доводи до стварања каскаде секундарних честица: хадрона, електрона, миона, неутрина и гама зрачења. Ове честице могу да дођу и до тла па и да продру у тло. Најчешће честице које продиру у тло су миони, због своје релативне стабилности и малог пресека за реакције као и слабо интерагујући неутрини. Производ интеракције КЗ са земљиштем је велики број различитих изотопа, како стабилних тако и радиоактивних који се стварају у тлу на одређеној дубини. Ови изотопи се називају *космогени нуклиди* и *радионуклиди*, респективно. Неки од њих настају спалацијом или фрагментацијом а други су резултат нуклеарних реакција [1]. Табела 1 приказује најчешће космогене изотопе нађене у метеоритима што одговара и изотопима нађеним у земљишту или стени.

Космогени нуклиди се акумулирају на месту настанка тако да концентрација ових нуклида је интегрални податак настао од тренутка њиховог формирања до мерења узорка. Поред тога морају се узети и ерозије и таложења тла као фактори који могу утицати на концентрацију космогених нуклида.

Концентрација космогених радионуклида  $C$  је функција дубине  $z$  и времена  $t$  у земљишту или стени [3]:

$$\frac{\partial C(z,t)}{\partial t} = P(z) + \epsilon \frac{\partial C(z,t)}{\partial z} - \lambda C(z,t) \quad (1.1)$$

и

$$P(z) = P_0 e^{-\frac{\rho z}{\Lambda}} \quad (1.2)$$

Где је  $C(z,t)$  концентрација изотопа,  $z$  дубина,  $t$  време,  $\epsilon$  брзина ерозије,  $\lambda$  константа распада,  $P(z)$  брзина продукције атома на дубини  $z$ ,  $P_0$  брзина продукције на површини а  $\rho$  густина и  $\Lambda$  атенуациона дужина. Ова једначина (1.1) има аналитичко решење уколико су испуњени наколико услова, као што су:

земљиште или стена су затворени систем тј. нема мешања са спољним материјалом, Таложење или раст стене мора бити константан или познате временске зависности. Атенуациона дужина мора бити константна и позната. Ови услови нису увек испуњени па се овом проблему може прићи и преко симулације.

**Табела1. Неки од космогених нуклиди нађених у метеоритима [2]**

нуклиди	Полуживот (у годинама)	Мете из којих су настали
<sup>3</sup> H	12,3	O,Mg, Si, Fe
<sup>3</sup> He, <sup>4</sup> He	Стабилан	O,Mg, Si, Fe
<sup>10</sup> Be	$1,6 \cdot 10^6$	O,Mg, Si, Fe
<sup>14</sup> C	5730	O,Mg, Si, Fe
<sup>20</sup> Ne, <sup>21</sup> Ne, <sup>12</sup> Ne	Стабилан	Mg, Al, Si, Fe
<sup>22</sup> Na	2,6	Mg, Al, Si, Fe
<sup>26</sup> Al	$7,1 \cdot 10^5$	Al, Si, Fe
<sup>36</sup> Cl	$3,0 \cdot 10^5$	Fe, Ca,K,CL
<sup>36</sup> Ar, <sup>38</sup> Ar	Стабилан	Fe,Ca,K
<sup>37</sup> Ar	35 дана	Fe,Ca,K
<sup>39</sup> Ar	269	Fe,Ca,K
<sup>40</sup> K	$1,3 \cdot 10^9$	Fe
<sup>39</sup> K, <sup>41</sup> K	стабилан	Fe
.		
.		
.		

## 2. Симулација креирања радионуклида

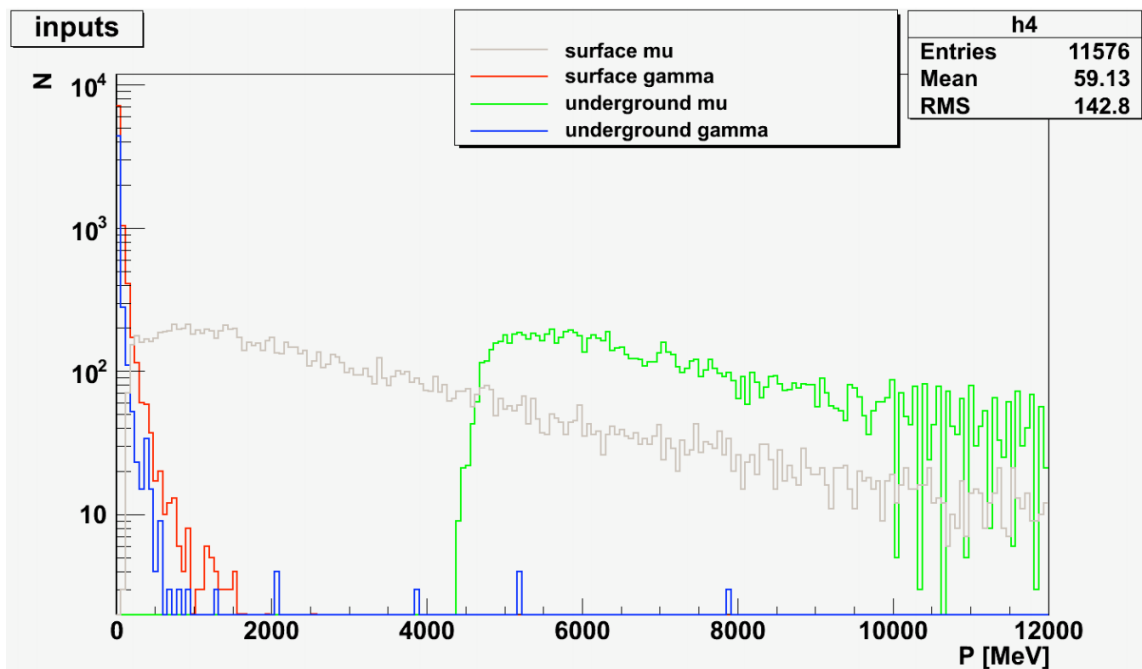
Београдска нискофонска лабораторија се налази у Институту за физику у Земуну. Географске координате лабораторије су: 44° 51'N географске ширине и 20°23'E географске дужине, са надморском висином од 78 метара. У односу на геомагнетно поље координате су следеће:  $V_x = +22,6$  nT,  $V_y = +1,7$  nT,  $V_z = +42,1$  nT, гранична вертикална геомагнететна чврстоћа 5,3 GV. Лабораторија се састоји од две дела, надземног и плитко укопаног подземног дела. Изнад подземне лабораторије се налази 12 метара леса (густине  $1,8-2,1$  g/cm<sup>3</sup>, састоји се претежно од SiO<sub>2</sub> и Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Зидови подземне лабораторије су од армираног бетона, дебљине 30 cm који су са унутрашње стране обложени алуминијумом дебљине од 1 mm. Ефективно, апсорпциони слој изнад подземне лабораторије износи 25 m.w.e (25 hg/cm<sup>3</sup>). Та дубина је довољна да је практично присутна само мионска компоненета секундарног КЗ.

Симулација пљуска КЗ у надземном и подземном делу лабораторије урађено је коришћењем Монте Карло симулационих пакета CORSIKA и Geant4 [4,5]. CORSIKA је Монте Карло код који симулира интеракцију КЗ са атмосфером. Као производ, даје спектар секундарног КЗ на заданој надморској висини. За сумулирање проласка КЗ кроз тло, честице секундарног КЗ, добијених из CORSIKA-е, са њиховим карактеристикама као што су просторни положај, импулс и енергија су почетне су улазне вредности Geant4 симулације проласка кроз земљиште.



### 3. Резултати симулације

Услед губитка енергије услед проласка у подземни део лабораторије, испод леса, доспевају само миони који имају довољно енергије као и извесно гама зрачење (слика 1), док су електрони и хадрони апсорбовани. Неутрини, као веома слабо интерагујуће честице нису разматрани.

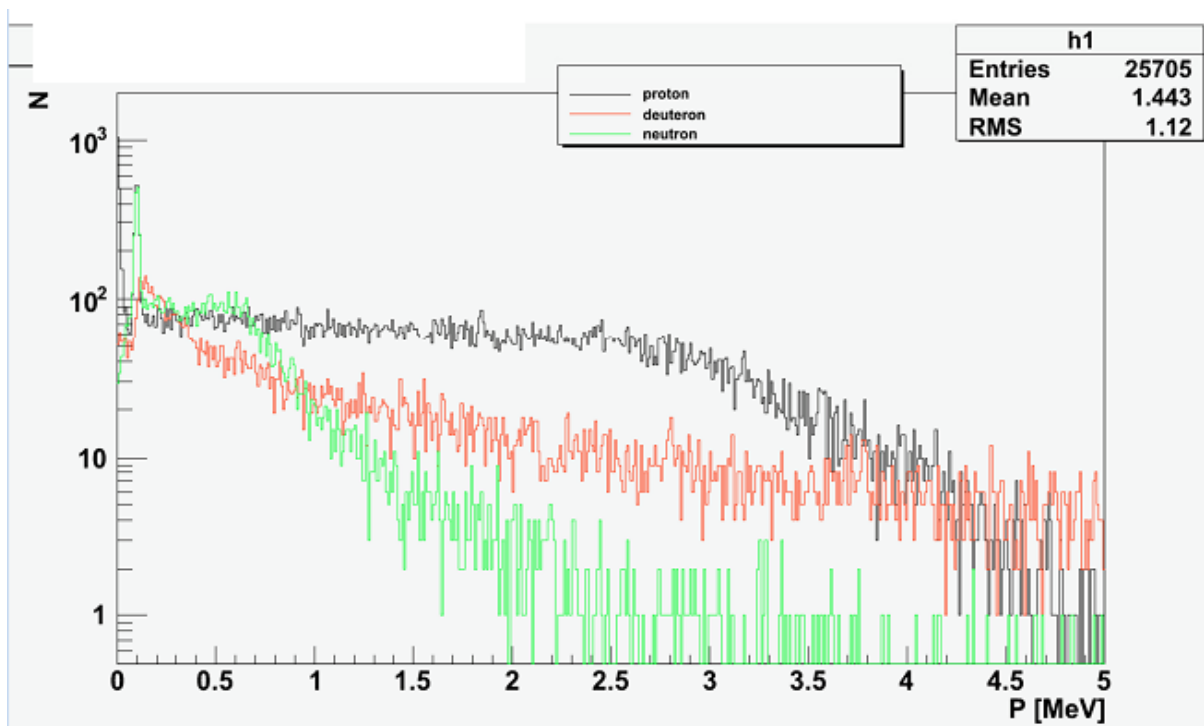


Слика1: Симулациони спектар миона и гама зрачења на површини и испод 12 m леса

У интеракције миона из КЗ са земљиштем, после проласка кроз слој леса, у подземном делу лабораторије се јављају протони, неутрони и језгра деутеријума који излазе у атмосферу подземне лабораторије (слика 2.). Они даље могу интераговати са инструментима и тако допринети повећању шума мерења.

Количина новонасталих изотопа је интегрална вредност у земљишту за улазне честице КЗ. Коришћењем симулације, за 100000 примарних честица на врху атмосфере, што одговара времену од 50 секунди, имамо тачан број креираних изотопа у земљишту између надземног и подземног дела лабораторије (табела 2).

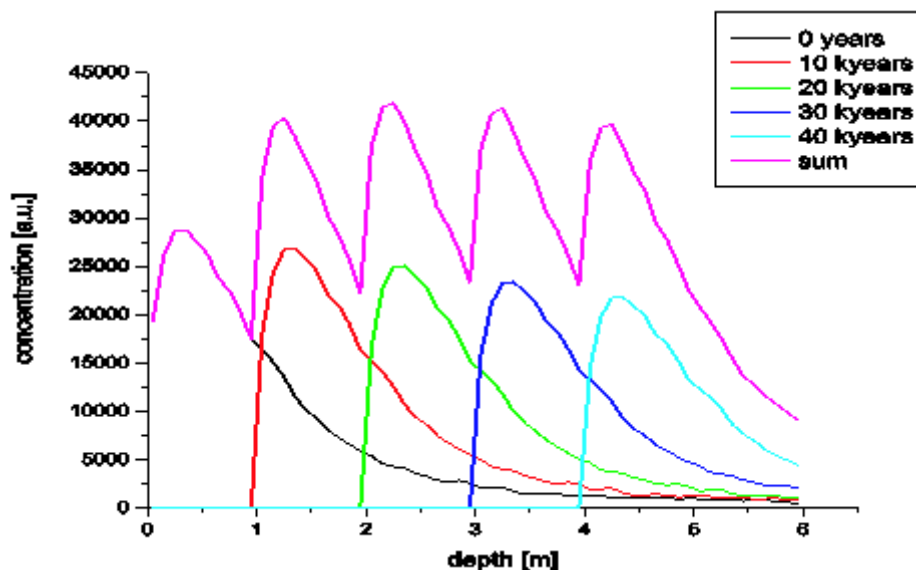
Поред овог интегралног броја честица у целој запремини могуће је, симулацијом, одредити и место у којем се стварају ови нуклиди. Симулација нам омогућава да у прорачун просторне концентрације нуклида урачунамо и таложење леса, што је познати природни феномен. Знајући брзину производње радионуклида, њихов полуживот и брзину раста земљишта можемо наћи концентрацију тих радионуклида у земљишту (слика 3). Овде смо користили, због брзине процесирања, периоде од по 10 хиљада година тако да би са права концентрација одговарала линији која повезује максимуме суме.



Слика 2. Спектар протона, неутрона и деутерона на дубини од 12 m леса

Табела 2: Нуклиди и честице произведене у 12 m леса

100 Ne21	365 Mg24	21649 mion-
105 Ar37	399 Na24	25384 e-
111 P31	427 Mg27	25705 proton
117 P32	482 Cl36	33353 neutrino_mu
129 B12	498 K39	34888 mion+
162 Ne22	724 Na23	37631 alpha
183 S34	950 Al26	45606
187 N16	1002 N15	anti_neutrino_mu
188 Na22	1321 Al28	45703 neutrino_e
198 K40	1324 Mg25	58560 gamma
284 Cl35	1934 Mg26	5065 tritium
310 Ar38	3624 Al27	9255 neutron
324 B11	744 e+	9980 deuteron
		16941 anti_neutrino_e



Слика 3: Дистрибуција креираних дугоживећих радионуклида у односу на дубину леса. Претпостављено је да је брзина раста леса  $\sim 100\text{mm}$  на 1000 година и  $10^5$  година полуживот нуклида

#### 4. Дискусија и закључак

Из овога се види да производ симулације одговара експериментално нађеним нуклидима (Табела 1) што нам омогућује да, познајући флуks миона на површини и у подземљу [6], израчунамо стварну брзину стварања и обилност ових нуклида од којих се активност радиоактивних може мерити у лабораторији. Исто тако, знајући из симулације, и дистрибуцију радионуклида могуће је то искористити за датирање земљишта. У ову симулациону анализу нису ушли други процеси који делују на лес као што је ерозија, подземне воде и остали феномени тако да је детаљније анализа потребна. Концентрације космогених радионуклида добијених овом симулацијом су врло мале тако да, са садашњом опремом у Нискофонској лабораторији у Земуну је немогуће измерити активност космогених нуклида у узорцима леса са различитих дубина.

#### 5. Захвалница

Овај рад је реализован уз подршку Министарства просвете, науке и технолошког развоја Републике Србије у оквиру пројекта под бројем ОИИ71002.

#### 6. Литература

- [1] P. Grieder. *Cosmic rays at Earth*. (2001) 975-983.
- [2] M.W. Caffee, J.N. Goswami, C.M.Hohenberg, K. Marti and R.C.Reedy. *Meteorites and the Early Solar System*,1988. The University of Arizona Press.
- [3] J. Beer. Neutron Monitor Records in Broader Historical Context, *Space Sci. Rev.* 93 (1-2) (2000) 107-119.
- [4] D. Heck et al. CORSIKA: a Monte Carlo code to simulate extensive air showers, *Report FZKA 6019*, 1998. Forschungszentrum Karlsruhe.
- [5] S. Agostinelli et al. GEANT4—a simulation toolkit. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.* 506 (2003) 250-303.

[6] A. Dragić, V. Udovičić, R. Banjanac, D. Joković, D. Maletić, N. Veselinović, M. Savić, J. Puzović, and I.V. Aničin. The New Setup in the Belgrade Low-Level and Cosmic-Ray Laboratory, *Nucl. Technol. Radiat. Prot.* Vol. 26, No. 3 (2011) 181-192.

## **MONTE CARLO SIMULATION OF THE COSMOGENIC NUCLEI PRODUCTION IN LOESS**

**Dimitrije MALETIĆ, Nikola VESELINOVIĆ, Dejan JOKOVIĆ, Vladimir  
UDOVIČIĆ, Radomir BANJANAC, Mihailo SAVIĆ, Aleksandar DRAGIĆ**

*Institute of Physics, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

[veselinovic@ipb.ac.rs](mailto:veselinovic@ipb.ac.rs)

### **ABSTRACT**

Monte Carlo simulation program CORSIKA is used to simulate the propagation of Cosmic rays through atmosphere to the ground surface. The propagation and interaction of cosmic rays with the soil - loess, including also the simulation of creation of cosmogenic radionuclides in soil is done using Monte Carlo simulation program Geant4. The distribution by depth of concentrations of produced radionuclides obtained from the simulations is presented, also for changing of soil thickness. The possibility of detection of these cosmogenic radionuclides created in soil, especially using our laboratory equipment, is discussed.

# GAMASPEKTROMETRIJSKO ODREĐIVANJE RADIONUKLIDA U UZORKU AEROSOLA ZA POTREBE MEĐULABORATORIJSKOG POREĐENJA

**Mirjana ČUJIĆ, Jelena PETROVIĆ i Ana ČUČULović**

*Institut za primenu nuklearne energije, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija,  
cujicm@inep.co.rs*

## SADRŽAJ

*U ovom radu predstavljani su rezultati gamaspektrometrijski određenih aktivnosti radionuklida u uzorku aerosola za potrebe interkomparacije. Po prvi put za potrebe međulaboratorijskog poređenja u okviru ALMERAe, koordinisane od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju - MAAE, od analitičara se zahtevalo da izvrše evaluaciju gamaspektrometrijski snimljenih spektara. Na ovaj način dosadašnja praksa međulaboratorijskog poređenja uzoraka iz životne sredine je promenjena. Inovativno u ovom pristupu analize je to što su analitičari imali priliku da odrede aktivnosti radionuklida koji nisu prisutni u klasičnim uzorcima za interkomparaciju, poput: Be-7, I-131, I-132 i Te-132.*

## 1. Uvod

Laboratorija za radioekologiju i agrohemiju, Instituta za primenu nuklearne energije - INEP, Univerziteta u Beogradu, je akreditovana laboratorija za gamaspektrometrijska merenja od strane Akreditacionog tela Srbije (ATS) i prema standardu SRPS ISO 17025. Potrebno je da svaka akreditovana laboratorija učestvuje u međulaboratorijskim proverama i programima ispitivanja osposobljenosti (*eng.* proficiency test - PT), kako bi potvrdila svoju kompetentnost [1]. Mreža analitičkih laboratorija za merenje radioaktivnosti u životnoj sredini (ALMERA), koordinisana od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju (MAAE), od svog osnivanja 1995. godine organizovala je niz PT aktivnosti [2]. U okviru ovih aktivnosti laboratorijama su dostavljani realni uzorci (voda, zemljište, sediment, trava, mahovine, alge, brašno, pirinač itd.) u kojima je bilo potrebno odrediti koncentracije aktivnosti prirodnih i/ili antropogenih radionuklida. Jedna od najčešće korišćenih metoda određivanja aktivnosti radionuklida je gamaspektrometrija. U toku planiranja međulaboratorijskih provera nekoliko ograničenja treba uzeti u obzir: mogućnost dostavljanja uzoraka laboratorijama, što je u vezi sa pravilima uvoza/izvoza zemalja članica, i vreme polu-života radionuklida koji su od interesa. Zbog svog kratkog vremena polu-života i vremena trajanja međulaboratorijske provere, neki od radionuklida koji su veoma značajni u slučajevima vanrednih situacija nisu uključeni u program PT-a, npr. radioaktivni izotopi joda. U toku 2014. godine u okviru sprovedene ALMERA PT aktivnosti (IAEA-TEL-2014-1) analitičari su imali zadatak da odrede aktivnosti radionuklida u uzorku aerosola na osnovu spektra snimljenog na gama spektrometru.

## 2. Materijal i metode

Uzorak aerosola uzorkovan je u periodu 22-28. marta 2011. godine, neposredno posle nuklearnog akcidenta u Fukušimi (Japan). Zapremina uzorka iznosila je  $32848 \text{ m}^3 \pm 1,5\%$ . Uzorak je snimljen korišćenjem koaksijalnog HPGe detektora n-tipa, dimenzija  $54,9 \times 57,1 \text{ mm}$ . Masa filtera od HD polietilena iznosila je 40 g, unutrašnjeg prečnika 82,2 mm. Na istom detektoru snimljen je i spektar kalibracionog izvora (koji čine: Am-

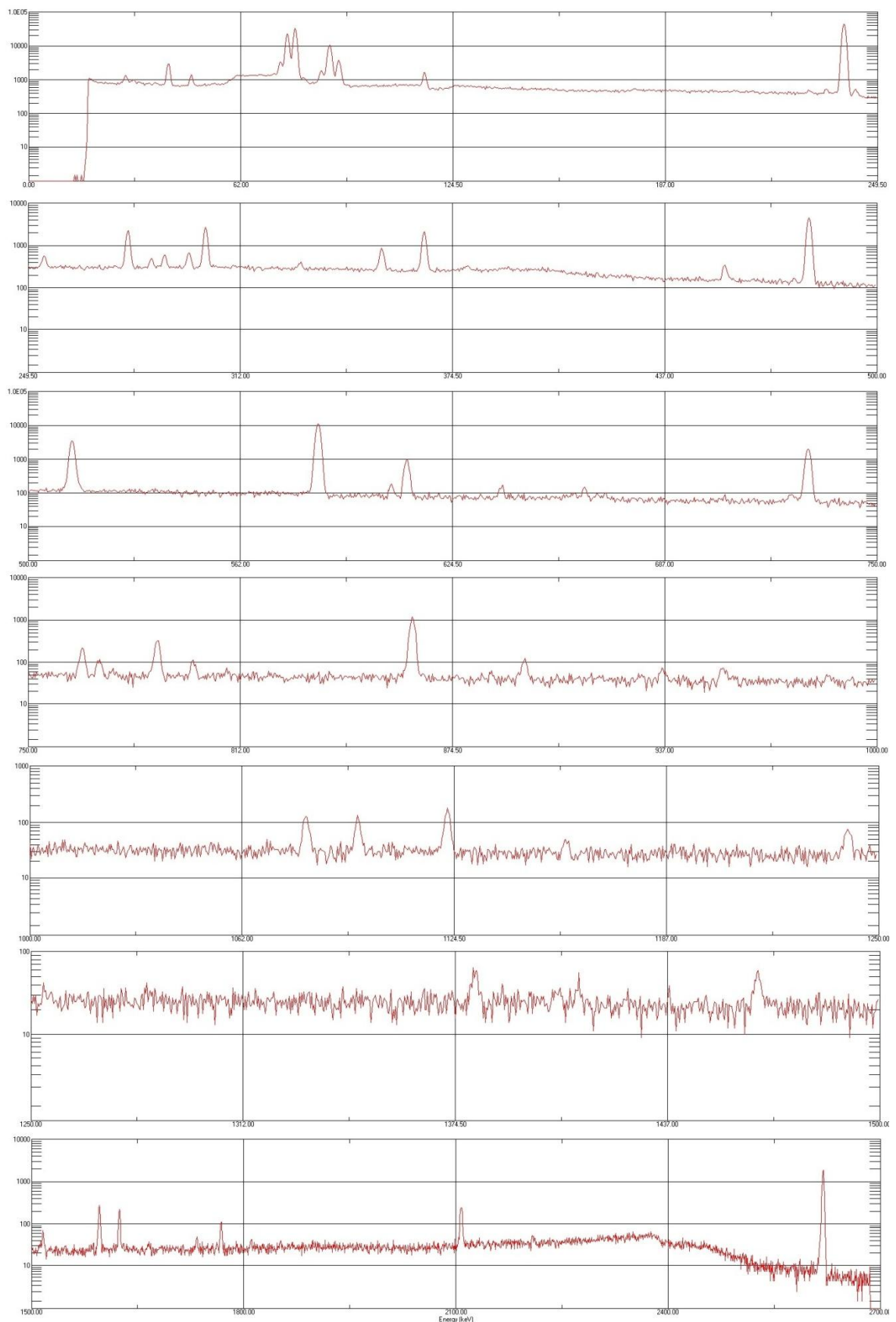
241, Cd-109, Co-57, Ce-139, Cr-51, Sr-85, Cs-137, Y-88, Co-60) mase  $135,0 \pm 0,1$  g i iste geometrije kao i uzorak aerosola. Gamaspektrometrijski spektri uzorka aerosola, pozadine (*eng.* backgrounda) i kalibracionog izvora dostavljeni su laboratorijama u sledećim formatima: Genie 2k (CANBERA); Gama Vision (ORTEC); Interwinner 6,0 (Eurysya) Integer exchange format, IEC.

Dobijeni spektari analizirani su pomoću programa Gamma Vision 32 [3]. Ovaj softver čini sastavni deo gamaspektrometrijskog uređaja ORTEC-AMATEC, laboratorije INEP-a, i njegovom upotrebom analiziraju se spektri uzoraka iz životne sredine u okviru različitih istraživanja [4-7].

### 3. Rezultati i diskusija

Analizirani spektar uzorka aerosola snimljen gamaspektrometrijski, u opsegu energija od 0 do 2700 keV predstavljen je na slici 1. Na početku spektra na energijama 27,47, 29,48 i 31,05 keV prisutne su linije poreklom od X-zraka I-125, I-131 i Cs-137, redom. Linije X-zraka Bi, Pb i Tl prisutne su u delu spektra od 72,8 do 90,1 keV. Na spektru su prisutne gama linije sledećih radionuklida: Be-7, Bi-212, Bi-214, Cs-134, Cs-137, I-131, I-132, Pb-212, Pb-214, Te-132, Tl-208. Veliki broj laboratorija dostavio je rezultate za: Be-7 i I-131 određenih preko gama linija na 477,60 i 364,49 keV, redom (69 laboratorija); Cs-137 određenog preko gama linije na 661,67 keV (67 laboratorija) i Pb-212 određenog preko gama linije na 238,63 keV (61 laboratorija).

Evaluacija aktivnoasti (Bq) analiziranih radionuklida u uzorku aerosola vršena je na osnovu vrednosti  $Z$ -skora i rezultati su prikazani u tabeli 1. Ukoliko je vrednost  $Z$  - skora manja od 2 rezultat je prihvatljiv (*eng.* acceptable - A), za vrednost od 2 do 3 rezultat je prihvatljiv sa upozorenjem (*eng.* warning - W), a za vrednosti veće od 3 rezultat je neprihvatljiv (*eng.* not acceptable - N). Iz rezultata prikazanih u tabeli 1 može se videti da su svi dostavljeni rezultati prihvatljivi. Takođe se može videti (slika 1) da je u spektru aerosola prisutan I-132 na gama linijama 667,72 i 772,6 keV. Aktivnost I-132 bila je veoma niska i iznosila je  $0,172 \pm 0,102$  Bq. Usled nesigurnosti u prisutnost ovog radionuklida u analiziranom spektru analitičari laboratorije INEP odlučili su da ne dostave rezultat za I-132. Iz tabele 1 se vidi da je samo 14 laboratorija dostavilo rezultat za I-132. S druge strane mali broj laboratorija, ukupno 22, dostavilo je rezultat za Te-132, među kojima je i laboratorija INEP. Za sve analizirane radionuklide vrednosti  $Z$ -skora bile su ispod jedinice (tabela 1). Ovakvi rezultati ukazuju da je analiza spektra uzorka aerosla izvršena tačno i precizno u laboratoriji INEP.



**Slika 1. Gama spektar analiziranog uzorka aerosola**

**Tabela 1. Evaluacija aktivnosti (Bq) analiziranih radionuklida u uzorku aerosola**

Radionuklid	Srednja vrednost $\pm$ SD (MAAE)	Srednja vrednost $\pm$ SD (INEP)	Z-skor	Z-skor evaluacija	Broj prijavljenih rezultata
Be-7	146 $\pm$ 7	146,2 $\pm$ 2,8	0,03	A	69
Bi-212	169 $\pm$ 21	175,9 $\pm$ 7,3	0,33	A	52
Bi-214	9,7 $\pm$ 0,9	9,9 $\pm$ 0,6	0,22	A	51
Cs-134	0,443 $\pm$ 0,034	0,46 $\pm$ 0,07	0,50	A	65
Cs-137	0,334 $\pm$ 0,065	0,34 $\pm$ 0,05	0,09	A	67
I-131	6,18 $\pm$ 1,67	5,4 $\pm$ 0,6	-0,47	A	69
I-132	0,172 $\pm$ 0,102	/	/	/	14
Pb-212	165,4 $\pm$ 15,5	160,5 $\pm$ 5,1	-0,32	A	59
Pb-214	4,13 $\pm$ 0,32	4,1 $\pm$ 0,26	-0,09	A	56
Te-132	0.199 $\pm$ 0.128	0,17 $\pm$ 0,05	-0.23	A	21
Tl-208	61,71 $\pm$ 5,65	59,4 $\pm$ 2,2	-0.41	A	52

/ - rezultat nije prijavljen  
SD – standardna devijacija

#### 4. Zaključak

Rezultati prikazani u ovom radu su prihvatljivi, po svim kriterijumima postavljenih od strane MAAE i ALMERA-e, organizatora međulaboratorijske interkomparacije. Ovakav pozitivan rezultat ostvaren u laboratoriji INEP-a, potvrđuje sposobnosti jedne akreditovane laboratorije i kompetentnosti njenih analitičara. S ciljem održavanja dobre laboratorijske prakse i u budućem radu laboratorija INEP trudiće se da da pozitivne rezultate u međulaboratorijskim poređenjima.

#### 5. Napomena

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (III43009)

#### 6. Literatura

- [1] ATS PA-02 Pravilnik o učešću u međulaboratorijskim poređenjima i programima za ispitivanje sposobnosti. (2011).
- [2] SRPS ISO/IEC 17043:2011, Ocenjivanje usaglašenosti – Opšti zahtevi za ispitivanje sposobnosti.
- [3] ORTEC, Gamma Vision 32. Gamma-Ray Spectrum Analysis and MCA Emulation. ORTEC, OakRidge, Version 5.3. (2011).
- [4] J. Petrović, M. Čujić, M. Đorđević, R. Dragović, B. Gajić, Š. Miljanić and S. Dragović. Spatial distribution and vertical migration of <sup>137</sup>Cs in soil of Belgrade (Serbia) 25 years after the Chernobyl accident. *Environ. Sci. Processes Impacts* 15 (2013) 1279-1289.
- [5] A. Čučulović, R. Čučulović, M. Sabovljević and D. Veselinović. Activity concentrations of <sup>137</sup>Cs and <sup>40</sup>K in mosses from spas in Eastern Serbia. *Arch. Biol. Sci.* 64 (2012) 917-925.
- [6] S. Dragović, B. Gajić, R. Dragović, Lj. Janković-Mandić, L. Slavković-Beškoski, N. Mihailović, M. Momčilović and M. Čujić. Edaphic factors affecting the vertical



distribution of radionuclides in the different soil types of Belgrade, Serbia. *J. Environ. Monit.* 14 (2012) 127-137.

[7] M. Čujić, S. Dragović, M. Đorđević, R. Dragović, B. Gajić and Š. Miljanić. Radionuclides in the soil around the largest coal-fired power plant in Serbia: radiological hazard, relationship with soil characteristics and spatial distribution. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 13 (2015) 10317-10330.

## **GAMASPECTROMETRY ANALYSIS OF RADIONUCLIDES IN AEROSOL SAMPLE FOR THE PURPOSES OF INTERLABORATORY COMPARISON**

**Mirjana ČUJIĆ, Jelena PETROVIĆ and Ana Čučulović**

*Institute for the Application of Nuclear Energy, University of Belgrade, Belgrade, Serbia, [cujicm@inep.co.rs](mailto:cujicm@inep.co.rs)*

### **ABSTRACT**

Results of gamma-spectrometric determination of radionuclides in aerosol sample for the purposes of interlaboratory comparison are presented in this work. For the first time, for the purposes of interlaboratory comparison, ALMERA network coordinated by the International Atomic Energy Agency - IAEA required from the analyst to evaluate recorded gamma spectrometry spectra. In this way, laboratory practice for the purposes of interlaboratory comparison of environmental samples was changed. Innovative in this way of analysis is that analyst had opportunity to determined activities of radionuclides that were not existed in classical interlaboratory comparison exercises, like: Be-7, I-131, I-132, Te-132.

# MEĐUNARODNA INTERKOMPARACIJA ANALIZE SPEKTRA GAMA ZRAČENJA

**Dragana TODORVIĆ, Marija JANKOVIĆ, Jelena NIKOLIĆ, Gordana PANTELIĆ, Milica RAJAČIĆ i Nataša SARAP**

*Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, 11001 Beograd, Srbija, beba@vinca.rs*

## SADRŽAJ

*Rad predstavlja rezultate dobijene u okviru međunarodne interkomparacije čiji je organizator Međunarodna agencija za atomsku anergiju (MAAE), koja se odnosila na analizu dobijenih spektara aerosola i pečuraka. Predmet ispitivanja je određivanje površine ispod foto pika na određenim energijama u dobijenom spektru i određivanje aktivnosti traženih radionuklida.*

### 1. Uvod

Međunarodna agencija za atomsku anergiju iz Beča u okviru svojih aktivnosti osnovala je 1995. godine grupu laboratorija ALMERA (Analytical Laboratories for the Measurement of Environmental Radioactivity). Laboratorije koje su postale članice ALMERE su kvalifikovane kao laboratorije koje su sposobne i odgovorne za brza merenja u slučaju akcidenta. Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine u Institutu za nuklearne nauke "Vinča" je postala član ALMERE 2012. godine. Naša laboratorija, kao i sve akreditovane laboratorije mora učestvovati u međulaboratorijskim poređenjima i programima za ispitivanje osposobljenosti (proficiency test-PT) [1]. Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine učestvuje u međunarodnim i nacionalnim interkomparacijama, pa je tako tokom 2014. godine učestvovala u međunarodnoj interkomparaciji: Inter-laboratory Comparison on Gamma-ray Spectra Evaluation IAEA TEL 2014-1. Cilj ove interkomparacije je analiza zadatog spektara aerosola i pečuraka [2]. U okviru ove interkomparacije, dobijeni su pozitivni rezultati koji predstavljaju potvrdu tačnosti analiza koje se izvode u laboratoriji i kompetentnosti laboratorije.

### 2. Eksperimentalni deo

Učesnicima interkomparacije su poslali spektri aerosola i pečuraka. Zapremina uzorka aerosola je bila 32848 m<sup>3</sup>, a spektar je sniman u cilindričnoj geometriji 80000 s. Spektar uzorka mineralizovanih pečuraka, mase 35,45 g, sniman je 150000 s u cilindričnoj geometriji.

Pored spektara uzoraka, dobijeni su:

- kalibracioni spektar matriksa celuloze koji je bio u istoj geometriji merenja kao i uzorak aerosola, sniman 40000 s, na istom detektoru, i na osnovu njega smo odredili efikasnost detekcije na traženim energijama,
- kriva efikasnosti, bez korekcija na koincidenciju, koja se koristi za određivanje aktivnosti u uzorku pečuraka i
- spektri osnovnog zračenja za obe geometrije merenja.

Zadatak u okviru interkomparacije odnosio se na:

- određivanje površine ispod fotopika,
- identifikaciju izotopa u spektrima i
- određivanje aktivnosti identifikovanih izotopa u oba uzorka.

Rezultati merenja dati su sa mernom nesigurnošću koja je izražena kao proširena merna nesigurnost za faktor  $k=1$ , koji za normalnu raspodelu odgovara nivou poverenja od 68 %.

Za analizu spektara, korišćena su dva softverska paketa Genie 2000 (Canberra) i Gamma Vision (Ortec). Za određivanje faktora korekcije za koincidentno sumiranje, u slučaju spektra analiziranog softverskim paketom Genie 2000, korišćen je softverski paket EFFTRAN [3], dok je za spektar analiziran paketom Gamma Vision korišćen modul za korekcije u samom programskom paketu.

### 3. Rezultati i diskusija

Ocena uspešnosti dobijenih rezultata je sumirana u tabelama 1-3, koje se odnose se na određivanje površine ispod foto pika, identifikaciju izotopa i određivanje aktivnosti respektivno. U tabelama 2 i 3 su prikazani naši rezultati dobijeni korišćenjem dva softverska paketa za obradu spektara i rezultati MAAE, koji su određeni kao srednja vrednost rezultata laboratorija učesnica u interkomparaciji.

Parametri koji se koriste za ocenu uspeha u interkomparaciji su tačnost i preciznost rezultata koje su poslale laboratorije. Da bi rezultat laboratorije bio prihvaćen obavezno je da zadovolji oba uslova, i takvi rezultati se ocenjuju sa A (uspešan) u izveštaju testa. Ako je relativno odstupanje ispod definisane granice, rezultat je prihvatljiv sa upozorenjem (W), a ako je iznad definisane granice ocenjuje se kao neprihvatljiv (N).

**Tabela 1. Rezultati određivanja površine ispod fotopika**

Uzorak aerosola		
Energija (keV)	Ocena površine ispod foto pika	Ocena identifikacije izotopa
46,5; 115,18; 238,6; 277,37; 295,2; 300,1; 351,93; 364,48; 477,6; 604,72; 661,65; 727,33; 785,37; 795,86; 860,53; 1079,45; 1093,9; 1120,287; 2614,51	A (uspešan)	OK
241,997; 609,312; 1764,494	N (neuspešan)	
Uzorak pečuraka		
46,5; 295,224; 338,32; 351,932; 477,6; 609,312; 661,57; 795,86; 911,196; 1120,287; 1460,882; 1764,494	A (uspešan)	OK
604,72	N (neuspešan)	

**Tabela 2. Evaluacija rezultata za uzorak aerosola**

Izotop	Aktivnost MAAE (Bq/m <sup>3</sup> )	Genie (Canberra)		Gamma Vision (Ortec)	
		Aktivnost (Bq/m <sup>3</sup> )	Ocena	Aktivnost (Bq/m <sup>3</sup> )	Ocena
<sup>210</sup> Pb	13,6 ± 2,5	16 ± 2	A	14,9 ± 1,0	A
<sup>212</sup> Pb	165,4 ± 15,5	162 ± 16	A	164,2 ± 3,2	A
<sup>212</sup> Bi	169 ± 21	160 ± 20	A	169,3 ± 7,4	A
<sup>214</sup> Pb	4,13 ± 0,32	3,4 ± 0,5	W	3,77 ± 0,20	A
<sup>214</sup> Bi	9,7 ± 0,9	8,5 ± 1,0	A	8,88 ± 0,48	A
<sup>208</sup> Tl	61,71 ± 5,65	62 ± 7	A	63,2 ± 0,4	A
<sup>131</sup> I	6,18 ± 1,67	5,9 ± 0,6	A	5,3 ± 0,5	A
<sup>134</sup> Cs	0,443 ± 0,034	0,45 ± 0,08	A	0,46 ± 0,05	A
<sup>137</sup> Cs	0,334 ± 0,065	0,34 ± 0,07	A	0,37 ± 0,05	A
<sup>7</sup> Be	146 ± 7	145 ± 13	A	146,0 ± 1,3	A

**Tabela 3. Evaluacija rezultata za uzorak pečuraka**

Izotop	Aktivnost MAAE (Bq/kg)	Genie (Canberra)		Gamma Vision (Ortec)	
		Aktivnost (Bq/kg)	Ocena	Aktivnost (Bq/kg)	Ocena
<sup>210</sup> Pb	10,7 ± 2,1	12 ± 1	A	12,7 ± 0,8	A
<sup>214</sup> Pb	0,72 ± 0,12	0,7 ± 0,1	A	0,72 ± 0,06	A
<sup>214</sup> Bi	0,496 ± 0,068	1,2 ± 0,3	N	1,2 ± 0,32	N
<sup>228</sup> Ac	0,65 ± 0,10	0,73 ± 0,14	A	0,77 ± 0,12	A
<sup>40</sup> K	385,8 ± 37,8	401 ± 34	A	400 ± 19	A
<sup>134</sup> Cs	0,118 ± 0,012	0,20 ± 0,04	N	0,18 ± 0,02	N
<sup>137</sup> Cs	5,805 ± 0,304	5,8 ± 0,5	A	5,94 ± 0,29	A
<sup>7</sup> Be	5,58 ± 0,84	5,2 ± 0,6	A	5,52 ± 0,35	A

Na osnovu rezultata prikazanih u tabelama 1-3, vidimo da su naši rezultati zadovoljavajući. Kod određivanja površine ispod foto pika kod uzorka aerosola (tabela 1) za dve energije je dobijena ocena neuspešan. Nezadovoljavajući rezultat za 241,997 keV i 609,312 keV je posledica nedovoljno dobrog razdvajanja bliskih pikova, jer se u blizini tih energija nalaze i druge energije koje su predmet ispitivanja (238,6 keV i 604,72 keV). Nakon ponovljene analize spektra aerosola, na energiji od 1764,494 keV, izdvojena je površina ispod foto pika koja se uklapa sa referentnom vrednošću, što je očigledno posledica propusta prilikom prvog pregledanja navedenog spektra. Za ostalih devetnaest energija rezultat je ocenjen kao A (uspešan).

Kod određivanja površine ispod foto pika za uzorak pečuraka, samo je za energiju 604,72 keV rezultat ocenjen kao neuspešan. Očigledno je uzeta široko definisana površina ispod foto pika (preklapanje sa susednim foto pikom 609.3 keV), dok je za ostalih dvanaest energija ocena A (uspešan).

Što se tiče analize aktivnosti radionuklida za uzorak aerosola (tabela 2) svi su rezultati ocenjeni A (uspešan), osim za aktivnost  $^{214}\text{Pb}$  (određena softverskim paketom Genie 2000), koji je ocenjen kao W (prihvatljiv sa upozorenjem). Za potrebe interkomparacije, aktivnost  $^{214}\text{Pb}$  je određena kao srednja vrednost na tri energije (241,997; 295,224 i 351,93 keV). Ukoliko bi se aktivnost ovog izotopa odredila na osnovu dve energije (295,224 i 351,93 keV), kao što se i radi u svakodnevnoj praksi, ocena aktivnosti bi tada bila A (uspešan).

U slučaju uzoraka pečuraka (tabela 3), šest rezultata je ocenjeno sa A (uspešan), a dva sa N (neuspešan) u slučaju oba softverska paketa. Aktivnosti za  $^{134}\text{Cs}$  nije uspešno određena jer je površina ispod foto pika na energiji 604,7 keV takođe bila nesušešno određena, uzeta je veća vrednost. Ne postoji mogućnost da se uoči razlog zašto aktivnost za  $^{214}\text{Bi}$  nije bila dobro određena, jer su površine ispod foto pika na svim ovim energijama ocenjene od strane MAAE kao A (uspešan).

Rezultati dobijeni primenom različitih softverskih paketa nisu se razlikovali u okviru merne nesigurnosti. Takođe se može uočiti, da su i u slučaju analize programom Genie 2000 i programom Gamma Vision, neprihvatljivi rezultati za iste izotope.

#### 4. Zaključak

Na osnovu rezultata ocenjivanja u okviru navedene međunarodne interkomparacije, koja u suštini predstavlja kontrolu rada akreditovane gamaspektrometrijske metode, može se zaključiti da su dobijeni rezultati zadovoljavajući, odnosno da se analiziranje spektara, kao i određivanje aktivnosti obavlja kvalitetno u našoj laboratoriji.

#### 5. Literatura

[1] J. D. Krneta Nikolić, D. J. Todorović, M. M. Janković, G. K. Pantelić and M. M. Rajačić. Quality Assurance and quality control in environmental radioactivity monitoring. *Qual. Assur. Saf. Crop.* 6(4) (2014) 403-409.

[2] <http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/ALMERA/>

[3] T. Vidmar, G. Kanisch, G. Vidmar. Calculation of true coincidence summing corrections for extended sources with EFFTRAN. *Appl Radiat Isot.* 69 (2011) 908-911.

#### Zahvalnica

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva za prosvetu, nauku i tehnološki razvoj Republike Srbije, pod projektom broj III43009.

## INTER LABORATORY COMPARISON ON GAMMA-RAY SPECTRA EVALUATION

**Dragana TODOROVIĆ, Marija JANKOVIĆ, Jelena NIKOLIĆ, Gordana  
PANTELIC, Milica RAJAČIĆ and Nataša SARAP**

*University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences, Radiation and  
Environmental Protection Department, Belgrade, Serbia, [beba@vinca.rs](mailto:beba@vinca.rs)*

### ABSTRACT

*As a member of ALMERA, Radiation and Environmental Protection Department of Vinča Institute of Nuclear Sciences, has participated in interlaboratory proficiency tests for many years. Aim of this work is to present the results of determination the activity of gamma emitters in the aerosol and mushrooms samples, as well as the determination of the photo peak area from the spectra provided by IAEA as a part of interlaboratory proficiency test IAEA TEL 2014-1. The spectra were analyzed using both Genie 2000 and Gamma Vision software packages. The evaluation of the results is presented in this paper. All results for the radionuclide activity, except two, were acceptable. The unacceptable results were obtained for  $^{214}\text{Bi}$  and  $^{134}\text{Cs}$ . In the case of  $^{214}\text{Bi}$ , further corrections from the IAEA evaluation team are expected, while for  $^{134}\text{Cs}$ , the net count was unacceptable due to interference with the adjacent peak. The analysis showed that the results obtained using different gamma analysis software did not differ within the measurement uncertainty. Also the results evaluation confirmed that the procedure of accredited gamma spectrometry method analysis was accurately applied.*

## УПОРЕЂЕЊЕ АКТИВНОСТИ УЗОРАКА ИЗ ЖИВОТНЕ СРЕДИНЕ МЕРЕНИХ HPGe И NaI(Tl) ДЕТЕКТОРИМА

**Јан ХАНСМАН, Миодраг КРМАР, Душан МРЂА, Наташа ТОДОРОВИЋ,  
Јована НИКОЛОВ, Никола ЈОВАНЧЕВИЋ, Софија ФОРКАПИЋ,  
Иштван БИКИТ, Кристина БИКИТ**

*Природно-математички факултет, Лабораторија за нуклеарну физику,  
Нови Сад, Србија, [jan.hansman@df.uns.ac.rs](mailto:jan.hansman@df.uns.ac.rs)*

### **САДРЖАЈ**

*У овом раду су упоређени резултати активности узорака из животне средине, добијени са два различита типа детектора - HPGe и NaI(Tl). Посматране су активности радионуклида K-40, U-238 и Th-232. Обрада снимљених спектра у оба случаја је рађена програмом GENIE-2000.*

### **1. Увод**

Постојећи германијумски детекторски системи у Лабораторији за нуклеарну физику, Нови Сад, су између осталог калибрисани и МААЕ стандардним референтним материјалима [1,2,3]. Новосклопљени детекторски систем са NaI(Tl) детектором облика јаме [4], је такође калибрисан истим референтним материјалима, али за његово редовно и комерцијално коришћење је потребно упоредити рад овог детектора са осталим акредитованим детекторским системима у Лабораторији. NaI(Tl) детектори још увек имају широку примену у мерењима радиоактивности узорака, посебно узорака из животне средине [5,6].

### **2. Експеримент**

Материјали коришћени у експерименту су узорци пристигли у лабораторију на редовну анализу. Узорци су стандардно мерени на германијумским детекторима а после тога и на NaI(Tl) детектору облика јаме. Времена мерења појединачних узорака нису била ограничена а износила су од 3000-75000 секунди. За упоређивање активности узорака са две различите врсте детектора, бирани су узорци који у свом саставу садрже значајнију количину барем једног од посматраних радионуклида (K-40, U-238 и/или Th-232). Анализа снимљених спектра је рађена програмом GENIE-2000 са истим подешавањима за одређену врсту детектора.

Сваки од посматраних материјала је упакован у стандардну, цилиндричну геометрију пречника 70 mm а висине 60 mm. Исти узорак, без препакивања у други контејнер је коришћен за анализу и на германијумским и на NaI(Tl) детектору облика јаме.

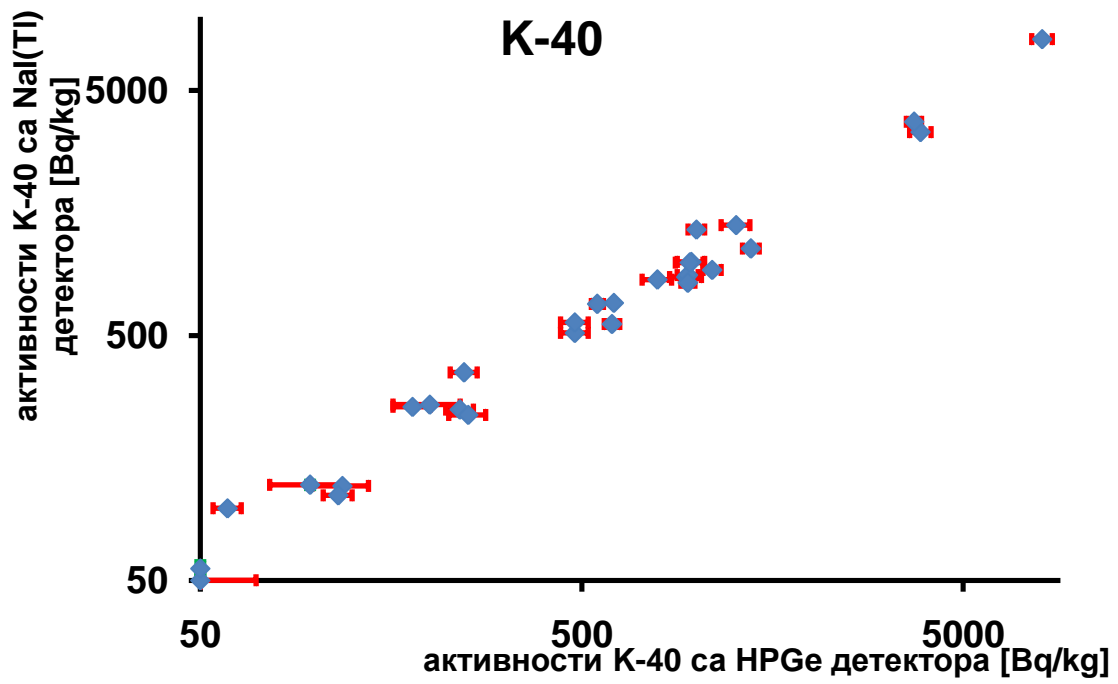
За разлику од спектра снимљених германијумским детекторима, где су приликом анализе спектра у обзир узете све видљиве гама линије изнад одређене границе (фактора значајности), код спектра са NaI(Tl) детектора, за одређивање активности су коришћене следеће гама линије: 1460,8 keV за K-40, 1764,5 keV која потиче од Bi-214 за U-238, а за Th-232 гама линија на 3197 keV која је уствари сумирана линија од 583 keV и 2614 keV а потиче од Tl-208.

### 3. Резултати

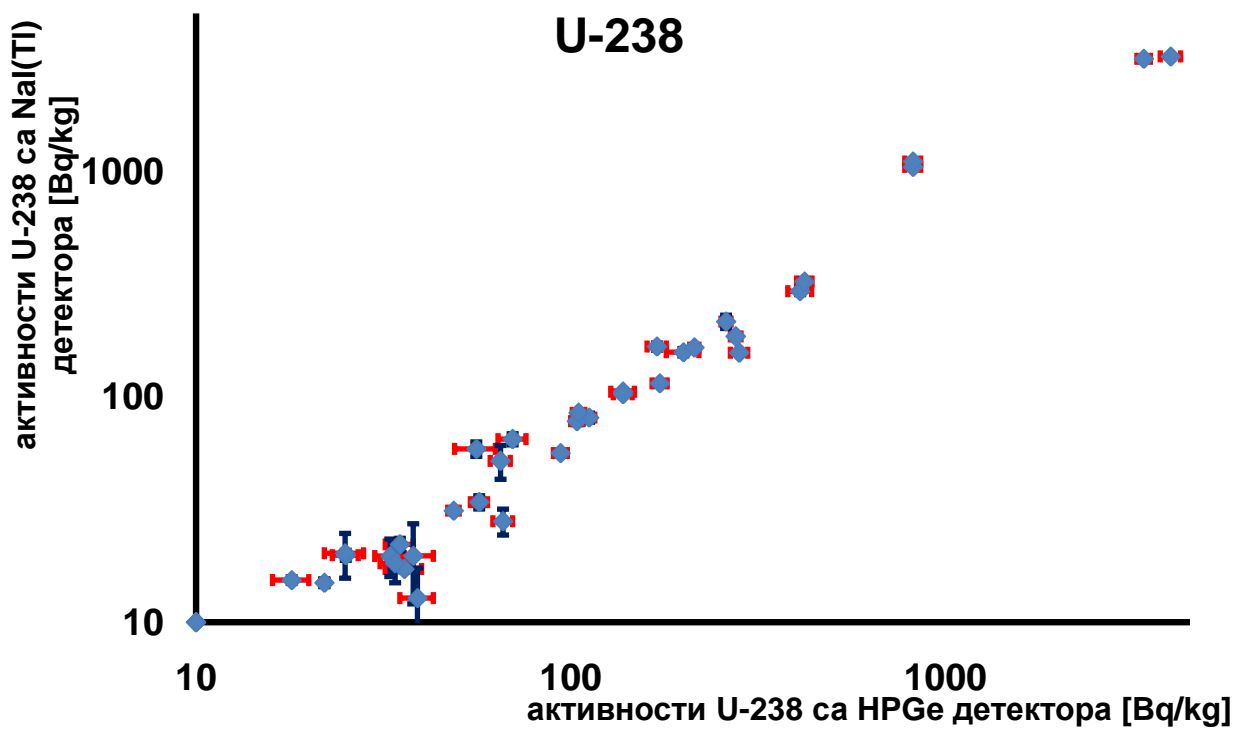
Табела 1. Коришћени материјали са одређеним активностима на германијумском и на NaI(Tl) детектору

Материјал	Активност [Bq/kg]					
	K-40		U-238		Th-232	
	Ge	NaI(Tl)	Ge	NaI(Tl)	Ge	NaI(Tl)
Каолин	1390 (70)	1130,5 (18)	138 (10)	105,1 (12)	94 (8)	99,0 (10)
Абразивни песак	480 (40)	512 (3)	820 (40)	1043 (3)	6700 (400)	6082 (7)
МАП	118 (20)	121,4 (9)	36 (4)	17,2 (5)	0 (< MDA)	6,8 (6)
Песак	240 (20)	248,7 (26)	410 (30)	293 (10)	3350 (200)	3010 (5)
25% KCl	3870 (250)	3378,5 (27)	0 (< MDA)	0 (< MDA)	0 (< MDA)	6,0 (5)
50% KCl	8066 (500)	8098 (5)	0 (< MDA)	0 (< MDA)	0 (< MDA)	7,0 (5)
Циркон	0 (< MDA)	0 (< MDA)	4000 (250)	3219 (4)	379 (20)	386,0 (15)
Абразивни песак	480 (40)	564 (4)	820 (40)	1101 (3)	6700 (400)	6149 (7)
Песак	246 (20)	352,7 (24)	421 (20)	324 (10)	3436 (200)	4281 (6)
Песак	115 (10)	111,1 (8)	200 (20)	157 (6)	1608 (100)	2487 (5)
МАП	59 (5)	98,4 (7)	18 (2)	15,4 (5)	0 (< MDA)	8,6 (6)
НПК	3720 (170)	3722 (3)	276 (9)	184,8 (11)	0 (< MDA)	5,6 (6)
Песак	20 (5)	22,86 (25)	33 (3)	20 (4)	270 (20)	336,5 (13)
KCl, Песак, МАП	1000 (50)	1352 (3)	35 (3)	22,1 (14)	200 (10)	307,4 (10)
MOSSSOIL	550 (20)	671,4 (17)	25,1 (20)	19,83 (10)	37 (2)	46,2 (11)
Седимент	607 (3)	678,6 (16)	22,0 (5)	14,9 (6)	33,7 (10)	47,0 (11)
Миназел	790 (70)	844 (8)	66 (4)	28 (4)	43 (5)	63 (5)
Глина	940 (90)	865 (9)	56 (7)	59 (4)	43 (5)	66 (5)
Песак	0 (< MDA)	49 (4)	25 (3)	20 (4)	98 (8)	133 (6)
Перлит	950 (60)	881 (9)	70 (6)	65 (4)	51 (3)	63 (5)
Каолин	252 (28)	236,5 (13)	94 (4)	56,2 (10)	70 (6)	105,6 (10)
Каолин	970 (80)	997 (8)	170 (10)	167 (6)	56 (5)	89 (4)
Камен	0 (< MDA)	56 (4)	34 (3)	18 (3)	153 (13)	161 (5)
Каолин	1100 (60)	924 (5)	214 (6)	165 (4)	98 (13)	122 (4)
Каолин	960 (80)	990,1 (16)	138 (8)	102,4 (11)	72 (10)	106,0 (11)
Песак	0 (< MDA)	50 (5)	38 (5)	20 (7)	179 (11)	205 (7)
Циркон	20 (50)	0 (< MDA)	3390 (140)	3141 (16)	503 (14)	595 (9)
Песак	0 (< MDA)	3,2 (20)	65 (4)	52 (9)	319 (11)	250 (4)
Песак	0 (< MDA)	17,4 (10)	39 (4)	13 (4)	249 (18)	177 (5)
Песак	0 (< MDA)	16,7 (10)	57 (3)	34,1 (23)	268 (10)	198 (5)
Сорбопроп	1270 (110)	1409 (20)	260 (8)	215 (14)	285 (11)	369 (17)
Царбопроп	97 (21)	123 (4)	112 (4)	81 (4)	146 (8)	127 (4)
Синтерлит	0 (< MDA)	24,72 (16)	282 (15)	156,5 (12)	3382 (17)	3609 (18)
Керамичка плочица	601 (28)	556,1 (14)	48,7 (17)	31,3 (6)	36,7 (17)	50,9 (9)
Керамичка плочица	950 (40)	819 (5)	104 (4)	77,8 (26)	89 (6)	94 (4)
Бентонит	180 (20)	255 (4)	173 (8)	114 (3)	102 (9)	155 (4)
Бентонит	200 (40)	260,9 (15)	105 (4)	84,7 (13)	142 (6)	160,2 (13)

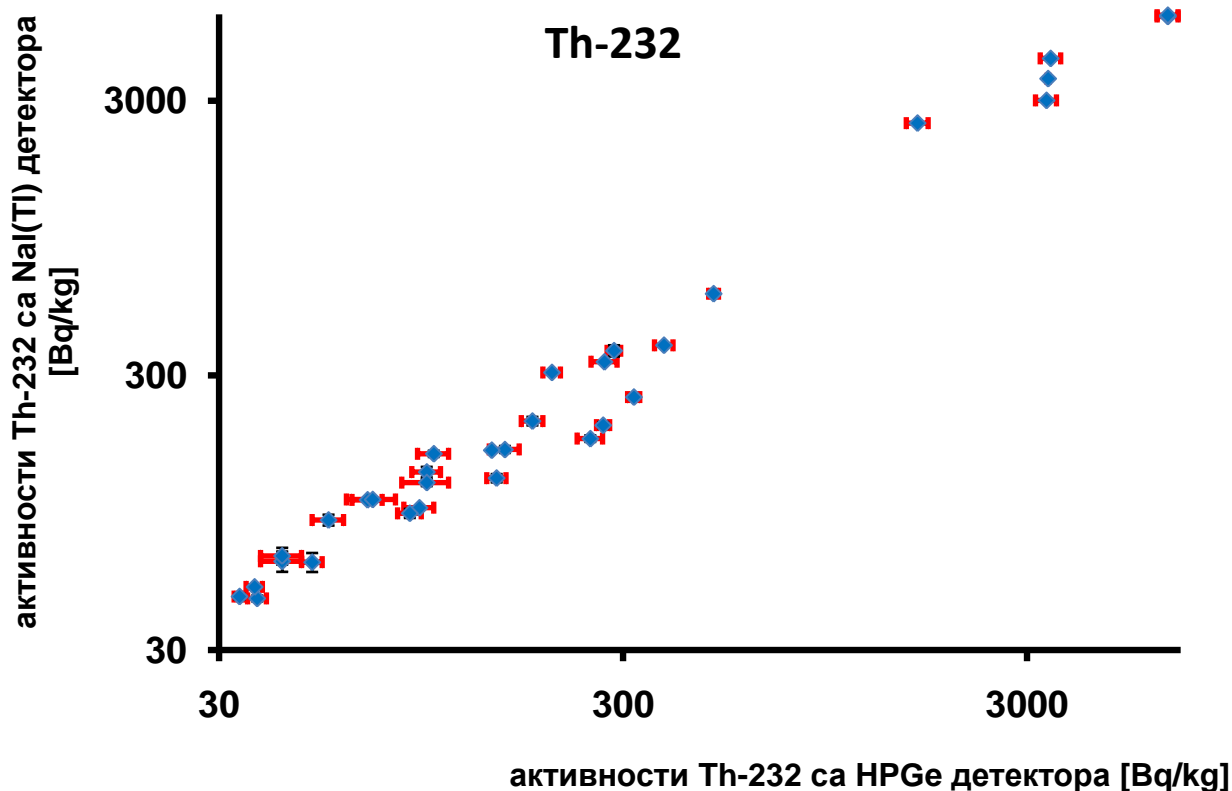




Слика 1. Упоређење активности за K-40



Слика 2. Упоређење активности за U-238



Слика 3. Упоредње активности за Th-232

\* - графици су представљени у LOG-LOG скали због прегледности широког опсега вредности и великог броја испитиваних узорка са нижим вредностима концентрације активности радионуклида

#### 4. Закључак

Најбоље слагање резултата је добијено као што је и очекивано за K-40 (емитује се само један гама зрак, нема губитака на сабирање линија) где сви добијени резултати практично леже на правој линији. Код U-238 и Th-232 постоје одступања од праве линије, али за прво тестирање детектора, можемо бити задовољни резултатима. Треба напоменути наравно да у овом експерименту нису узети у обзир састав и густина посматраних узорка. Са таквим корекцијама би резултати вероватно били још више усаглашени.

#### 5. Захвалница

Аутори се захваљују на финансијској помоћи Министарства просвете и науке Републике Србије, у оквиру пројекта Нуклеарне методе истраживања ретких процеса и космичког зрачења број 171002 и Испитивање климатских промена и њихов утицај на окружење: импакт, адаптација и митигација број 43007.

#### 6. Литература

- [1] IAEA-RGU-1 Uranium Ore-reference materials. <http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/ReferenceMaterials/Radionuclides/IAEA-RGU-1.htm>
- [2] IAEA-RGTh-1 Thorium Ore-reference materials. <http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/ReferenceMaterials/Radionuclides/IAEA-RGTh-1.htm>

- [3] IAEA-447 Natural and artificial radionuclides in moss-soil-reference materials. <http://nucleus.iaea.org/rpst/ReferenceProducts/ReferenceMaterials/Radionuclides/IAEA-447.htm>
- [4] J. Hansman. Design and Construction of a Shield for the 9" x 9" NaI(Tl) Well Type Detector. *Nucl. Technol. Radiat. Prot.* 29 (2) (2014) 165-169.
- [5] [M. Iqbal](#), [M. Tufail](#), [S. Mirza](#). Measurement of natural radioactivity in marble found in Pakistan using a NaI(Tl) gamma-ray spectrometer. *J. Environ. Radioact.* 51 (2) (2000) 255–265.
- [6] [J. Bezuidenhout](#). Measuring naturally occurring uranium in soil and minerals by analysing the 352 keV gamma-ray peak of  $^{214}\text{Pb}$  using a NaI(Tl)-detector. *Appl. Radiat. Isot.* 80 (2013) 1–6.

### ACTIVITY COMPARISON OF ENVIRONMENTAL SAMPLES MEASURED BY HPGe AND WELL TYPE NaI(Tl) DETECTOR

**Jan HANSMAN, Miodrag KRMAR, Dusan MRDJA, Natasa TODOROVIC, Jovana NIKOLOV, Nikola JOVANCEVIC, Sofija FORKAPIC, Istvan BIKIT, Kristina BIKIT**

*University of Novi Sad, Faculty of Science, Department of Physics, Novi Sad, Serbia*  
[jan.hansman@df.uns.ac.rs](mailto:jan.hansman@df.uns.ac.rs)

#### ABSTRACT

In this paper, there were compared results of environmental samples activity, measured by two different types of detectors - HPGe and NaI(Tl). Radionuclides of interests are K-40, U-238 and Th-232. Spectrum analyzing was performed by GENIE-2000 software.

## VERIFIKACIJA METODE GAMA SPEKTROMETRIJE

**Tomislav ANDELIĆ, Ranka ŽIŽIĆ, Nikola SVRKOTA, Ranko Zekić**  
*D.O.O. Centar za ekotoksikološka ispitivanja Podgorica, Podgorica, Crna Gora,*  
*tomo.a@t-com.me*

### SADRŽAJ

*U radu je dat opis postupka verifikacije metode gama spektrometrije radionuklida. Verifikacija je rađena korišćenjem tečnog standarda – miks radionuklida, proizvođač Eurostandard CZ s.r.o. - Czech Metrological Institute [1]. Verifikacija je rađena za sve standardne geometrije koje se koriste u D.O.O. Centar za ekotoksikološka ispitivanja Podgorica (u daljem tekstu CETI) a to su cilindrične posude od 50 i 200 ml i Marineli posude od 500 i 1000 ml.*

### 1. Uvod

Validacija i verifikacija metoda u slučaju klasičnih hemijskih metoda organske i neorganske analitike je standardni i uobičajeni postupak koji se radi kao obavezan dio postupka razrade i uvođenja novih metoda. Slično je i u oblasti analitike radionuklida, kod metoda alfa spektrometrije, analiza na tečnom scintilacionom brojaču i sl. I u jednom i u drugom slučaju radi se o analitičkim metodama kod kojih su kalibracioni standardi i referentni materijali u tečnom stanju. Obzirom da su kalibracioni standardi i referentni materijali u tečnom stanju, veoma je lako postići opseg koncentracija analita da bi se pokrili svi bitni parametri validacije i verifikacije metode ispitivanja.

Kod metode gama spektrometrije validacija i verifikacija je otežana jer su kalibracioni standardi većinom u formi miksa radionuklida koji se nalaze u stabilnom čvrstom matriksu - silikonskoj smoli ili silikonskoj gumi a ređe u realnim matriksima. U ovom slučaju veoma je teško postići željeni opseg koncentracija u istoj geometriji, iz prostog razloga što je to isuviše skupo. Obzirom da je cijena jednog standarda sa miksom radionuklida oko 1500 eura [1], to bi značilo da bi za validaciju ili verifikaciju bilo potrebno obezbijediti najmanje 8000 eura po geometriji, što većina Institucija u regionu to sebi ne može da priušti.

Verifikacija metode gama spektrometrije u CETI je rađena korišćenjem tečnog standarda – miks radionuklida, proizvođač Eurostandard CZ s.r.o. - Czech Metrological Institute

### 2. Materijal i metoda

Sve analize rađene u sklopu verifikacije a opisane u ovom radu, rađene su na sistemu sa poluprovodničkim HPGe detektorom firme ORTEC relativne efikasnosti 41 % a prema metodi Measurement of Radionuclides in Food and the Environment; Technical Reports series No 295 [2]. Obrada snimljenih spektara obavljena je softverom Gamma Vision 32, Nuclide Navigator. Energetska kalibracija i kalibracija efikasnosti HPGe detektora urađena je korišćenjem tačkastih izvora i multi standarda proizvođača Eurostandard CZ s.r.o. - Czech Metrological Institute.

### 3. Verifikacija metode gama spektrometrije

Za potrebe verifikacije [3] korišćen je multi standard – miks radionuklida u matriksu 4 M HCl. Proizvođač standarda je Češki metrološki institut. Standard je u Marineli posudi od 1 l,  $\rho=1.074 \text{ g/cm}^3$ , radionuklidi:  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{88}\text{Y}$ .  $A=$

54.12 kBq na referentni datum 25.09.1998, proizvodni broj standarda je 648-01 a broj sertifikata je 931 OL – 328/98. Obzirom na proteklo vrijeme, većina radionuklida u standardu se raspala i u njemu su prisutni samo radionuklidi  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ . Aktivnosti na referentni datum i referentna masa je data u sertifikatu a aktivnosti radionuklida na dan snimanja su dobijene po zakonu radioaktivnog raspada. Karakteristike korišćenog standarda su date u Tabeli 1.

**Tabela 1. Karakteristike standarda koji je upotrebljavan u verifikaciji**

Radionuklid	Referentni datum: 25.09.1998. Referentna masa: m=5.3917 g		Dan snimanja: 12.03.2015. Zapremina standarda: m=1000 ml	
	Koncentracija aktivnosti (Bq/g)	Aktivnost (Bq)	Aktivnost (Bq)	Koncentracija aktivnosti (Bq/ml)
$^{137}\text{Cs}$	1240	6685.71	$4573.56 \pm 129.43$	$4.574 \pm 0.129$
$^{60}\text{Co}$	1465	7898.84	$905.63 \pm 25.63$	$0.906 \pm 0.026$

Provjera računski dobijenih aktivnosti je urađena korišćenjem kalibracione krive koja je urađena sa standardom u Marineli posudi od 1 L,  $\rho = 1 \text{ g/cm}^3$ , matriks silikonska smola, radionuklidi:  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ . A= 41.274 kBq, broj sertifikata: 291211-1329036. Referentni datum za standard je 20.01.2012. Analiziran je standard u marineli posudi od 1 litra a analizom su dobijene sledeće vrijednosti:

$$A(^{137}\text{Cs}) = (4539.1 \pm 124.8) \text{ Bq}$$

$$A(^{60}\text{Co}) = (900.9 \pm 24.8) \text{ Bq}$$

što predstavlja gotovo idealno poklapanje sa odstupanjem manjim od 1 % u oba slučaja. Verifikacija je rađena za sve geometrije koje se redovno koriste u radu - cilindri od 50 ml i 200 ml i marineli posude od 0.5 i 1 litra. Uzorci za verifikaciju su napravljeni sipanjem po 10, 20, 30, 40 i 50 ml u pomenute geometrije a ostatak od dodate zapremine tečnog standarda do referentne zapremine standardne geometrije je dopunjen dodavanjem 4 M HCl. Ovo je rađeno da bi se postigla stabilnost uzoraka za verifikaciju, jer je 4 M HCl matriks u kom je i inicijalni standard napravljen.

Spektri su snimani praćenjem pika  $^{60}\text{Co}$  na 1332 keV-a i to do nivoa kada bi greška brzine brojanja za ovaj pik pala ispod 1 %.

Verifikacija je urađena po planu koji je dat u sledećoj tabeli:

**Tabela 2. Plan verifikacije**

Zapremina dodatog standarda (ml)		10	20	30	40	50
Geometrija	Cilindar 50 ml	✓	✓	✓	✓	✓
	Cilindar 200 ml	✓	✓	✓	✓	✓
	Marineli 0.5 l	✓	✓	✓	✓	✓
	Marineli 1 l	✓	✓	✓	✓	✓
A (Bq)	$^{137}\text{Cs}$	45.74	91.48	137.22	182.96	228.7
	$^{60}\text{Co}$	9.06	18.12	27.18	36.24	45.3

Aktivnosti uzoraka, date na kraju tabele 2. su dobijene množenjem koncentracija aktivnosti za odgovarajuće radionuklide sa datim zapreminama dodatog standarda. Ove aktivnosti se u daljem tekstu smatraju i uzimaju kao tačne vrijednosti.

Karakteristike analiziranih radionuklida i foto pikova [4] su date u sledećoj tabeli.

**Tabela 3. Karakteristike analiziranih radionuklida i foto pikova**

Radionuklid	$E_\gamma$ (keV)	$I_\gamma$ (%)	$T_{1/2}$ (godina)
$^{137}\text{Cs}$	661.657	85.1	30.07
$^{60}\text{Co}$	1332.501	99.986	5.2714
$^{60}\text{Co}$	1173.237	99.974	

Osim opisanih spektara uzoraka snimani su posebno i spektri uzorka sa dodatih 50 ml standarda u cilju provjere ponovljivosti.

Kod svih uzoraka je rađena korekcija dobijenih vrijednosti aktivnosti na efekat atenuacije. Obzirom da gustine a takođe i hemijski sastav standarda i uzoraka nijesu isti, rađena je korekcija efekta atenuacije kod svih uzoraka. Korekcionni faktor za atenuaciju je računat pomoću programa Angle [5], koji je zasnovan na konceptu efektivnog prostornog ugla  $\Omega_{\text{eff}}$ , i to:

$$K_{\text{att}} = \frac{(\Omega_{\text{EFF}})_{\text{standard}}}{(\Omega_{\text{EFF}})_{\text{uzorak}}} \quad (1)$$

Standardna nesigurnost faktora korekcije zavisi od nuklearnih podataka koji se koriste i od numeričke integracije, a mi ga procenjujemo kao 1 %.

Za sve analizirane uzorke date su kombinovane standardne mjerne nesigurnosti i proširene standardne mjerna nesigurnosti.

Za svaku standardnu geometriju rađeni su sledeći parametri verifikacije: RSD (%), Rikaveri (%), Srednji Rikaveri (%), Srednje odstupanje od tačne vrijednosti (%), Linernost - Koeficijent korelacije  $R^2$ , Mjerna nesigurnost  $k=1$  (%), Mjerna nesigurnost  $k=2$  (%), MDA (Bq), MDA (Bq/l) i  $Z_{\text{SCORE}}$ . Ključni parametar ocjene je  $Z_{\text{SCORE}}$ , koji je računat po formuli:

$$Z_{\text{SCORE}} = \frac{|A_{\text{mjereno}} - A_{\text{tačno}}|}{\sigma} \quad (2)$$

gdje se  $\sigma$  uzima kao 10 % od vrijednosti, koja se uzima kao tačna vrijednost a ovaj princip se koristi od strane IAEA, kao jedan od parametara ocjene validnosti rezultata testova koje organizuju.

Zbog obilja analitičkih podataka u daljem tekstu biće prikazani rezultati verifikacije samo za cilindričnu geometriju od 50 ml.

#### 4. Verifikacija geometrije cilindar 50 ml

Rezultati obrade rezultata za verifikaciju u slučaju standardne geometrije cilindar 50 ml dati su u tabeli 4.

Rikaveri je u intervalu (92.42 do 102.8) %, što znači da je odstupanje od tačne vrijednosti u intervalu (-7.580 do 2.810) %, dok je srednje odstupanje za cijelu seriju - 3.0267 %, a srednja odstupanja po radionuklidima i energijama su:  $^{137}\text{Cs}$  661 keV: - 1.92 %;  $^{60}\text{Co}$  1173 keV: - 4.43 %;  $^{60}\text{Co}$  1332 keV: - 2.73 %

**Tabela 4. Rezultati analize svih uzoraka**

V (ml)	Radionuklid E(keV)	Atačno (Bq)	Amjer. Kor. Katt (Bq)	Amjer. Kor. Katt/ Atačno	Rikaveri (%)	Odstupanje (%)	Z <sub>SCORE</sub>
10 ml	<sup>137</sup> Cs (661)	45.74 ± 1.30	43.06 ± 1.35	0.94	94.13	-5.87	0.59
	<sup>60</sup> Co (1173)	9.06 ± 0.26	8.37 ± 0.27	0.92	92.42	-7.58	0.76
	<sup>60</sup> Co (1332)	9.06 ± 0.26	8.54 ± 0.28	0.94	94.31	-5.69	0.57
20 ml	<sup>137</sup> Cs (661)	91.48 ± 2.59	87.20 ± 2.72	0.95	95.33	-4.67	0.47
	<sup>60</sup> Co (1173)	18.12 ± 0.51	16.75 ± 0.53	0.92	92.42	-7.58	0.76
	<sup>60</sup> Co (1332)	18.12 ± 0.51	16.94 ± 0.54	0.93	93.48	-6.52	0.65
30 ml	<sup>137</sup> Cs (661)	137.22 ± 3.89	138.72 ± 4.34	1.01	101.09	1.09	0.11
	<sup>60</sup> Co (1173)	27.18 ± 0.77	26.94 ± 0.88	0.99	99.12	-0.88	0.09
	<sup>60</sup> Co (1332)	27.18 ± 0.77	27.94 ± 0.91	1.03	102.81	2.81	0.28
40 ml	<sup>137</sup> Cs (661)	182.96 ± 5.19	183.10 ± 5.72	1.00	100.08	0.08	0.01
	<sup>60</sup> Co (1173)	36.24 ± 1.03	35.18 ± 1.14	0.97	97.06	-2.94	0.29
	<sup>60</sup> Co (1332)	36.24 ± 1.03	36.14 ± 1.17	1.00	99.72	-0.28	0.03
50 ml	<sup>137</sup> Cs (661)	228.7 ± 6.48	228.20 ± 7.11	1.00	99.78	-0.22	0.02
	<sup>60</sup> Co (1173)	45.3 ± 1.28	43.86 ± 1.39	0.97	96.82	-3.18	0.32
	<sup>60</sup> Co (1332)	45.3 ± 1.28	43.50 ± 1.38	0.96	96.03	-3.97	0.40

**Linearnost**

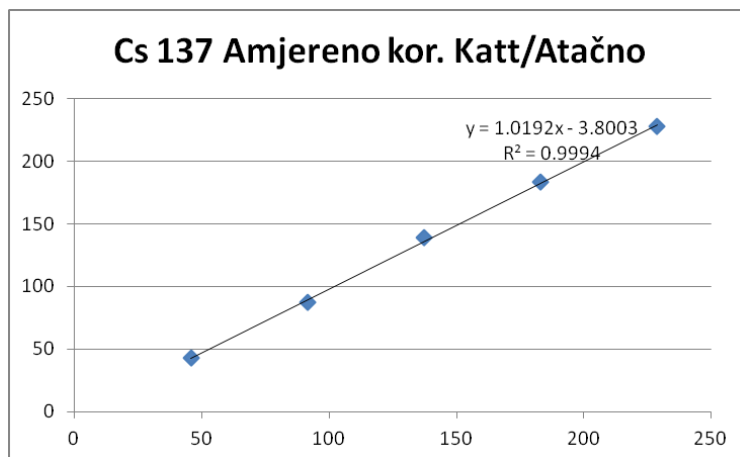
Linearnost je razmatrana za opsegu koncentracije aktivnosti koji je postignut dodavanjem različitih zapremina tečnog multi standarda. U sledećim tabelama i na sledećim graficima je dat prikaz razmatranja lineranosti za posmatrane radionuklide i analizirane foto pikove tih radionuklida:

**Tabela 5. Linearnost za <sup>137</sup>Cs**

Br. Tačke	V dodatog standarda (ml)	Atačno (Bq)	Amjereno kor. Katt (Bq)
1	10	45.74	43.06
2	20	91.48	87.20
3	30	137.22	138.71
4	40	182.96	183.10
5	50	228.7	228.20

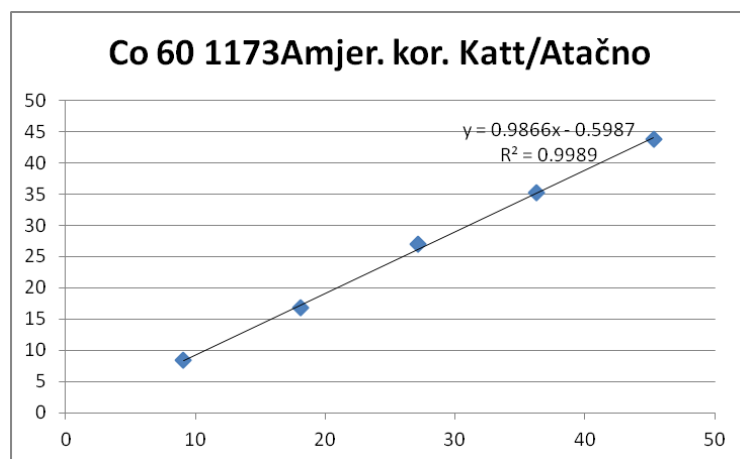
**Tabela 6. Linearnost za <sup>60</sup>Co, E = 1173.237 keV**

Br. Tačke	V dodat. Standarda (ml)	Atačno (Bq)	Amjereno kor. Katt (Bq)
1	10	9.06	8.37
2	20	18.12	16.75
3	30	27.18	26.94
4	40	36.24	35.16
5	50	45.30	43.86



**Grafik 1. Linernost za  $^{137}\text{Cs}$**

Kao što se i vidi sa grafika, koeficijent pravca je 1.0192 a koeficijent korelacije  $R^2 = 0.9994$ , čime je dokazana linernost.



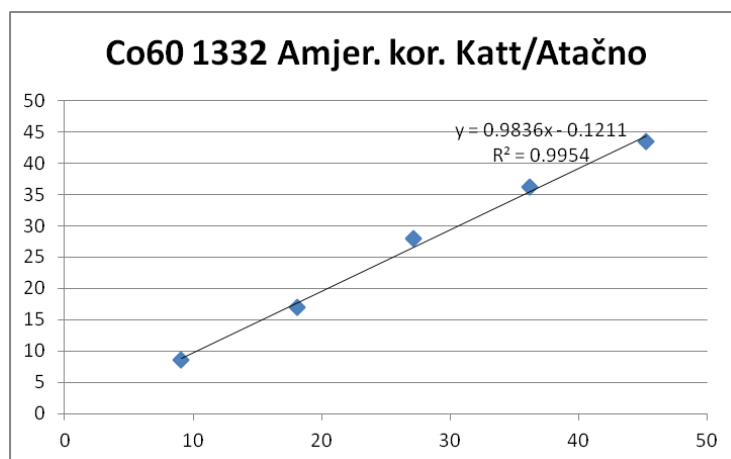
**Grafik 2. Linernost za  $^{60}\text{Co}$ ,  $E = 1173.237 \text{ keV}$**

Kao što se i vidi sa grafika, koeficijent pravca je 0.9896 a koeficijent korelacije  $R^2 = 0.9989$ , čime je dokazana linernost.

**Tabela 7. Linearnost za  $^{60}\text{Co}$ ,  $E = 1332.501 \text{ keV}$**

Br. Tačke	V dodat. Standarda (ml)	Atačno (Bq)	Amjereno kor. Katt (Bq)
1	10	9.06	8.54
2	20	18.12	16.94
3	30	27.18	27.94
4	40	36.24	36.14
5	50	45.3	43.50





**Grafik 3. Lineranost za  $^{60}\text{Co}$ , E = 1332.501keV**

Kao što se i vidi sa grafika, koeficijent pravca je 0.9836 a koeficijent korelacije  $R^2 = 0.9954$ , čime je dokazana lineranost.

### Ponovljivost

Kao što je naprijed i opisano, posebno su snimani spektri uzorka sa dodatih 50 ml standarda u cilju provjere ponovljivosti. Rezultati analiza i statističke obrade podataka dati su u tabeli 8:

Relativne standardne devijacije za sve analizirane radionuklide – foto pikove su bitno ispod 1 %, pa je stoga ponovljivost dokazana.

**Tabela 8. Ponovljivost**

Br. mjerenja	A ( $^{137}\text{Cs}$ ) [Bq]	A ( $^{60}\text{Co}$ 1173) [Bq]	A ( $^{60}\text{Co}$ 1332) [Bq]
1.	228.02	43.85	43.51
2.	228.12	43.82	44.08
3.	228.16	44.01	44.07
4.	228.68	43.60	43.60
5.	228.02	43.72	43.73
6.	228.32	43.97	43.80
7.	228.67	43.76	44.19
Srednja Vrijednost	228.28	43.82	43.85
Standardna Devijacija	0.285	0.142	0.262
RSD (%)	0.125	0.325	0.597

Osim prikazanih parametara, rađena je i granica detekcije za sve uslove snimanja a takođe i mjerna nesigurnost ali ovi podaci nijesu prikazani zbog ograničenog prostora, već je u tabeli 9. dat sumarni prikaz i ovih parametara.

### 5. Sumarni pregled svih analiziranih parametara verifikacije za sve geometrije

Sumarni pregled svih analiziranih parametara verifikacije metode određivanja gama emitera metodom gama spektrometrije za sve standardne geometriju dati su u sledećim tabelama:

**Tabela 9. Sumarni pregled parametara verifikacije – Cilindar 50 ml**

Radionuklid	<sup>137</sup> Cs	<sup>60</sup> Co	<sup>60</sup> Co
Energija (keV)	661	1173	1332
RSD (%)	0.125	0.325	0.597
Rikaveri (%)	98.08	95.57	97.27
Srednji Rikaveri (%)	96.973		
Srednje odstupanje od tačne vrijednosti (%)	- 1.92	- 4.43	- 2.73
Lineranost - Koeficijent korelacije R <sup>2</sup>	0.999	0.999	0.995
Mjerna nesigurnost k=1 (%)	3.122	3.222	3.222
MDA (Bq/l)	3.84	3.04	2.16
Srednji Z <sub>SCORE</sub>	0.24	0.44	0.39

**Tabela 10. Sumarni pregled parametara verifikacije – Cilindar 200 ml**

Radionuklid	<sup>137</sup> Cs	<sup>60</sup> Co	<sup>60</sup> Co
Energija (keV)	661	1173	1332
RSD (%)	0.25	0.37	0.33
Rikaveri (%)	104.73	102.35	102.04
Srednji Rikaveri (%)	103.4		
Srednje odstupanje od tačne vrijednosti (%)	4.73	2.35	2.04
Lineranost - Koeficijent korelacije R <sup>2</sup>	0.998	0.987	0.995
Mjerna nesigurnost k=1 (%)	3.312	3.476	3.476
MDA (Bq/l)	1.45	1.10	0.85
Srednji Z <sub>SCORE</sub>	0.49	0.26	0.34

**Tabela 11. Sumarni pregled parametara verifikacije – Marineli 0.5 l**

Radionuklid	<sup>137</sup> Cs	<sup>60</sup> Co	<sup>60</sup> Co
Energija (keV)	661	1173	1332
RSD (%)	1.04	1.01	1.32
Rikaveri (%)	109.08	104.52	104.79
Srednji Rikaveri (%)	106.13		
Srednje odstupanje od tačne vrijednosti (%)	9.08	4.79	4.52
Lineranost - Koeficijent korelacije R <sup>2</sup>	0.997	0.995	0.996
Mjerna nesigurnost k=1 (%)	3.42	3.51	3.51
MDA (Bq/l)	0.40	0.30	0.24
Srednji Z <sub>SCORE</sub>	0.94	0.66	0.72

**Tabela 12. Sumarni pregled parametara verifikacije – Marineli 1 I**

<b>Radionuklid</b>	<sup>137</sup> Cs	<sup>60</sup> Co	<sup>60</sup> Co
<b>Energija (keV)</b>	661	1173	1332
<b>RSD (%)</b>	0.54	0.52	0.46
<b>Rikaveri (%)</b>	105.89	100.10	99.80
<b>Srednji Rikaveri (%)</b>	101.93		
<b>Srednje odstupanje od tačne vrijednosti (%)</b>	5.89	0.10	-0.20
<b>Lineranost - Koeficijent korelacije R<sup>2</sup></b>	0.990	0.993	0.992
<b>Mjerna nesigurnost k=1 (%)</b>	2.73	2.83	2.83
<b>MDA (Bq/l)</b>	0.17	0.12	0.09
<b>Srednji Z<sub>SCORE</sub></b>	0.59	0.32	0.39

## 6. Zaključak

Verifikacijom metode gama spektrometrije korišćenjem tečnog standarda, dobili smo čitav niz analitičkih parametara koji su nam pomogli da jasnije sagledamo validnost i pouzdanost rezultata koje saopštavamo. Verifikacija je rađena za sve standardne geometrije koje koristimo pa to čitavom postupku daje još veći značaj. Kroz analize, koje su rađene u sklopu verifikacije, provjerena je u stvari validnost svih kalibracionih krivih efikasnosti koje koristimo a u suštini izvršena je verifikacija svih koraka metode. Smatramo da ovakav postupak verifikacije mora biti obavezan dio sistema kvaliteta svake gama spektrometrijske laboratorije.

## 7. Literatura

- [1] [http://www.eurostandard.cz/index\\_en.htm](http://www.eurostandard.cz/index_en.htm)
- [2] IAEA Technical Reports Series No 295. 1989. IAEA, Vienna
- [3] CETI-545-101 Validacija metoda ispitivanja
- [4] <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>
- [5] S. Jovanovic, A. Dlabac and N. Mihaljevic, ANGLE v2.1 — New version of the computer code for semiconductor detector gamma-efficiency calculations, *Nucl. Instr. Methods Phys. Res. A* Vol.622 Is. 2 (2010) 385-391.

## VERIFICATION OF GAMMA SPECTROMETRY METHOD

**Tomislav ANDELIĆ, Ranka ŽIŽIĆ, Nikola SVRKOTA, Ranko Zekić**  
*LLC Center for Ecotoxicological Research Podgorica, Podgorica, Montenegro,*  
*tomo.a@t-com.me*

### ABSTRACT

This paper gives a description the verification procedure for method of gamma spectrometry of radionuclides for all standard geometry used routinely in our laboratory - cylindrical containers of 50 and 200 ml and Marinelli containers of 500 and 1000 ml. Validation and verification in the case of classical chemical methods of organic and inorganic analytics is standard and normal procedure. It is similar in case of alpha spectrometry method also a liquid scintillation counter etc. In both cases it is the analytical methods in which the calibration standards and reference materials are in liquid form so that the verification process makes easier.

In case of gamma spectrometry method validation and verification is difficult because the calibration standards are mainly in the form of a mix of radionuclides, which are located in the solid matrix - silicone rubber and less frequently in the real matrix. In this case it is very difficult to achieve the desired range of concentrations in the same geometry, the simple reason that it is too expensive.

For verification we use multi standard - mix radionuclide in matrix 4 M HCl,  $\rho = 1.074 \text{ g / cm}^3$ . Samples for verification are prepared by pouring 10, 20, 30, 40 and 50 ml in the aforementioned geometries and the remainder till the reference volume has been supplemented by the addition of 4 M HCl.

By verification of gamma spectrometry method using liquid standards, we get a series of analytical parameters that have helped us to see clearly into the validity and reliability of the results that we report on daily bases. Verification is done for all standard geometries that we use so that the whole procedure gives even greater importance. Through the analyses, which were made as part of the verification, it was checked in fact the validity of all our efficiency calibration curves we use and in fact was carried out verification of all steps of the method. We believe that this verification process should be mandatory part of the quality systems of each gamma spectrometric laboratories.

# ANALIZA MOGUĆNOSTI SPEKTROMETRIJE NEUTRONA PADČ DETEKTOROM

**Dragoslav NIKEZIĆ<sup>1</sup>, Biljana MILENKOVIĆ<sup>1</sup> i K.N.YU<sup>2</sup>**

1) *Univerzitet u Kragujevcu, Prirodno matematički fakultet, Kragujevac, Srbija,*

[nikezic@kg.ac.rs](mailto:nikezic@kg.ac.rs), [bmilenkovic@kg.ac.rs](mailto:bmilenkovic@kg.ac.rs),

2) *City University of Hong Kong, Hong Kong, Kina*

[peter.yu@cityu.edu.hk](mailto:peter.yu@cityu.edu.hk)

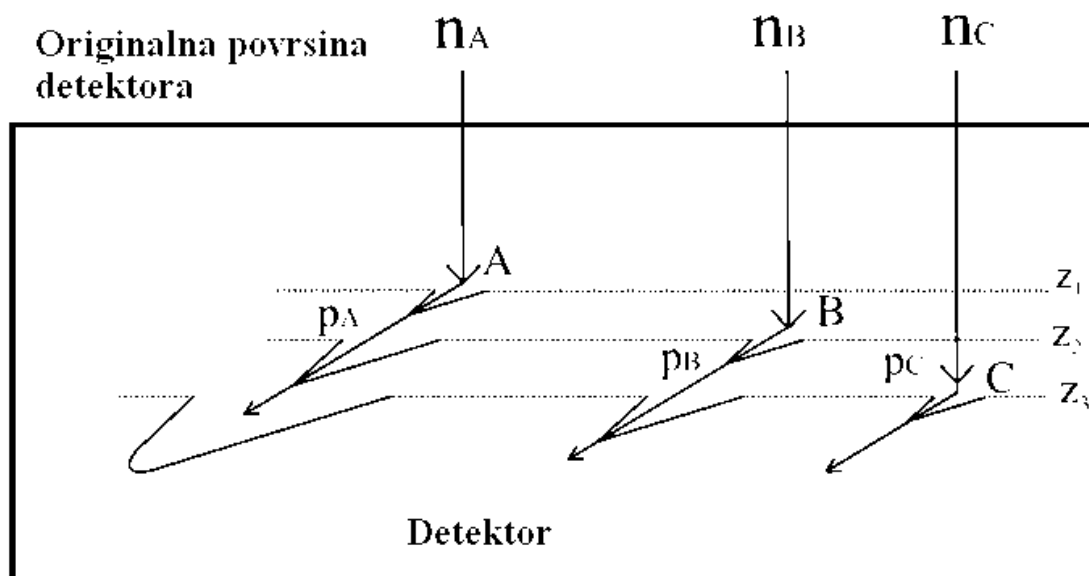
## SADRŽAJ

Kompjuterski program za proučavanje tragova u detektoru PADČ je predstavljen u ovom radu. Program je napisan u FORTRAN90 programskom jeziku i omogućuje grafičku prezentaciju profila traga kao i vizuelizaciju pojave traga pod optičkim mikroskopom u transmisionoj modi rada. Merljivi parametri traga se određuju i prikazuju kao izlazni rezultat na monitoru računara. Primena ovog softvera u dozimetriji i spektrometriji neutrona je kritički razmotrena i predlaže se formiranje banke velikog broja tragova sa kojom bi se poredili stvarni tragovi dobijeni u merenju. Nekoliko problema je identifikovano u ovoj oblasti, kao što su: dobijanje vrlo sličnih tragova od protona različitih energija i uglova uzmaca; mala efikasnost detektora za energije veće od 5 MeV; potreba monitoringa razvoja traga što će znatno otežati praktičan rad; dekonvolucija neutronskeg spektra od određenog spektra protona i dr.

## 1. Uvod

Poznato je da je detekcija i dozimetrija brzih neutrona moguća korišćenjem čvrstih trag detektora (SSNTD)<sup>[1]</sup>. Obično se neka vrsta konvertora postavlja između izvora neutrona i detektora u kome se proizvode uzmaknuti protoni i koji se dalje registruju detektorom. Međutim, u takvoj geometriji izlaganja gubi se informacija o incidentnoj energiji neutrona i potrebno je tražiti način rekonstrukcije neutronskeg spektra. Da bi se odredio spektar neutrona, potrebno je odrediti energije velikog broja protona koji su ostavili vidljive tragove u detektorskom materijalu. Međutim, ovaj zadatak je više nego izazovan iz razloga iznetih u sledećem tekstu<sup>[2]</sup>. Na Slici 1 prikazana su tri specijalna slučaja interakcije neutrona,  $n_A$ ,  $n_B$  i  $n_C$  sa detektorskim materijalom u tri različite tačke A, B i C na dubinama  $z_1$ ,  $z_2$  i  $z_3$  (resp.).

Neka su protoni uzmaknuti pod istim uglovima i sa istom energijom (isti domet u detektorskom materijalu). Pri hemijskom nagrivanju, površina detektora se pomera paralelno originalnoj površini detektora, i posle izvesnog vremena dostići će tačku A u kojoj je kreiran prvi proton  $p_A$ . Daljim nagrivanjem, počinje formiranje traga protona  $p_A$  (ako su zadovoljeni uslovi za formiranje traga), pri čemu rastvor još uvek nije dostigao tačke B i C u kojima su kreirani uzmaknuti protoni  $p_B$  i  $p_C$ . Nagrivanjem se uveličava trag A i rastvor dostiže redom tačke B i C kada počinje formiranje i ovih tragova. Posle dovoljno dugog vremena sva tri traga će biti formirana i postati vidljiva pod optičkim mikroskopom. Međutim usled različitog vremena u toku koga su tragovi nagriveni, oni će biti različite veličine, i možda, u raznim fazama razvoja, imati različite oblike. Može se zaključiti da se parametri tragova ne mogu direktno koristiti za određivanje energije uzmaknutih protona, i rekonstrukcije spektra neutronskeg zračenja.



**Slika 1. Specijalni slučajevi interakcije neutrona,  $n_A$ ,  $n_B$  i  $n_C$  sa detektorskim materijalom u tri različite tačke A, B i C na dubinama  $z_1$ ,  $z_2$  i  $z_3$**

Informacija koja nedostaje je dubina  $z_{start}$  na kojoj je počelo formiranje traga ( $z_1, z_2$  i  $z_3$ ) na Slici 1. Potrebno je uvesti „efektivni uklonjeni sloj“  $h_{eff}$ , definisan kao  $h_{eff}=h-z_{start}$ , gde je  $h$ , ukupna debljina sloja uklonjenog u toku celokupnog procesa nagrizanja. Ovo znači da je potrebno kontrolisati proces nagrizanja na neki način. To se može postići nagrizanjem u više malih sesija, pri čemu se nakon svake od njih, posmatraju tragovi, mere njihove dimenzije, otkrivaju oni čiji je razvoj upravo počeo, i pažljivo kontroliše debljina uklonjenog sloja. Ovakva procedura je vrlo zahtevna i verovatno vremenski vrlo konzumna, ali je poznavanje  $z_{start}$  za svaki razvijeni trag neophodno za analizu određivanja energije protona (a kasnije i neutrona).

U ovom radu teorijski je razmatrana mogućnost spektrometrije neutrona detektorom PADC (Poly-Allyl-Diglycol Carbonate) koji je poznat pod trgovačkim imenom CR-39. Neutroni interaguju sa atomima detektorskog materijala, pri čemu je najvažnija interakcija sa jezgroma vodonika, nakon čega se stvaraju uzmaknuti protoni. Ovi protoni, ostavljaju latentne tragove, koji se nakon nagrizanja mogu proučavati i meriti njihovi parametri. Parametri tragova nose informaciju o energiji inicijalnih neutrona. Pri elastičnom rasejanju neutrona energije  $E_n$  na protonu, dolazi do prenosa energije sa neutrona na proton po formuli

$$E_p = E_n \cos^2 \varphi \quad (1)$$

gde je  $E_p$  energija protona posle sudara, a  $\varphi$  je ugao rasejanja protona u odnosu na incidentni pravac neutrona. Protoni uzmaknuti pod manjim uglom imaju veću energiju i duži domet u detektoru. Najveću energiju dobijaju protoni u čeonom sudaru sa neutronom, kada preuzimaju svu raspoloživu energiju.

## 2. Formiranje tragova u CR-39 detektoru

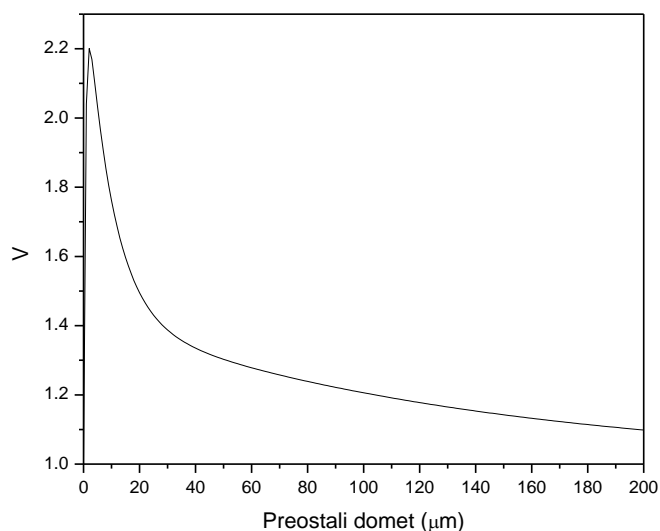
### 2.1. V funkcija protona u CR-39 detektoru

Formiranje tragova protona u CR-39 detektoru je određeno tzv., V funkcijom, koja je količnik  $V_t/V_b$ , gde je  $V_t$  brzina nagrizanja duž traga, a  $V_b$  je brzina nagrizanja

neoštećene površine detektora. Ova funkcija se obično izražava preko nezavisnog parametra  $R'$ , to jest preostalog dometa čestice u materijalu (rastojanje od tačke do koje je dospelo rastvor do krajnje tačke dometa čestice). Postoji veći broj publikovanih  $V$  funkcija za protone u CR-39, a ovde je prihvaćena u obliku<sup>[3]</sup>

$$V(R') = 1 + [A_1 e^{-A_2 R'} + A_3 e^{-A_4 R'}] \cdot [1 - e^{-A_5 R'}] \quad (2)$$

gde su  $A_1=0.4306$ ,  $A_2=7.3736 \times 10^{-3}$ ,  $A_3=1.0559$ ,  $A_4=0.1072$  i  $A_5=1.4120$ . Ova funkcija je čisto empirijska i dobijena je fitovanjem eksperimentalnih rezultata. Ne postoji dosledna teorija nagrizanja tragova koja bi omogućila određivanje funkcije  $V$ . Neki autori izražavaju funkciju  $V$  u zavisnosti od linearno prenete energije LET<sup>[4]</sup> (linear energy transfer) ili od ograničenog gubitka energije REL (restricted energy loss) pri čemu se kao granica uzima 350 eV; elektroni sa energijom iznad ove granice se ne uzimaju u obzir pri formiranju traga, jer usled velike energije odlaze daleko od traga ( $\delta$  elektroni). U ovom radu je uzeto da  $V$  funkcija zavisi od preostalog dometa  $R'$  jer je u računskom pogledu ovaj pristup povoljniji. Zavisnost  $V$  funkcije od preostalog dometa je prikazana na Slici 2.



**Slika 2. Zavisnost brzine nagrizanja  $V=V_t/V_b$  od preostalog dometa protona u detektoru CR-39**

Primećuje se slaba promena  $V$  za preostale domete veće od 50  $\mu\text{m}$ ; na primer, na 50  $\mu\text{m}$   $V=1.303$ , a na 100  $\mu\text{m}$  je 1.207. Za preostale domete veće od 200  $\mu\text{m}$ ,  $V$  je tek nešto veće od 1; npr., na 200  $\mu\text{m}$  iznosi 1.098. Ovako male vrednosti  $V$  znače da je efikasnost detektora za visokoenergetske protone vrlo niska, a da će formirani tragovi biti vrlo mali.

## 2.2. Domet protona u CR-39 detektoru

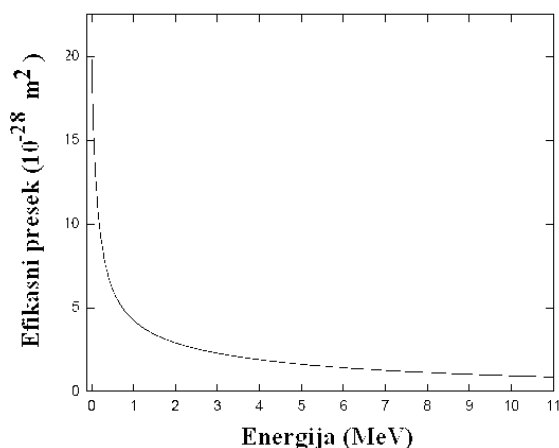
Domet protona u detektoru CR-39 kao funkcija energije protona, izračunat je primenom SRIM2008 programa<sup>[5]</sup>. Protoni imaju 4 puta manju masu i dva puta manje naelektrisanje u odnosu na alfa čestice i stoga znatno veći domet. Npr. protoni energije

5 MeV imaju domet od 279  $\mu\text{m}$  u CR-39, dok oni sa energijom 10 MeV imaju domet 951  $\mu\text{m}$ , što je uporedivo sa debljinom detektora od 1 mm.

### 2.3. Efikasni presek rasejanja neutrona na protonu

Da bi se obavila simulacija detekcije neutrona detektorom CR-39 potrebno je poznavati efikasne preseke za moguće reakcije neutrona sa atomima detektora i njihovu zavisnost od energije u razmatranom energetskom opsegu (do 10 MeV). Efikasni preseki za moguće reakcije neutrona u detektoru CR-39 su preuzeti iz biblioteke efikasnih preseka ENDF/B-VII<sup>[6]</sup>. Za ovaj rad najznačajniji je efikasni presek procesa rasejanja neutrona na protonu i njegova zavisnost od energije. Ova zavisnost je predstavljena na Slici 3.

Efikasni presek stvaranja uzmaknutih protona, dat na slici 3, jako opada sa porastom energije neutrona. Verovatnoća stvaranja uzmaknutih jezgara C i O (koja su konstituenti CR-39) takodje postoji, ali su njihovi dometi previše kratki da bi se formirao neki vidljivi trag. Na većim energijama postaju moguće ostale reakcije, kao što su neelastična pobudjenja jezgra detektorskog materijala i dr., koje su u konkurenciji sa stvaranjem uzmaknutih protona.



Slika 3. Efikasni presek elastičnog rasejanja neutrona na protonu ( $n, pn'$ )

### 3. Rezultati: karakteristike tragova uzmaknutih protona u CR-39 detektoru

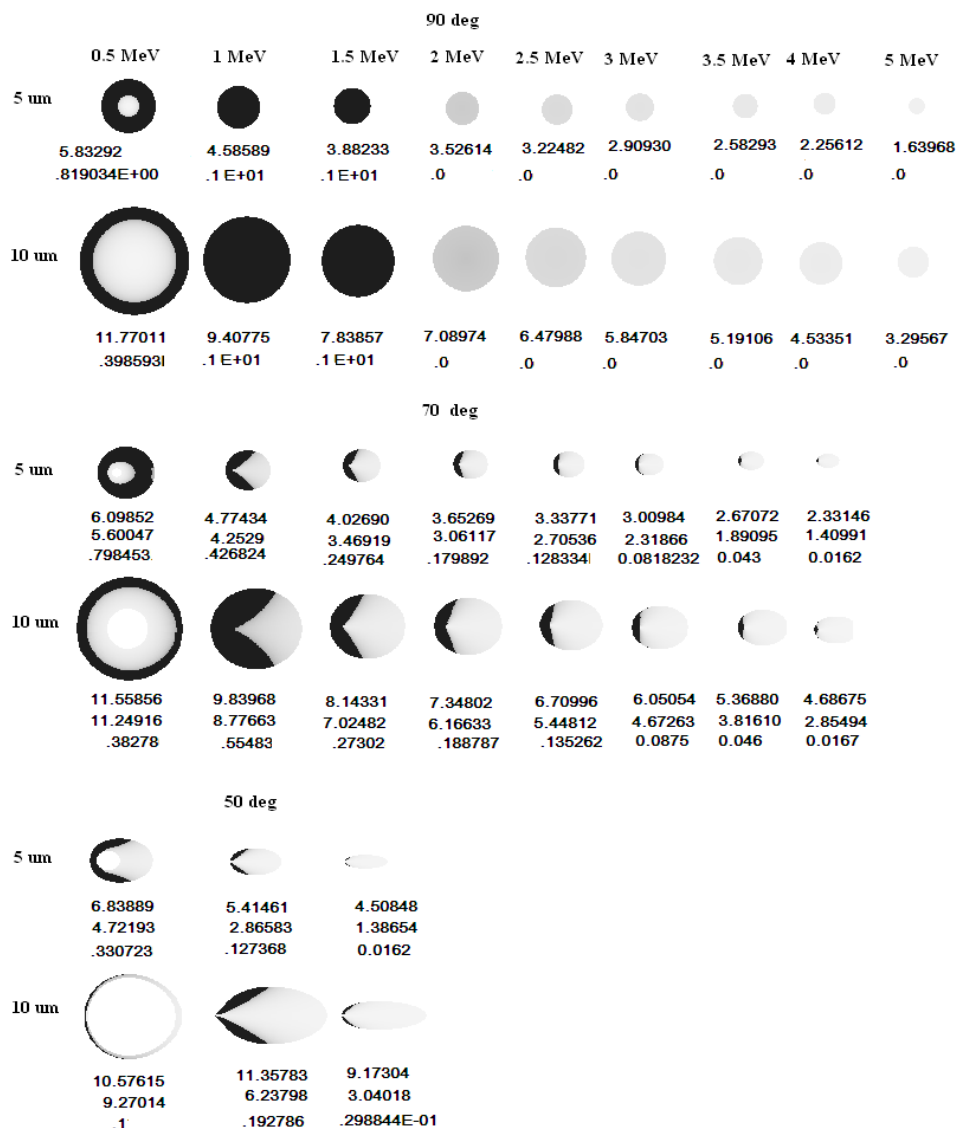
Relevantne informacije navedene u prethodnoj sekciji su iskorišćene za modifikaciju kompjuterskih programa TRACK\_TEST<sup>[6]</sup> i TRACK\_VISION<sup>[7]</sup> radi proučavanja karakteristika tragova uzmaknutih protona u CR-39 detektoru.

Programi TRACK\_TEST i TRACK\_VISION su razvijeni ranije za potrebe proučavanja tragova alfa čestica u ovom detektoru u cilju poboljšanja mernih tehnika radona i njegovih potomaka. Sada su ovi programi modifikovani tako da omogućuju dobijanje izgleda tragova protona stvorenih u interakciji sa neutronima u detektoru. Detaljan opis ovih programa je van opsega ovog rada i može se naći u navedenim referencama. Modifikovani program je nazvan TRACK\_P (trag protona). Svi programi su napisani u standardnom Fortran90 programskom jeziku, uključujući i grafičke predstave.

Primeri izgleda tragova protona izračunatih TRACK\_P programom su dati na Slici 4. Računanje je obavljeno za protonske incidentne uglove  $90^{\circ}$ ,  $70^{\circ}$  i  $50^{\circ}$ . Energije neutrona su varirane od 0.5 MeV do 5 MeV sa korakom od 0.5 MeV (dato na slici iznad traga).



Levo od tragova dat je uklonjen sloj za koji je račun obavljen, a ispod traga navedene su veličine: velika i mala poluosa otvora traga i deo traga koji je crn. Za  $90^{\circ}$  data je jedna vrednost za dijametar traga, jer su u ovom slučaju velika i mala pooluosa jednake. Druga brojka ispod traga za ugao od  $90^{\circ}$  predstavlja procenat traga koji je u crnoj boji. Crni deo traga se dobija usled totalne refleksije svetlosti na granici telo detektora - trag. Na ostalim uglovima, deo traga u crnoj boji je dat kao treća vrednost ispod traga. Pod uklonjenim slojem podrazumeva se efektivni uklonjeni sloj, kako je to objašnjeno u prethodnom tekstu.



Slika 4. Primeri izgleda izračunatih tragova uzmaknutih protona u CR-39 detektoru

#### 4. Diskusija i zaključak

Kako se može videti na Slici 4, uzmaknuti protoni stvaraju veoma različite tragove u detektoru CR-39. Analiza koja bi trebalo da dovede do određivanja energije protona i

ugla uzmarka je dodatno komplikovana potrebom poznavanja  $z_{\text{start}}$  tj.,  $h_{\text{eff}}$ . Pored toga, može se videti da protoni različitih energija (i uglova uzmarka) mogu stvoriti vrlo slične tragove. Zbog svega rečenog, potrebno je u analizi uzeti u obzir što veći broj parametara, kako bi neodređenost energije bila manja.

Jedna od mogućnosti je stvaranje „banke tragova“ u kojoj su smešteni podaci o velikom broju tragova, izračunati sistematskom promenom uglova uzmarka, energije i efektivnog uklonjenog sloja. Zatim bi se svaki trag dobijen u realnom eksperimentu poredio sa tragovima u banci i nalazio najbliži. Pored veličine, oblika, velike i male poluose traga, može se porediti i deo zacrnljenja, oblik zacrnljenja i dr. Na ovaj način moguće je odrediti energije protona nastalih uzmarkom u sudarima sa neutronima. Sledeći korak je dekonvolucija neutronskog spektra na osnovu određenog spektra neutrona. Postoji više programa za dekonvoluciju, ali su uglavnom napisani za spektrometre zasnovane na Bonerovim sferama i ovde bi bio potreban dodatan napor u razvoju softvera koji bi od tragova u CR-39 odredjivao neutronski spektar.

## 5. Literatura

- [1] F. Trompier, M. Boschung, A. Buffler, C. Domingo, E. Cale, M.-A. Chevallier, A. Esposito, M. Ferrarini, D. R. Geduld, L. Hager, E. Hohmann, S. Mayer, A. Musso, M. Romero-Esposito, S. Röttger, F. D. Smit, A. Sashala Naik, R. Tanner, F. Wissmann, and M. Caresana. A comparison of the response of PADC neutron dosimeters in high-energy neutron fields. *Radiat. Protect. Dosim.* 161 (1-4) (2014) 78-81.
- [2] D. Nikezic and K.N.Yu. Theoretical feasibility study on neutron spectrometry with the polyallyldiglicol carbonate (PADC) solid state nuclear track detector. *Nucl. Instr. Meth. A.* 771 (2015) 134-138.
- [3] D. Hermsdorf. Measurement and comparative evaluation of the sensitivity  $V$  for protons and hydrogen isotopes registration in PADC detectors of type CR-39. *Radiat. Meas.* 44 (2009) 806-812.
- [4] B. Dorschel, D. Hermsdorf, K. Kadner, S. Starke. Dependence of the etch rate ratio on the energy loss of light ions in CR-39. *Radiat. Meas.* 35 (2002) 287-292.
- [5] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, M.D. Ziegler. SRIM- the stopping and range of ions in matter. 2008. SRIM Co.
- [6] T-2 Nuclear Information Service. Available on web page. <http://t2.lanl.gov/>.
- [7] D. Nikezic and K.N. Yu. Computer program TRACK\_TEST for calculating parameters and plotting profiles for etch pits in nuclear track materials. *Comput. Phys. Commun.* 174 (2006) 160-165.
- [8] D. Nikezic, K.N. Yu. Computer program TRACK\_VISION for simulating optical appearance of etched tracks in CR-39 nuclear track detectors. *Comput. Phys. Commun.* 178 (2008) 591-595.

*Zahvalnica:* Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja, kroz projekat N<sub>0</sub> 171021

## THEORETICAL STUDY OF NEUTRON SPECTROMETRY WITH CR-39 DETECTOR

**Dragoslav NIKEZIĆ<sup>1</sup>, Biljana MILENKOVIĆ<sup>1</sup> and K. N. YU<sup>2</sup>**

1) *University of Kragujevac, Faculty of Science, Kragujevac, Serbia, [nikezic@kg.ac.rs](mailto:nikezic@kg.ac.rs),*

*[bmilenkovic@kg.ac.rs](mailto:bmilenkovic@kg.ac.rs),*

2) *City University of Hong Kong, Hong Kong, China*

*[peter.yu@cityu.edu.hk](mailto:peter.yu@cityu.edu.hk)*

### ABSTRACT

A computer program for studying of etched proton track in PADC detector was presented in this paper. Program was written in FORTRAN90 and provided graphical presentation of track profiles as well as visualization of track appearance as seen under optical microscope. Measurable track parameters were determined and displayed on the computer monitor. Application of this software in neutron dosimetry was demonstrated through the creation of a databank with a relative large number of tracks, which should be used to compare real track obtained in PADC after neutron irradiation. Several problems were identified, as: similar track could be obtained from protons with very different energies and incident angles; small detector efficiency for energies larger than 5 MeV etc.

# PROCENA PRISUSTVA NEUTRONA U NISKOFONSKIM GE-SPEKTROMETRIJSKIM SISTEMIMA BAZIRANA NA DETEKCIJI GAMA PIKA ENERGIJE OD 595.5 keV

**Nikola JOVANČEVIĆ, Brankica ANĐELIĆ, David KNEŽEVIĆ, Miodrag KRMAR i Jan HANSMAN**

*Departman za fiziku, Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Novi Sad, Srbija, nikola.jovancevic@df.uns.ac.rs*

## SADRŽAJ

*U ovom radu je prikazan način određivanja prisustva sporih i brzih neutrona u germanijumskim gama detektorskim sistemima baziran na detekciji gama pika energije od 595 keV. Gama fotoni ove energije mogu poticati od dva procesa, deekscitacije pobuđenog jezgra  $^{74}\text{Ge}$  nakon neelastičnog rasejanja neutrona i zahvata neutrona na jezgru izotopa germanijuma  $^{73}\text{Ge}$ . Zbog toga gama pik energije od 595 keV ima karakterističnu strukturu usled interferencije gama pika koji ima standardan gausovski oblik (prati zahvat neutrona) i karakteristične energetski asimaterične gama linije koja se detektuje usled neelastičnog rasejanja neutrona na jezgrima germanijuma. Da bi se analizirala mogućnost određivanja prisustva neutrona u Ge-spektrometrijskim sistemima korišenjem gama pika energije 595 keV izvršena je serija snimanja gama spektara pri čemu je izvor neutrona  $^{252}\text{Cf}$  bio postavljen u blizini detektora. Za analizu eksperimentalnih podataka u ovom radu je predstavljena procedura za fitovanje inteziteta ( $n, n'$ ) i interferirajućih gama pikova. Predstavljena procedura omogućuje određivanje razlike u broju detektovanih događaja indukovanih interakcijama sporih i brzih neutrona. Dobijeni rezultati upućuju na to da ovaj novi pristup može postati standardan za određivanje prisustva brzih i sporih neutrona u detektorskim sistema tokom gama spektroskopskih merenja.*

## 1. Uvod

Neutroni u interakcijama sa materijalima detektorskih sistema mogu proizvoditi merljivu gama aktivnost putem procesa zahvata i rasejanja. Tokom različitih niskofonskih ili promptnih aktivacionih neutronske merenja detekcija ovih događaja predstavlja često neželjeno pozadinsko zračenje [1,2,3,4]. Detektovani događaji koji prate neutronske reakcije interferiraju sa događajima čija je detekcija od interesa u datom merenju. Takav je slučaj u eksperimentima koji za cilj imaju detekciju retkih nuklearnih događaja kao što je dvostruki bezneutrinski beta raspad ili traganje za konstituentima tamne materije.

Eliminacija neutrona primenom različitih zaštita detektora nije u potpunosti moguća. Zbog toga je potrebno razviti metode koje će omogućiti tačno određivanje nivoa njihovog prisustva i na taj način dati mogućnost za procenu broja fonskih događaja indukovanih neutronima. Za tu svrhu se mogu koristiti detektovani intenziteti gama pikova koji se u snimljenim spektrima javljaju usled neutronske interakcije sa jezgrima materijala detektora, u ovom slučaju germanijuma. Do sada su za tu svrhu razvijeni metodi koji se zasnivaju na analizi detektovanih inteziteta gama pikova energije od 139.5 keV i 691 keV.

Gama pik energije od 139.5 keV se javlja u snimljenim spektrima usled raspada izomernog stanja  $^{75m}\text{Ge}$  nakon zahvata neutrona na jezgrima  $^{74}\text{Ge}$  i koristi se za

određivanje prisustva sporih neutrona [4] (pod kojima će se ovde podrazumevati neutroni sa energijama u termalnom i epitermalnom energetskom opsegu). Gama kvant energije od 691 keV se javlja nakon deekscitacije pobuđenog stanja  $^{71}\text{Ge}$  prateći neelastično rasejanje neutrona na ovom izotopu germanijuma, zato detektovani kvanti ove energije upućuju na prisustvo brzih neutrona. Međutim, studije čiji su rezultati prikazani u [2,7] upućuju na to da gama pik energije od 139.5 keV može poticati i od zahvata brzih neutrona. Takođe u istim studijama [2,7] je prikazano da se detektovani promptni gama pik energije od 595.5 keV nakon zahvata neutrona na jezgru  $^{73}\text{Ge}$  javlja jedino u slučaju značajnijeg prisustva termalnih neutrona u detektorskom sistemu [7]. Zbog toga je u ovom radu analizirana mogućnost korišćenja gama pika od 595.5 keV za određivanje prisustva sporih neutrona.

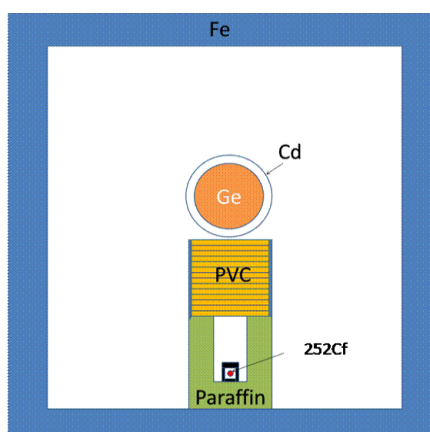
Problem koji se javlja prilikom ovakve analize je interferencija gama pikova na enegiji od 595.5 keV koji potiču od procesa zahvata i neelastičnog rasejanja. Ovaj pik ima strukturu koja nastaje sumiranjem standardnog gausovskog pika nakon zahvata neutrona i karakterističnog energetski asimetričnog pika koji prati neelastično rasejanje neutrona na izotopu germanijuma  $^{74}\text{Ge}$ . To je nametnulo neophodnost razvijanja procedure za dekonvoluciju inteziteta gama pikova koji potiču od zahvata i neelastičnog rasejanja. Treba napomenuti da je prednost ovoga pristupa mogućnost da se jedan jedini gama pik energije od 595.5 keV koristi za procenu prisustva i sporih i brzih neutrona.

Da bi se analizirale mogućnosti za procenu prisustva neutrona u niskofonskim gama spektrometrijskim sistemima u ovom radu je izvršeno snimanje gama spektra u slučaju kada je u blizini detektora bio postavljen  $^{252}\text{Cf}$  koji je izvor neutrona usled spontane fisije ovoga elementa. Između izvora neutrona i detektora su sukcesivno postavljane ploče od PVC plastike različite debljine. Usled usporavanja neutrona u ovom materijalu detektor je na taj način bio izložen različitim fluksevima neutrona. Analizirani su intenziteti neutronima indukovanih gama pikova za različite uslove merenja na osnovu čega su izvedeni zaključci o najpogodnijem metodu za procenu prisustva neutrona u Ge-spektrometrijskim sistemima.

## 2. Eksperimentalna postavka i merenja

Gama spektroskopska merenja su izvršena u Laboratoriji za nuklearnu fiziku, Departmana za fiziku, PMF, Novi Sad. Korišćen je HPGe detektor relativne efikasnost 22.3% koji je bio smešten u gvozdenoj zaštiti zidova debljine 25 cm i mase od oko 20 tona [2]. Zaštita je proizvedena od gvožđa izlivenog pre Drugog svetkog rata zbog čega ne sadrži radioaktivnu kontaminaciju pruzrokovanu nuklearnim probama i havarijama na nuklearnim postrojenjima.

Kao izvor neutrona korišćen je izvor  $^{252}\text{Cf}$  aktivnosti  $4.5 \cdot 10^3$  u  $4\pi$  sr. Između izvora i detektora su postavljane različite debljine PVC plastike što je prikazano na slici 1. Za svaku debljinu PVC-a izvršeno je snimanje gama spektara, takođe je snimljen i gama spektar kada je HPGe detektor bio okružen slojem kadmijuma debljine 1 mm za svaku debljinu PVC-a. Korišćene su debljine PVC plastike od 7 mm, 14 mm, 28mm, 45 mm, 68 mm i 93 mm. Snimljen je i gama spektar kada između detektora i izvora nije bila postavljena plastika. Cilj korišćenja PVC je bio da uspori i termalizuje neutrone čime bi detektor bio izložen različitim fluksevima neutrona. Na taj način je bilo moguće pratiti intenzitete gama linija germanijuma indukovanih neutronima pri različitim uslovima. Korišćenjem kadmijuma eliminisani su termalni neutroni što omogućava analizu uticaja zasebno sporih i brzih neutrona na intenzitete određenih gama pikova.



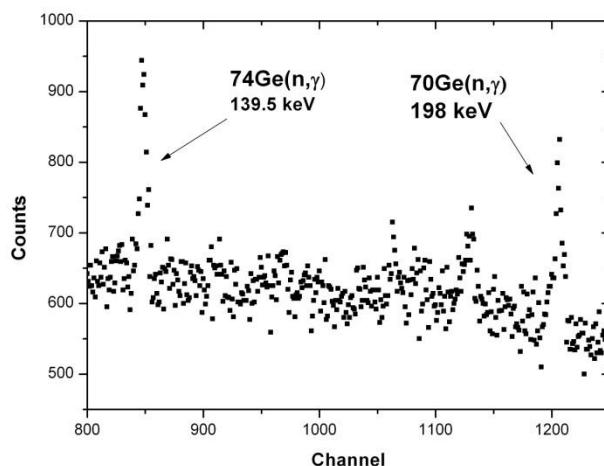
Slika 1. Eksperimentalna konfiguracija tokom merenja

### 3. Spektrometrijske informacije

U snimljenim gama spektrima detektovane su gama linije izotopa germanijuma koje potiču od neutronske interakcije. U tabeli 1 navede su detektovane energije tih gama linija, kao i reakcije od kojih potiču. Na slikama 2 i 3 prikazani su delovi snimljenih spektara u energetskim opsezima gde se zapažaju detektovane gama linije nakon zahvata i rasejanja neutrona. Posebno je interesantna struktura u energetskom opsegu oko 595.5 keV koja je prikazana na slici 3. Ova karakteristična struktura kao što je već rečeno ranije nastaje usled superpozicije gama pikova energije od 595.5 keV koji prate zahvat neutrona na izotopu  $^{73}\text{Ge}$  i neelastično rasejanje neutrona na jezgrima  $^{74}\text{Ge}$ . Uočeno je da je gausovski pik u ovoj strukturi, koji potiče od zahvata neutrona, znatno manjeg inteziteta ukoliko je oko detektora bio postavljen sloj kadmijuma. S obzirom da kadmijum absorbuje spore neutrone, ovaj rezultat je inicirao istraživanje mogućnosti korišćenja gama pika od 595.5 keV za određivanje prisustva sporih, tj. pre svega termalnih neutrona u Ge-spektrometrijskim sistemima.

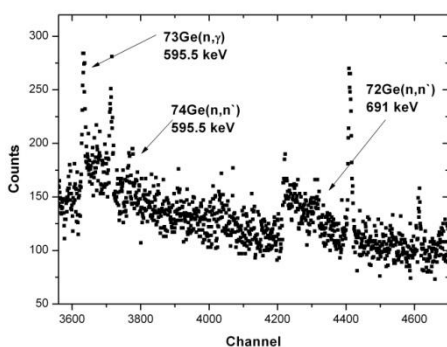
Tabela 1. Gama pikovi generisani neutronima koji su bili od interesa u ovom radu

Reakcija	Energija (keV)
$^{72}\text{Ge}(n,\gamma)$	66.7
$^{74}\text{Ge}(n,\gamma)$	139.5
$^{70}\text{Ge}(n,\gamma)$	174.9
$^{70}\text{Ge}(n,\gamma)$	198.7
$^{113}\text{Cd}(n,\gamma)$	558.4
$^{76}\text{Ge}(n,n')$	562.8
$^{74}\text{Ge}(n,n')$	595.5
$^{113}\text{Cd}(n,\gamma)$	651.1
$^{72}\text{Ge}(n,n')$	691.0
$^{72}\text{Ge}(n,n')$	834.0
$^1\text{H}(n,\gamma)$	2223

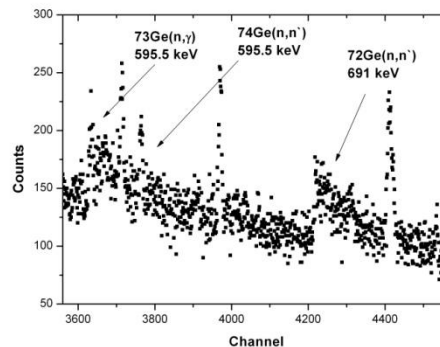


**Slika 2. Niskoenergetski deo snimljenog spektra u slučaju kada je između HPGe detektora i <sup>252</sup>Cf neutronskog izvora bio postavljen sloj PVC plastike debljine 68 mm**

a)



b)



**Slika 3. Struktura snimljenih spektara u energetske regionu oko 595.5 keV. a) 68 mm PVC između HPGe detektora i izvora neutrona; b) 68 mm PVC između HPGe detektora i izvora neutrona i sloj Cd debljine 1 mm oko HPGe detektora**

#### 4. Model za fitovanje gama pikova indukovanih neutronskim interakcijama

Strukture u snimljenim spektrima koje potiču od interferencije neutronima indukovanih (n,n') i (n,γ) pikova kao i fonskih gama linija su fitovani korišćenjem sledeće funkcije [5,6]:

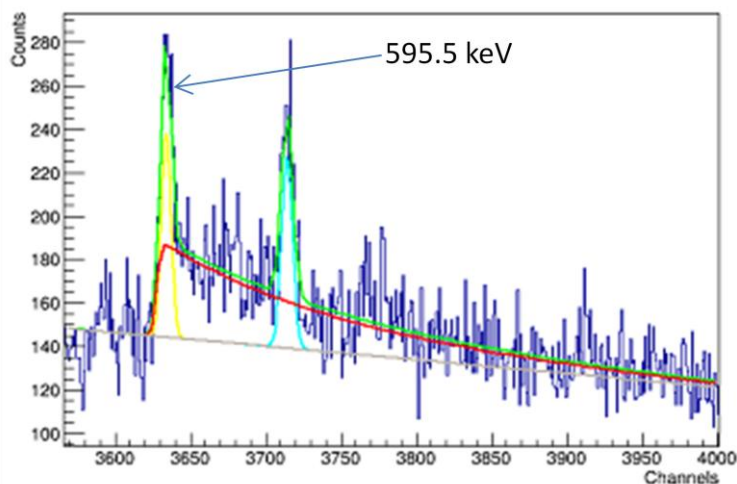
$$C(E) = a_0 \text{ERFC} \left[ -\frac{(E - E_0)}{\sigma_0} \right] \cdot \text{Exp} \left[ -\frac{(E - E_0)}{\Delta} \right] + \sum_{i=1}^n a_i \cdot \text{Exp} \left[ -\frac{1}{2\sigma_i^2} (E - E_i)^2 \right] + F \quad (1)$$

U gornjem izrazu ERFC funkcijom se opisuje porast fronta (n,n') gama pikova, dok drugi eksponencijalni član opisuje eksponencijalni rep linije. Funkcije pod sumom opisuju karakteristične gausovske pikove koji interferiraju sa (n,n') linijama a mogu

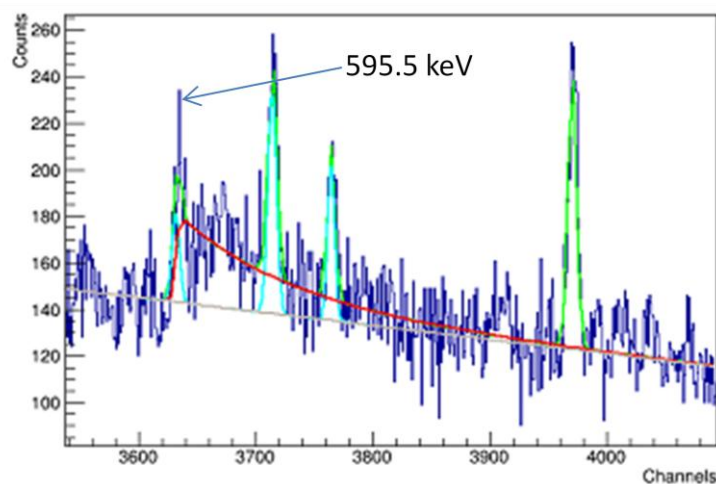
poticati kako i od  $(n,\gamma)$  reakcija tako i od fonskih događaja. Član F se odnosi na fonski kontinuum.

U ovom modelu promenljivi parametri su bili  $a_0$ ,  $a_i$ ,  $E_0$ ,  $\sigma_0$ ,  $\sigma_i$  i  $\Delta$ . Fitovanje gama pikova je izvršeno korišćenjem programskog paketa ROOT.

Modelom (1) fitovani su svi snimljeni gama spektri u energetske opsegu od 560 keV do 670 keV (Slika 4 i 5.). Takođe isti metod je korišćen i za fitovanje gama pika od 691 keV koji potiče od  $^{72}\text{Ge}(n,n')$  reakcije. Na osnovu rezultata fita određeni su intenziteti detektovanih neutronima indukovanih gama linija i izvršeno je njihovo poređenje prilikom različitih uslova merenja.



Slika 4. Deo gama spektra u energetske opsegu oko 595.5 keV  $\text{Ge}(n,n')$  gama pika u slučaju kada je bilo prisutno 68 mm PVC-a između detektora i izvora neutrona  $^{252}\text{Cf}$ . Linije na grafiku prikazuju rezultate fita za  $^{74}\text{Ge}(n,n')$ ,  $^{73}\text{Ge}(n,\gamma)$  i fonske gama pikove.



Slika 5. Deo gama spektra u energetske opsegu oko 595.5 keV  $\text{Ge}(n,n')$  gama pika u slučaju kada je bilo prisutno 68 mm PVC-a između detektora i izvora neutrona  $^{252}\text{Cf}$  i sloj kadmijuma oko detektora. Linije na grafiku prikazuju rezultate fita za  $^{74}\text{Ge}(n,n')$ ,  $^{73}\text{Ge}(n,\gamma)$  i fonske gama pikove.

## 5. Rezultati

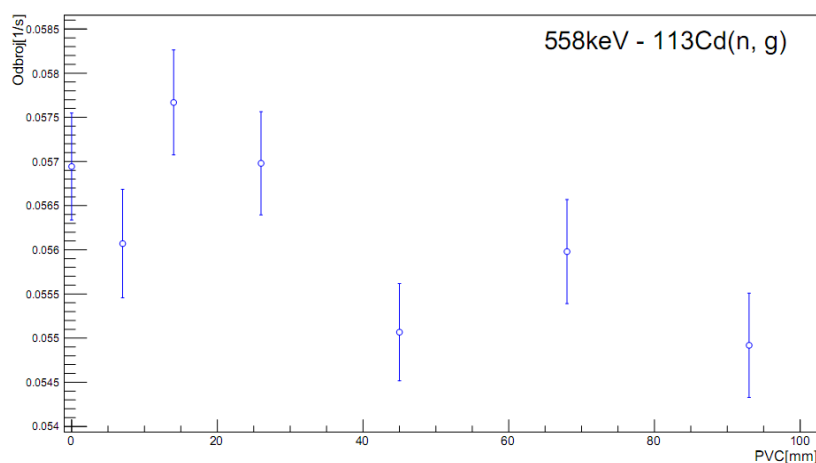
Obrađivanjem snimljenih gama spektara izračunati su intenziteti detektovanih gama linija i izvršeno je njihovo poređenje za različite konfiguracije tokom merenja. Na ovaj



način je utvrđeno kako su intenziteti određenih gama pikova indukovanih neutronima osetljivi na promene neutronskeg fluksa.

### 5.1. Detektovani intenziteti $Cd(n,\gamma)$ pikova

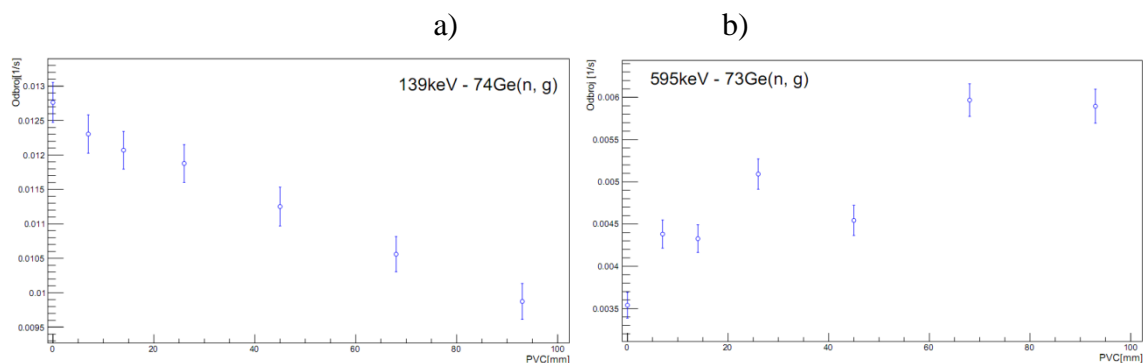
Detektovani intenziteti gama linije od 558 keV nakon reakcije  $^{113}Cd(n,\gamma)$  prikazani su na slici 6. Zapaža se da se intenzitet ove gama linije u okviru greške merenja ne menja značajno sa promenom debljine sloja PVC-a. S obzirom da je efikasni presek za  $^{113}Cd(n,\gamma)$  reakciju  $10^5$  puta veći za termalne neutrone nego za neutrone viših energija, detektovani intenziteti ove gama linije pokazuju na koji način se menja broj termalnih neutrona u detektorskom sistemu.



Slika 6. Detektovani intenziteti gama linije 558 keV  $^{113}Cd(n,\gamma)$  u zavisnosti od debljine PVC plastike

### 5.2. Detektovani intenziteti $Ge(n,\gamma)$ pikova

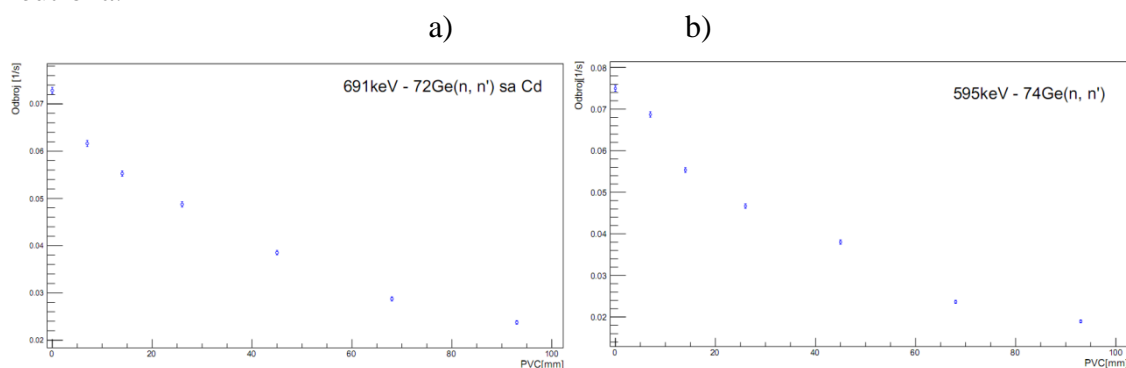
Na slici 7 prikazani su detektovani intenziteti gama linija 139.5 keV  $^{74}Ge(n,\gamma)$  i 595.5 keV  $^{73}Ge(n,\gamma)$  u zavisnosti od debljine PVC plastike između detektora i izvora neutrona  $^{252}Cf$ . Zapaža se smanjenje detektovanog intenziteta gama pika 139.5 keV  $^{74}Ge(n,\gamma)$  sa povećanjem debljine PVC plastike. Gama pik energije od 595.5 keV  $^{73}Ge(n,\gamma)$  prati drugačiji trend. Ovaj rezultat pokazuje da ove dve gama linije koje prate zahvat neutrona imaju drugačiji odziv pri istom neutronskeg fluksu.



Slika 7. Detektovani intenziteti gama linija: a) 139.5 keV  $^{74}Ge(n,\gamma)$  i b) 595.5 keV  $^{73}Ge(n,\gamma)$ , u zavisnosti od debljine PVC plastike

### 5.3. Detektovani intenziteti $Ge(n,n')$ pikova

Detektovani intenziteti 691 keV  $^{71}Ge(n,n')$  i 595.5 keV  $^{73}Ge(n,n')$  u zavisnosti od debljine PVC plastike su prikazani na slici 8. Uočava se da intenziteti ovih gama linija prate isti trend, opadaju sa povećanjem debljine PVC plastike. Dobijeni rezultat se može objasniti činjenicom da dodavanjem slojeva PVC-a usled usporavanja, termalizacije i apsorpcije neutrona u ovom materijalu sve manji broj brzih neutrona pogađa detektor te zbog toga dolazi i do smanjenja intenziteta ovih gama pikova koji prate interakcije brzih neutrona.



Slika 8. Detektovani intenziteti gama linija: a) 691 keV  $^{71}Ge(n,n')$  i b) 595 keV  $^{73}Ge(n,n')$ , u zavisnosti od debljine PVC plastike.

## 6. Zaključak

Rezultati dobijeni obradom sakupljenih spektara u ovom radu pokazuju da intenziteti  $Ge(n,n')$  gama pikova koji potiču od interakcija brzih neutrona opadaju sa povećanjem debljine sloja PVC plastike između detektora i izvora neutrona (slika 8). Ovaj rezultat je bio očekivan s obzirom da je PVC plastika materijal koji dobro usporava i absorbira neutrone. Takođe, isti trend promene intenziteta koji pokazuju gama linije 595.5 keV  $^{73}Ge(n,n')$  i 691 keV  $^{71}Ge(n,n')$  (slika 8) upućuje na to da je dekonvolucija gama pikova u energetskom regionu oko 595.5 keV urađena na zadovoljavajući način. Sa slike 7 se međutim može videti da promene intenziteta dve  $Ge(n,\gamma)$  gama linije imaju različite trendove promene intenziteta u zavisnosti od promene neutronskog fluksa. Intenzitet gama linije 139.5 keV  $^{74}Ge(n,\gamma)$  opada na isti način kao intenzitet  $Ge(n,n')$  gama pikova, dok je promena intenziteta gama pika 595.5 keV  $^{73}Ge(n,\gamma)$  sličnija načinu promene intenziteta gama linije 558 keV  $^{113}Cd(n,\gamma)$  koja u potpunosti nastaje usled zahvata sporih neutrona (slika 6). Na osnovu ovoga možemo zaključiti da gama prelaz od 139.5 keV  $^{74}Ge(n,\gamma)$  mogu indukovati kako spori tako i brzi neutroni što je i pretpostavljeno u studiji [2]. S druge strane rezultati pokazuju da se gama pik od 595.5 keV  $^{73}Ge(n,\gamma)$  pojavljuje u snimljenim spektrima dominantno usled prisustva sporih neutrona. Ovde izvršena analiza upućuje na to da gama pik od 595.5 keV može biti deo standardne procedure za određivanje prisustva neutrona u niskofonskim Ge-spektrometrijskim uređajima. Dobijeni podaci pokazuju da ovaj pik nakon dekonvolucije (n,n') i (n, $\gamma$ ) gama linija može dati pouzdane informacije o interakcijama kako sporih tako i brzih neutrona. Treba napomenuti da fitovanje (n,n') daje mogućnost i za određivanje neutronske temperature, što će biti deo budućih analiza.

## 7. Literatura

[1] G. Heusser, Cosmic ray interaction study with low-level Ge-spectrometry, *Nucl. Instr. and Meth. A* 369 (1996) 539.

- [2] N. Jovancevic, M. Krmar, D. Mrda, J. Slivka, I. Bikit, Neutron induced background gamma activity in low-level Ge-spectroscopy systems, *Nucl. Instr. and Meth. A* 612 (2) (2010) 303–308.
- [3] N. Jovancevic, M. Krmar, Neutrons in the low-background Ge-detector vicinity estimated from different activation reaction, *Appl. Radiat. Isot.* 69(3) (2011) 629–635.
- [4] G.P. Skoro, I.V. Anicin, A.H. Kukoc, Dj. Krmpotic, P. Adzic, R. Vukanovic, M. Zupancic, Environmental neutron as seen by germanium gamma-ray spectrometer, *Nucl. Instr. Meth. A* 316 (1992) 333-336.
- [5] T. Siiskonen, H. Toivonen, A model for fitting peaks induced by fast neutrons in a HPGe detector, *Nucl. Instr. Meth. A* 540 (2005) 403-411.
- [6] E. Gete, D.F. Measday, B.A. Moftah, M.A. Saliba, T. J. Stocki, Dependence on neutron energy of neutron induced peaks in Ge detectors. TRI-PP-96-10, 1996.
- [7] M. Krmar, J. Hansman Jan, N. Jovancevic, N. Lalovic, J. Slivka, D. Jokovic, D. Maletic, A method to estimated a contribution of Ge(n,n') reaction to the low-energy part of gamma spectra of HPGe detectors, *Nucl. Instr. Methods Phys. Res. A* 709 (2013) 8-11.

**ESTIMATION OF NEUTRON PRESENCE IN THE LOW-LEVEL  
BACKGROUND Ge-SPECTROSCOPY SYSTEMS BASED ON DETECTED  
INTENSITY OF 595.5 keV GAMMA PEAK**

**Nikola JOVANČEVIĆ, Brankica ANĐELIĆ, David KNEŽEVIĆ, Miodrag  
KRMAR and Jan HANSMAN**

*Faculty of Science, Novi Sad, Serbia*

The reduction of neutron induced background effects is very important in different types of low background gamma measurements such as the dark matter search experiments, the rare nuclear events research or the measurements of a low level environmental activity. Thus, there is a high interest for development of the methods for estimation of a level of neutron presence in the Ge-spectroscopy systems during the low-level background gamma measurements. In this work we propose the method for determination of both fast and thermal neutron flux based on the detected intensity of the 595.5 keV gamma peak. Gamma quanta having this energy can be emitted through a prompt de-excitation of the  $^{74}\text{Ge}$  nuclei following two different processes, the slow neutron captures on the  $^{73}\text{Ge}$  and the inelastic neutron scattering on the  $^{74}\text{Ge}$ . This is the reason why this gamma peak in collected gamma spectra has characteristic structure due to summing of a standard Gaussian shape line from capture reaction and a long tail line following neutron inelastic scattering on the Ge nuclei inside detector. To investigate the possibility for using the 595.5 keV  $^{74}\text{Ge}$  gamma peak we did the measurements with the  $^{252}\text{Cf}$  fission neutron source. For analysis of experimental data we presented the procedures for fitting the intensity of the 595.5 keV gamma peak. By this way it is possible to distinguish detected counts from interaction of thermal and fast neutrons. The obtained results were compared with the results from the established technique. The results suggest that this new method can be used as a standard for the determination of slow and fast neutron flux during low background gamma measurements.

## DVOSTRUKE KOINCIDENCIJE GAMA ZRAKA IZ RASPADA $^{152}\text{Eu}$ – POČETNA ISTRAŽIVANJA NA SPEKTROMETRU PRIPJAT

**Nevenka M. ANTOVIĆ<sup>1</sup>, Sergej K. ANDRUHOVIČ<sup>2</sup> i Nikola R. SVRKOTA<sup>3</sup>**

1) Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet Crne Gore, Podgorica, Crna Gora, nenea@rc.pmf.ac.me

2) Institut za fiziku, Akademija nauka Bjelorusije, Minsk, Bjelorusija

3) Centar za ekotoksikološka ispitivanja, Podgorica, Crna Gora

### SADRŽAJ

Pošto postoji 148 gama zraka iz raspada  $^{152}\text{Eu}$  (deekscitacija potomaka  $^{152}\text{Sm}$  i  $^{152}\text{Gd}$ ), od kojih 14 ima relativni intenzitet  $>1\%$ , a 7 – relativni intenzitet  $>10\%$ , razmatrana je mogućnost njihove koincidentne detekcije. Mnogi od ovih zraka su u dvostrukoj kaskadi sa 122 keV ( $^{152}\text{Sm}$ ) ili 344 keV ( $^{152}\text{Gd}$ ). Početna istraživanja dvostrukih koincidencija gama zraka iz raspada  $^{152}\text{Eu}$ , izvršena na spektrometru PRIPJAT (visokoosjetljivi šest-detektorski sistem,  $0.7 \times 4\pi$  sr, vrijeme rezolucije koincidencija – 40 ns), pokazala su da je razvoj koincidentnog metoda mjerenja ovog izotopa moguć u energetskom opsegu od 200 keV do 2000 keV, i da primarno treba da bude zasnovan na registraciji gama zraka energije 344 keV. Pri deekscitaciji  $^{152}\text{Gd}$  najintenzivnije dvostruke kaskade su one s istim drugim prelazom – sa pobuđenog nivoa energije 344.28 keV do osnovnog stanja  $^{152}\text{Gd}$ , relativnog intenziteta  $I_\gamma = 26.5\%$ , tj. svaki od četiri intenzivna gama zraka koji slijede  $\beta$ -raspad  $^{152}\text{Eu}$  je u dvostrukoj kaskadi s njim: 778.9 keV (12.9%), 411.12 keV (2.23%), 1089.74 keV (1.73%), 1299.14 keV (1.62%). Iako otežana, moguća je i detekcija zraka 245 keV (između dva pobuđena nivoa  $^{152}\text{Sm}$ : 366.48 keV i 121.8 keV), relativnog intenziteta 7.58%, prisutnog u dvostrukim kaskadama, ne samo sa 122 keV (28.58%), već i sa 867.37 keV (4.25%) i 443.96 keV (2.82%).

### 1. Uvod

Izotop europijuma  $^{152}\text{Eu}$  dezintegriše se (EZ i  $\beta^+$ ) do  $^{152}\text{Sm}$  (72.1%), ali i do  $^{152}\text{Gd}$  putem  $\beta^-$ -raspada (27.9%), sa periodom od 13.54 godine [1]. Neke od fundamentalnih karakteristika ovog izotopa (jezgra) izmjerene su pedesetih godina prošlog vijeka, kao što su spin i magnetni moment, ali i pozitronski spektri, gama zračenja (na primjer, [2-5]), itd. Osim poluprovodničkih gama spektrometara korišćenih za određivanje aktivnosti  $^{152}\text{Eu}$ , i scintilacioni spektrometri su upotrijebljeni za različita mjerenja ovog izotopa, kao i pojedini koincidentni metodi (na primjer, [6]), uključujući koincidentne metode primijenjene na  $4\pi$  spektrometre [7-8].

U ovom radu prezentovani su spektri dvostrukih koincidencija gama zraka iz raspada navedenog izotopa, dobijeni pomoću višedetektorskog spektrometra PRIPJAT [9]. Naime, šest-detektorski  $4\pi$  gama spektrometri tipa PRIPJAT, konstruisani na Institutu za fiziku Akademije nauka Bjelorusije u Minsku (jedan od njih, PRIPJAT-2M, nalazi se na Prirodno-matematičkom fakultetu Univerziteta Crne Gore u Podgorici), imaju relativno visoku efikasnost registracije gama zračenja i dobru osjetljivost (pogotovu u koincidentnim režimima rada), a dozvoljavaju i mjerenja uzoraka različite prirode i oblika, bez prethodne specijalne pripreme uzoraka i kalibracionih mjerenja za različite njihove geometrije.

Analize gama zračenja iz raspada  $^{152}\text{Eu}$  u spektrima koincidencija započete su u Podgorici prije nekoliko godina, a nastavljene u Minsku (jer se spektrometar u

Podgorici nalazi u fazi modifikacije), i ovdje predstavljeni rezultati su oni početni – u razvoju koincidentnog metoda mjerenja ovog izotopa na višedetektorskim spektrometrima gama koincidencija.

## 2. Spektrometri tipa PRIPJAT

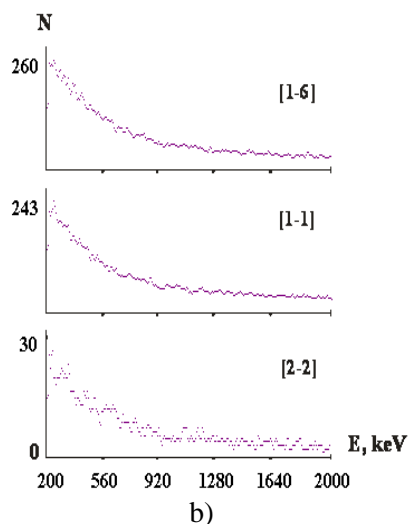
Spektrometarski  $4\pi$  sistemi tipa PRIPJAT [9] sastoje se od šest NaI(Tl) detektora (15 cm x 10 cm), čelične i olovne pasivne zaštite, elektro-motora, i CAMAC elektronike. Standardni softver koji se koristi za analizu spektara nazvan je PRIP. Masa sistema je 4200 kg, a dimenzije su 250 cm x 145 cm x 186 cm (spektrometar PRIPJAT-2M prikazan je na slici 1a). Geometrija mjerenja je blizu  $4\pi$ , tj. približno  $0.7 \times 4\pi$  sr, a vrijeme rezolucije koincidencija iznosi 40 ns. Energetska rezolucija za liniju 662 keV ( $^{137}\text{Cs}$ ) je 10.5 %, a što se tiče mrtvog vremena – ono zavisi od aktivnosti uzorka (u slučajevima mjerenja fona ne prelazi 1 %).

Softver PRIP dozvoljava kalibraciju (energija-kanal, fotoefikasnost-energija, totalna efikasnost detekcije-energija), odabir koincidentnog režima i energetskeg opsega, snimanje i analizu spektara, oduzimanje odgovarajućeg fona za svaki pojedinačno detektor, prije sumiranja individualnih spektara, automatsku kontrolu svih operacija, itd. Dostupni režimi rada su spektrometrijski i radiometrijski, a u okviru prvog – integralni, ([1-6]), nekoincidentni ([1-1]) i koincidentni režimi višestrukosti od 2 do 6 ([2-2]...[6-6]; [2-6]).

Ukupna brzina brojanja fona, u oblasti od 200 keV do 2000 keV (od kanala 2 do kanala 255), na spektrometru PRIPJAT-2M, bila je 33.8 imp/s u integralnom režimu [1-6], 28.4 imp/s u nekoincidentnom spektru [1-1], kao i 3.6 imp/s u spektru dvostrukih koincidencija [2-2]. Sumarni spektri u navedenim režimima rada spektrometra, za realno vrijeme mjerenja od 500 s (mrtvo vrijeme: 0.4 % – u integralnom, i 0.3 % – u nekoincidentnom i režimu dvostrukih koincidencija), prikazani su na slici 1b.



a)



b)

**Slika 1. Fotografija spektrometra PRIPJAT-2M sa otvorenom detekcionom komorom u koju se mogu smjestiti uzorci zapremine do  $5 \text{ dm}^3$  (a), fonski spektri u različitim režimima rada (b)**

Uz prethodno razvijane metode mjerenja prirodnih radionuklida i njihovih produkata raspada (na primjer, [10]), modifikacije datog spektrometarskog sistema i pratećeg

softvera treba da omoguće razvoj koincidentnih metoda mjerenja i drugih radionuklida, kao što su  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ , itd.

### 3. Spektri $^{152}\text{Eu}$

#### 3.1. Šema raspada $^{152}\text{Eu}$ – selekcija dvostrukih kaskada gama zraka

Kao što je gore rečeno,  $^{152}\text{Eu}$  se raspada do  $^{152}\text{Sm}$  (72.1 %) kao i do  $^{152}\text{Gd}$ , a gama zraka koji prate navedene raspade ukupno je 148. Među njima, 14 ima intenzitete iznad 1 % (tabela 1) [1]. Od posebnog interesa je razmotriti mogućnost detekcije zraka intenziteta iznad 10 %, pomoću spektrometara tipa PRIPJAT – u integralnom, nekoincidentnom i režimu dvostrukih koincidencija.

Analize deekscitacija  $^{152}\text{Sm}$  i  $^{152}\text{Gd}$  pokazuju da su intenzivnije dvostruke kaskade gama zraka one koje su predstavljene na slici 2.

**Tabela 1. Gama zraci iz raspada  $^{152}\text{Eu}$ , intenziteta iznad 1 %**

$E_\gamma$ , keV	$E_{\text{nivoa}}$ , keV	$I_\gamma$ , %	Tip raspada
121.7817	121.7817	28.58	EZ, $\beta^+$
344.2785	344.2789	26.5	$\beta^-$
1408.006	1529.794	21.005	EZ, $\beta^+$
964.079	1085.883	14.605	EZ, $\beta^+$
1112.069	1233.855	13.644	EZ, $\beta^+$
778.904	1123.185	12.942	$\beta^-$
1085.869	1085.883	10.207	EZ, $\beta^+$
244.6975	366.4795	7.583	EZ, $\beta^+$
867.373	1233.855	4.245	EZ, $\beta^+$
443.965	810.453	2.821	EZ, $\beta^+$
411.1163	755.3958	2.234	$\beta^-$
1089.737	1434.02	1.727	$\beta^-$
1299.14	1643.409	1.623	$\beta^-$
1212.948	1579.432	1.422	EZ, $\beta^+$

Intenzivne dvostruke kaskade gama zraka iz raspada  $^{152}\text{Eu}$  do  $^{152}\text{Sm}$  (slika 2a) su 1408.01 keV + 121.78 keV, 964.08 keV + 121.78 keV, 1112.07 keV + 121.78 keV, 244.70 keV + 121.78 keV;

i

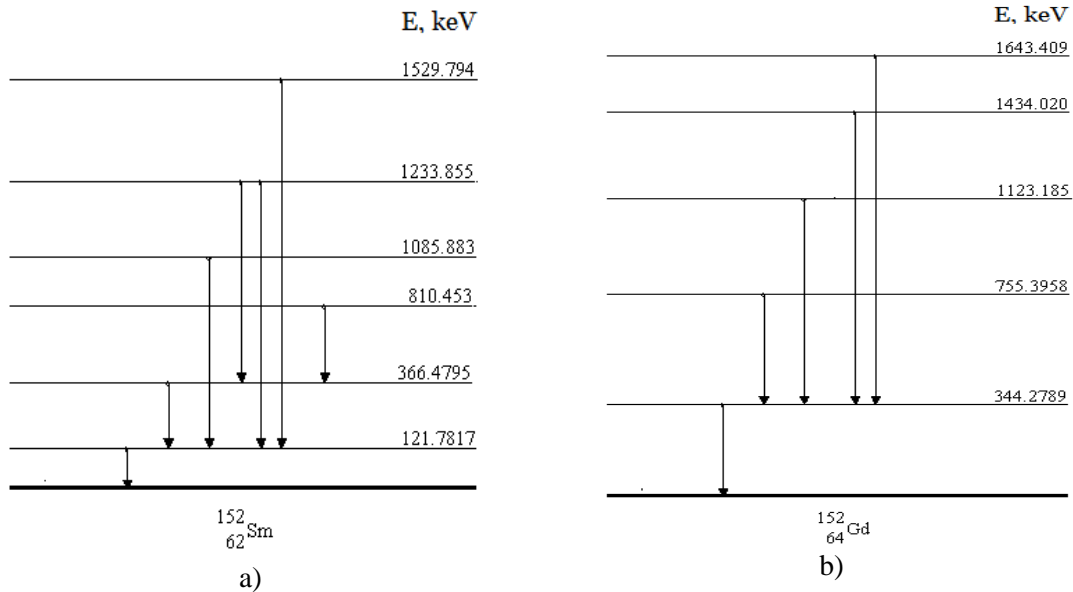
867.37 keV + 244.70 keV, 443.96 keV + 244.70 keV.

S druge strane, pri deekscitaciji  $^{152}\text{Gd}$  (slika 2b), najintenzivnije dvostruke kaskade su one s istim drugim prelazom – sa pobuđenog nivoa energije 344.28 keV do osnovnog stanja  $^{152}\text{Gd}$ , relativnog intenziteta  $I_\gamma = 26.5$  %, tj. svaki od četiri intenzivna gama zraka koji slijede  $\beta^-$ -raspad  $^{152}\text{Eu}$  (tabela 1) je u dvostrukoj kaskadi sa ovim gama zrakom:

778.90 keV + 344.28 keV, 411.12 keV + 344.28 keV, 1089.74 keV + 344.28 keV, 1299.14 keV + 344.28 keV,

što ih čini pogodnim za detekciju spektrometrom PRIPJAT u koincidentnom režimu rada.

Treba napomenuti da, kako je izabrani energetski opseg od 200 keV do 2000 keV, zrak energije 121.78 keV ne može biti detektovan, a otežana je i pouzdana analiza pika koji potiče od zraka energije 244.7 keV.



**Slika 2. Intenzivnije dvostruke kaskade gama zraka pri deekscitaciji  $^{152}\text{Sm}$  (a) i  $^{152}\text{Gd}$  (b)**

U početnim istraživanjima koincidentnih spektara  $^{152}\text{Eu}$ , korišćen je kvazitačkasti standard/izvor (No. 286-07, *Czech Metrology Institute*, aktivnosti 607.3 kBq, specificirane 25. septembra 1998. godine) koji se čuva u plastičnoj kutiji dijametra 6.5 cm i visine 2 cm.

### 3.2. Početna eksperimentalna istraživanja

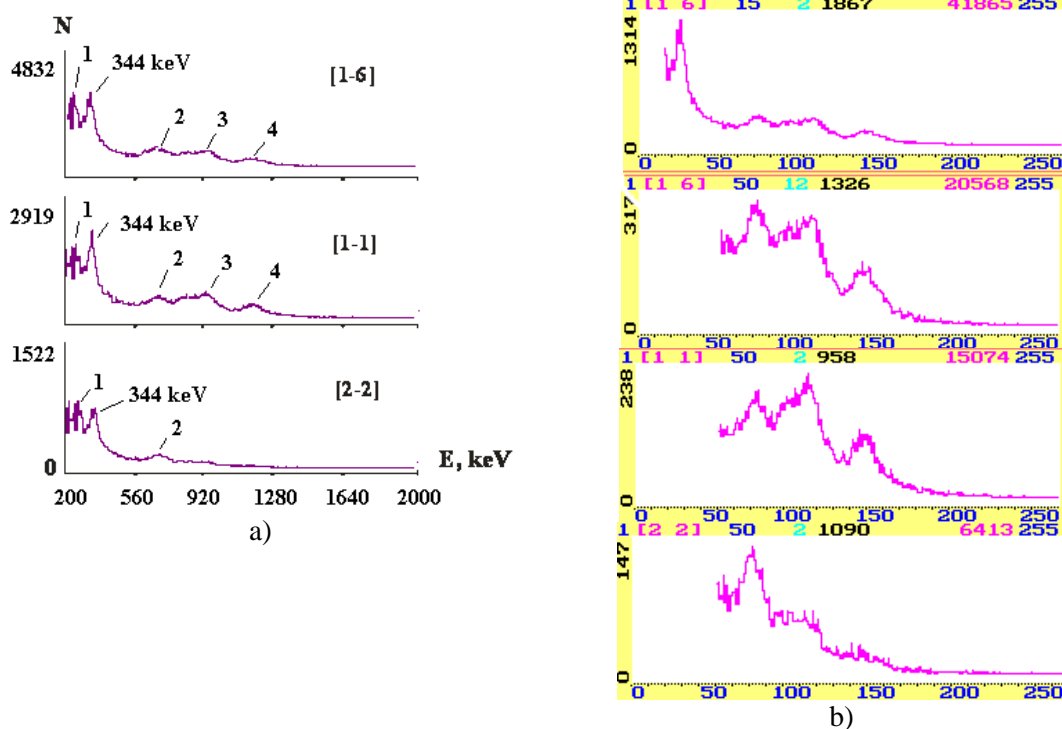
Eu-152 izvor postavljen je u centar detekcione komore spektrometra PRIPJAT-2M i mjereno tokom različitih realnih vremena mjerenja. Ilustracija sumarnih spektara dobijenih za 500 s (zbog visoke aktivnosti, mrtvo vrijeme je bilo čak 93.2 % u integralnom ([1-6]), kao i 92.7 % – u nekoincidentnom ([1-1]) i režimu dvostrukih koincidencija ([2-2])), u energetskom opsegu od 200 keV do 2000 keV (kanali: 2-255), data je na slici 3a.

Ukupno, u integralnom sumarnom spektru, registrovano je 431 621 odbroja, dok je u fonskom spektru bilo 16 833 odbroja. U nekoincidentnom i sumarnom spektru dvostrukih koincidencija  $^{152}\text{Eu}$  ukupan broj odbroja bio je 285 107 i 110 783, respektivno, a u fonskim spektrima – 14 198 i 1824 odbroja, respektivno.

Zbog jasnije prezentacije svih pikova, uključujući regione označene kao 2, 3 i 4, na slici 3b su dati zumirani spektri (zaključno sa kanalom 255) sa jednog od detektora, u različitim režimima rada.

Region 1 predstavlja registraciju zraka energije 245 keV (tj., 244.6975 keV) iz deekscitacije  $^{152}\text{Sm}$ , a moguć je i doprinos odbroja koji potiču od komptonskog rasijanja zraka većih energija (iz gama raspada  $^{152}\text{Gd}$ , na primjer), što treba da bude predmet daljih analiza.

Region 2 najvjerojatnije predstavlja registraciju zraka energije 779 keV (tj., 778.904 keV), uz eventualne doprinose sume kaskadnih gama zraka (443.96 keV + 244.70 keV – iz deekscitacije  $^{152}\text{Sm}$ , i 411.12 keV + 344.28 keV – iz deekscitacije  $^{152}\text{Gd}$ ), dok je region 3 ustvari registracija zraka energije 964 keV (tj., 964.079 keV) iz deekscitacije  $^{152}\text{Sm}$  (takođe moguće dopunjena komptonским rasijanjem zraka većih energija).



**Slika 3. Eu-152 spektri u integralnom, nekoincidentnom i režimu dvostrukih koincidencija (a) i zumirani spektar Eu-152 u različitim režimima rada detektora (b)**

Gama zrak energije 1112 keV (tj., 1112.069 keV) registrovan je u regionu 4. Ovaj pik, moguće je, takođe uključuje i sumu kaskadnih gama zraka (867.37 keV + 244.70 keV). Svaka od navedenih pretpostavki treba da bude provjerena u daljem istraživanju. Predstavljani spektri pokazuju da razvoj koincidentnog metoda mjerenja  $^{152}\text{Eu}$  treba da počiva na registraciji dvostrukih koincidencija gama zraka energije 344 keV, uz određenja efikasnosti registracije u tom, ali i u integralnom i nekoincidentnom režimu, i eventualno razmatranje trostrukih koincidencija. Takođe, neophodno je provjeriti i minimalne detektibilne aktivnosti – da bi se odredio optimalni režim rada.

#### 4. Zaključak

Početna istraživanja pokazala su da je razvoj koincidentnog metoda mjerenja  $^{152}\text{Eu}$  moguć, a karakteristike spektrometara tipa PRIPJAT dozvoljavaju i mjerenja uzoraka različite prirode i oblika, bez prethodne pripreme uzoraka i kalibracionih mjerenja za različite njihove geometrije, što bi trebalo da obezbijedi prednosti u odnosu na standardne metode mjerenja aktivnosti ovog radionuklida.

**Zahvalnica:** Istraživanja su sprovedena u okviru projekta koji finansira Ministarstvo nauke Crne Gore (01-683).

#### 5. Literatura

- [1] R. B. Firestone and L. P. Ekström. LBNL Isotopes Project – LUNDS Universitet, WWW table of radioactive isotopes, version 2.1 (1999).
- [2] M. Abraham, R. Kedzie, C. D. Jeffries. Spin and magnetic moment of  $\text{Eu}^{152}$  and  $\text{Eu}^{154}$  by paramagnetic resonance. *Phys. Rev.* 108 (1957) 58-59.



- [3] D. E. Alburger, S. Offer, M. Goldhaber. Positron spectra of  $\text{Eu}^{152}$  and  $\text{Eu}^{152\text{m}}$ . *Phys. Rev.* 112 (1958) 1998-2003.
- [4] B. S. Dželepov and N. N. Zhukovsky. On the gamma spectra of  $\text{Ag}^{110}$ ,  $\text{Sb}^{124}$  and  $\text{Eu}^{152,154}$ . *Nucl. Phys.* 6 (1958) 655-668.
- [5] O. Nathan and S. Hultberg. Measurements of the  $\gamma$ -radiations from  $\text{Eu}^{152}$  by the method of external conversion. *Nucl. Phys.* 10 (1959) 118-134.
- [6] E. T. Patronis and H. Marshak. Low-energy capture gamma rays of  $\text{Eu}^{152}$  and  $\text{Eu}^{154}$ . *Phys. Rev.* 115 (1959) 1287-1289.
- [7] S. Baba, S. Ichikawa, T. Sekine, I. Ishikawa, H. Baba. A method for determination of the  $^{152}\text{Eu}$  activity. *Nucl. Instr. and Meth.* 203 (1982) 273-280.
- [8] S. Baba, S. Ichikawa, K. Gunji, T. Sekine, H. Baba, T. Komori. The half-life of  $^{152}\text{Eu}$ . *Inter. J. Appl. Radiat. Isot.* 34 (1983) 891-892.
- [9] S. K. Andruhovič, A. V. Berestov, A. V. Gutko, A. M. Hilmanovič. Visokoosjetljivi višedetektorski gama spektrometri PRIPJAT. *Preprint Instituta za fiziku Akademije nauka Bjelorusije*, Minsk, 1995 (na ruskom jeziku).
- [10] N. Antovic and N. Svrkota. Measuring the radium-226 activity using a multidetector  $\gamma$ -ray coincidence spectrometer. *J. Environ. Radioact.* 100 (2009) 823-830.

## DOUBLE COINCIDENCES OF GAMMA RAYS FROM $^{152}\text{Eu}$ DECAY – INITIAL RESEARCH ON PRIPYAT SPECTROMETER

**Nevenka M. ANTOVIĆ<sup>1</sup>, Sergei K. ANDRUHOVICH<sup>2</sup> and Nikola R. SVRKOTA<sup>3</sup>**

*1) Faculty of Natural Sciences and Mathematics, University of Montenegro, Podgorica*

*2) Institute of Physics, Academy of Sciences, Minsk, Belarus*

*3) Centre for Ecotoxicological Research, Podgorica, Montenegro*

### ABSTRACT

Because there are 148 gamma rays from  $^{152}\text{Eu}$  decay (de-excitations of its products  $^{152}\text{Sm}$  and  $^{152}\text{Gd}$ ), of which 14 have relative intensity  $>1\%$ , and 7 – relative intensity  $>10\%$ , the possibility of their coincidence detection has been considered. Many of these rays are in two-step cascade transitions with 122 keV ( $^{152}\text{Sm}$ ) or 344 keV ( $^{152}\text{Gd}$ ). Initial research on the double coincidences of gamma rays from  $^{152}\text{Eu}$  decay, performed on the PRIPYAT spectrometer (high-sensitive six-detector system,  $0.7 \times 4\pi$  sr, resolution time for coincidences – 40 ns), has shown that the development of a coincidence method for this isotope measurement is possible in the energy range from 200 keV to 2000 keV, and should be primary based on the registration of the 344 keV gamma ray. In the  $^{152}\text{Gd}$  de-excitation, the most intense two-step cascades are those with the same second transition – from the excited level 344.28 keV to the ground state of  $^{152}\text{Gd}$ , with a relative intensity  $I_\gamma = 26.5\%$ , i.e., each of four intense gamma rays following  $\beta^-$ -decay of  $^{152}\text{Eu}$ , is in a two step cascade with it: 778.9 keV (12.9%), 411.12 keV (2.23%), 1089.74 keV (1.73%), 1299.14 keV (1.62%). Although difficult, it is possible to detect the 245 keV gamma ray (between two excited levels of  $^{152}\text{Sm}$ : 366.48 keV and 121.8 keV), with a relative intensity of 7.58%, which is present in two-step cascades, not only with 122 keV (28.58%), but also with 867.37 keV (4.25%) and 443.96 keV (2.82%).

# ODREĐIVANJE ENERGETSKOG ODZIVA MTS-N (LiF:Mg,Ti) TERMOLUMINESCENTNIH DETEKTORA MONTE KARLO SIMULACIJOM U X I GAMA POLJU ZRAČENJA

**Luka PERAZIĆ<sup>1,2</sup>, Čedomir BELIĆ<sup>1,2</sup>**

1) Univerzitet u Beogradu-Elektrotehnički fakultet, Beograd, Srbija

2) JP, „Nuklearni objekti Srbije“, Beograd, Srbija, lukaperazic@nuklearniobjekti.rs

## SADRŽAJ

U ovom radu prikazan je relativan odziv termoluminescentnih dozimetara tipa MTS-N (LiF:Mg,Ti) unutar RADOS kućišta u zavisnosti od energije upadnog fotonskog zračenja dobijen Monte Karlo simulacijom u programskom paketu GEANT4. Energije fotona koje su korišćene u simulaciji su u opsegu od 16 KeV do 1.25 MeV, a model je zasnovan na realnoj geometriji RADOS kućišta (bedža) koji se koristi u ličnoj dozimetriji u JP Nuklearni objekti Srbije. Cilj rada je simulacija i određivanje pre svega relativnog energetskog odziva TL dozimetara na energijama ispod 100 keV gde dozimetri imaju veći relativan odziv u odnosu na više energije.

## 1. Uvod

U ličnoj dozimetriji se duži niz godina koriste termoluminescentni dozimetri (TLD) koji zagrevanjem emituju svetlost čiji je intenzitet proporcionalan apsorbovanoj energiji (dozi) u polju zračenja. U zavisnosti od karakteristika materijala od kojih su sačinjeni, TLD su našli primenu kako u individualnom monitoringu profesionalno izloženih lica tako i u monitoringu radioaktivnosti u životnoj sredini.

JP Nuklearni objekti Srbije (JP NOS) u oblasti lične dozimetrije koristi TLD sačinjen od kristala litijum fluorida (LiF), koji je dopiran magnezijumom (Mg) i titanijumom (Ti), LiF:Mg,Ti, koji se proizvode u Institutu za nuklearnu fiziku, Krakov, Poljska [1]. Ovi dozimetri nose oznaku MTS-N i pozicionirani su na plastičnom nosaču, unutar plastičnog kućišta proizvođača RADOS (*Mirion Technologies*). Obzirom da je LiF materijal približno tkivno ekvivalentan ( $Z_{\text{eff}}=8.2$ ), relativan odziv ovih dozimetara u zavisnosti od energije upadnog zračenja je veći za energije fotona ispod 100 keV (relativno u odnosu na energiju <sup>137</sup>Cs)[2]. U tom smislu, potrebno je dobro poznavati energetski odziv dozimetra u cilju pouzdanijeg merenja u realnim uslovima na terenu.

Cilj ovog rada je ispitivanje relativnog odziva TLD na različitim energijama simulirajući softverskim alatom energetski odziv u realnoj geometriji kućišta (bedža) TL dozimetra, u referentnom X i gama polju zračenja.

Relativan odziv TLD u zavisnosti od energije E i ugla  $\theta$  upadnog zračenja,  $R(\theta, E)$ , je definisan relativno u odnosu na energiju <sup>137</sup>Cs, i dat izrazom [3]:

$$R(E, \theta) = \left( \frac{K(E, \theta)_{\text{LiF}} \cdot K(\text{Cs}, 0)_{\text{AIR}}}{K(E, 0)_{\text{AIR}} \cdot K(\text{Cs}, 0)_{\text{LiF}}} \right) \cdot \left( \frac{h(\text{Cs}, 0)}{h(E, \theta)} \right) \cdot \eta \quad (1)$$

gde su:

$K(E, \theta)_M$  -kerma u određenom materijalu (LiF ili vazduh) na poziciji TLD, koja je izjednačena sa apsorbovanom dozom i procenjena koristeći softverski paket GEANT4;  $h(E, \theta)$ -koeficijent konverzije kerme u vazduhu u lični ekvivalent doze Hp(10) za određenu energiju i upadni ugao snopa  $\theta$  i

$\eta(E)$  -relativna termoluminescentna efikasnost litijum fluorida za određenu energiju E.

Vrednosti koeficijenata konverzije  $h(E, \theta)$  su preuzeti iz ISO 4037-3[4], dok su koeficijenti  $\eta'(E)$  preuzeti iz radova drugih autora[5,6]. Uvedena aproksimacija kerme je moguća ukoliko su ispunjeni uslovi da energija upadnog zračenja bude manja od 2 MeV i da je uspostavljena ravnoteža sekundarnih elektrona u detektoru[7]. Simulacija relativnog odziva TL dozimetara odrađena je koristeći softverski paket GEANT4 pisan u programskom jeziku C++ kojim se simulira transport i interakcija čestica sa materijom[8]. Svi rezultati relativnog odziva u radu su normirani u odnosu na odziv na energiji od 662 keV ( $^{137}\text{Cs}$ ), a simulacija je urađena za upadni ugao fotona  $\theta=0^\circ$ .

## 2. Metoda

Simulacija relativnog odziva TL dozimetara tipa MTS-N unutar RADOS kućišta sprovedena je u uprošćenoj geometriji koja se koristi pri procesu ozračivanja i kalibracije TL dozimetara. U procesu simulacije u obzir nije uzeto okruženje i spoljašnji šildinzi.

TL dozimetri su pozicionirani unutar plastičnog kućišta (holdera) na četiri pozicije (slika 1). Dozimetri su cilindričnog oblika prečnika 4.5 mm i debljine 0.9 mm. Usled relativno male koncentracije dopanata (Mg i Ti) uticaj istih se zanemaruje prilikom proračuna apsorbovane doze u LiF materijalu. U simulaciji je korišćen materijal LiF koji se može naći predefinisano u bazi NIST-ovih materijala, a koja je sastavni deo baze softverskog paketa GEANT4. Gustina materijala je prilagođena realnoj gustini proračunatoj u laboratorijskim uslovima i iznosi 2.41 g/cm<sup>3</sup>. Plastično kućište je delom prekriveno aluminijumskim filtrom dimenzija 15x7.5mm, debljine 0.5mm i gustine 2.7g/cm<sup>3</sup>[1], koji dodatnom atenuacijom fotona koriguje odziv dozimetara i prilagođava ga što više realnoj absorpciji u tkivu. U radu je ispitivan odziv TL dozimetara koji su postavljeni na prve dve pozicije ispod aluminijumskog filtra.

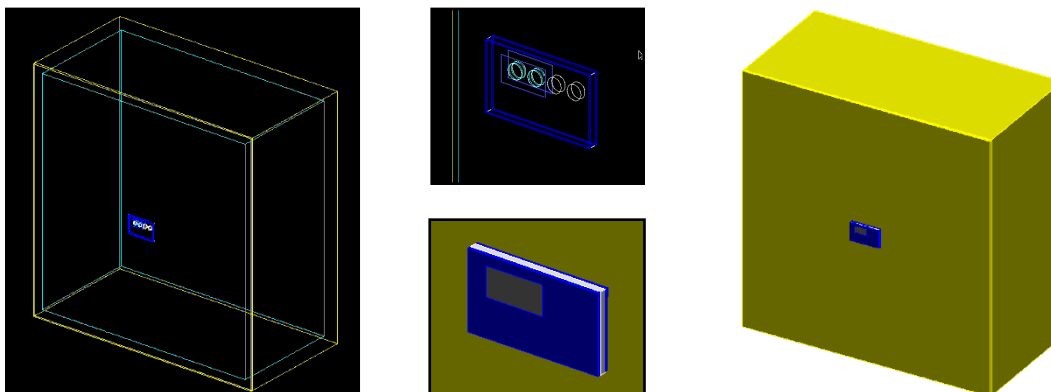


**Slika 1. TL dozimetri tipa MTS-N pozicionirani unutar RADOS kućišta**

Dozimetar je pozicioniran na prednjoj površini ISO fantoma ispunjenog vodom dimenzija 30 x 30 x 15 cm, koji se nalazi u vazduhu, sa dužom ivicom usmerenom u pravcu vertikalne ose. Zidovi fantoma su sačinjeni od polimetil metakrilata (PMMA) i to prednji zid debljine 0.25 cm, a ostali zidovi debljine 1 cm. Na slici 2 prikazana je geometrija simuliranog dozimetra kao i pozicija dozimetra na ISO fantomu.

Upadni snop zračenja simuliran je homogenim kružnim snopom paralelnih zraka, prečnika 10 cm, koji je postavljen na razdaljini 2m od fantoma. Simulacija ozračivanja dozimetra je odrađena monoenergetskim snopom X zračenja srednjih energija 16, 20, 24, 33, 48, 65, 83, 100, 118, 164, 208 i 250 keV. Takođe su razmatrane i energije 662 keV i 1250 keV izvora  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{60}\text{Co}$ , respektivno. Energije su izabrane na osnovu međunarodnih preporuka i standarda[4]. Simulacije su rađene na PC računaru sa

procesorom Intel Core i7-4790 CPU 3.6 GHz sa 6 jezgara. Ukupan broj simuliranih istorija u simulaciji je bio  $10^8$ , sa relativnom statističkom nesigurnošću manjom od 7%.

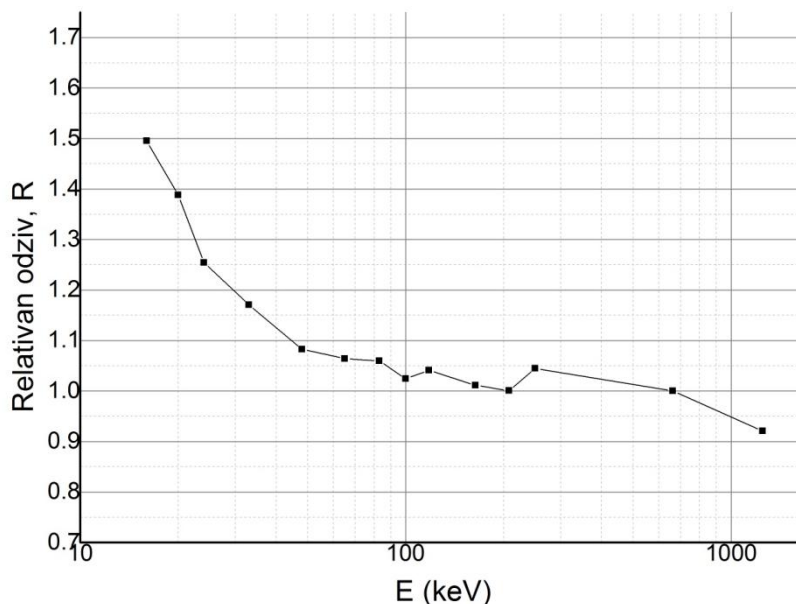


**Slika 2. Geometrija simuliranog TL dozimetra kao i pozicija dozimetra na ISO fantomu**

Za procenu apsorbovane doze u LiF korišćen je metod *GetTotalEnergyDeposit()* tokom transporta cestice kroz materijal. Da bi se procenila vrednost kerme u vazduhu,  $K(E,\theta)_{AIR}$ , ista simulacija je pokrenuta, s tim što su svi odgovarajući materijali od kojih su sačinjeni fantom, dozimetri i geometrija koja ih okružuje zamenjeni vazduhom.

### 3. Rezultati

Na slici 3 prikazan je relativan odziv TL dozimetra za energije upadnog X zračenja srednjih energija 16, 20, 24, 33, 48, 65, 83, 100, 118, 164, 208, 250 kao i zračenje iz izvora energija 662 i 1250 keV.



**Slika 3. Relativan odziv TL dozimetra za različite energije upadnog zračenja**

#### 4. Diskusija i zaključak

U poglavlju 3 ovog rada predstavljen je relativni odziv TL dozimetra tipa MTS-N u odnosu na energiju upadnog fotonskog zračenja. Odziv dozimetara je normiran u odnosu na energiju  $^{137}\text{Cs}$  (662 keV). Za vrednosti energija koje su manje od 100 keV relativni odziv je precenjen, veći i do 50% u odnosu na više energije, što je u skladu sa nekim drugim ispitivanjima ovog tipa TL dozimetra[1]. Na energijama preko 100 keV relativan odziv je prilično konstantan i teži jedinici, što bi predstavljao idealan slučaj i za niže energije. Kod TL dozimetara sačinjenih od kristala litijum fluorida koji je dopiran magnezijumom i titanijumom (LiF:Mg,Ti) poznato je da je relativan odziv na energijama ispod 100 keV veći od jedinice, tako da su u tom smislu rezultati ispitivanja očekivani. Prikazani rezultati su specifični za materijal i šaržu TL dozimetara koji se proizvodi u institutu u Krakovu i koji se koristi u JP NOS. U tom smislu, kao i kod ostalih tipova, TL dozimetri tipa LiF:Mg,Ti(MTS-N) su pogodni za korišćenje u ličnoj dozimetriji i monitoringu životne sredine, s tim što se mora voditi računa da merni sistem bude kalibrisan u polju zračenja odgovarajuće energije kojoj je TLD izložen, ili da se pri određivanju operativnih dozimetrijskih veličina (Hp(10), Hp(0,07), H\*(10)..) koristi odgovarajući faktor korekcije ukoliko je sistem kalibrisan u polju zračenja energije koja je različita od one kojoj je TLD izložen tokom svakodnevnih merenja. Takođe, rezultati ovih ispitivanja se moraju uzeti u obzir prilikom procene merne nesigurnosti izračunavanja pomenutih operativnih dozimetrijskih veličina. U daljem radu potrebno je unaprediti simulacioni model u smislu geometrije i detaljnijih fizičkih procesa i prilagoditi ga radi dobijanja što pouzdanijih rezultata.

#### 5. Literatura

- [1] <http://www.tld.com.pl/tld/main.html>.
- [2] B.Obryk, C.Hranitzky, H.Stadtman, M.Budzanowski and P.Olko. Energy Response of Different Types of Rados Personal Dosimeter With MTS-N (LiF:Mg,Ti) And MCP-N (LiF:Mg,Cu,P) TL Detectors. *Radiation Protection Dosimetry*. 144 (2011) 211-214.
- [3] J. S. Eakins, D.T.Bartlett, L.G.Hager,R.J. Tanner. Monte Carlo modeling of a TLD device containing  $^7\text{LiF:Mg,Cu,P}$  detectors. *Radiation Measurements* 43, (2008) 631-635.
- [4] International Organization for Standardization (ISO). X and gamma reference radiations for calibrating dose- meters and doserate meters and for determining their response as a function of photon energy . ISO 4037, parts 1–4, ISO (1999).
- [5] N. E. Ipe, A. Fassò, K. R. Kase, R. Kaur, P. Bilski and P. Olko, J. S. Eakins, D.T.Bartlett, L.G.Hager,R.J. Tanner. Characterization of Low-Energy (6-30 keV) Response of Polish TLDs (MTS-N, MCP-N) with Synchrotron Radiation and Determination of Some TLD Quantities. *12<sup>th</sup> International Conference on Solid State Dosimetry*, Burgos, Spain, 5-11 July 1998.
- [6] G Massillon-JL, A Cabrera-Santiago, R Minniti, M O'Brien and C G Soares. Influence of phantom materials on the energy dependence of LiF:Mg,Ti thermoluminescent dosimeters exposed to 20-300kV narrow x-raz spectra,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  photons. *Phys.Med.Biol.* 59 (2014) 4149-4166.
- [7] J. S. Eakins et al. The MCNP-4C2 Design of a Two Element Photon/Electron Dosemeter that Uses Magnesium/Copper/Phosporus Doped Lithium Fluoride. *Radiation*

*Protection Dosimetry*. 128 (2008) 21-35.

[8] <http://geant4.cern.ch/>

## **MONTE CARLO SIMULATION OF ENERGY RESPONSE OF MTS-N TL DETECTORS IN GAMMA AND X-RAY FIELD**

**Luka PERAZIĆ<sup>1,2</sup>, Čedomir BELIĆ<sup>1,2</sup>**

1) *University of Belgrade-School of Electrical Engineering, Belgrade, Serbia*

2) *Public Company „Nuclear facilities of Serbia“, Belgrade, Serbia,*

*lukaperazic@nuklearniobjekti.rs*

### **ABSTRACT**

*This paper presents relative energy response of MTS-N(LiF:Mg,Ti) thermoluminescent detectors inside RADOS holder. Relative response was calculated using GEANT4 toolkit for the simulation of the passage of particles through matter. Energies from 16keV to 1.25 MeV of incident photons were observed. The aim of this work was to simulate and determine energy response of TL dosimeters primarily at energies below 100 keV, where dosimeters shows increasing differences in relative response for decreasing photon energies.*

# DIGITALNI MERAČ RADIOAKTIVNOG ZRAČENJA DMRZ-M15

**Miloš ĐALETIĆ, Đorđe LAZAREVIĆ**

*Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine "Zaštita", Beograd, Srbija, djalem@gmail.com*

## SADRŽAJ

*U radu je predstavljen prenosni digitalni merač radioaktivnog zračenja koji se može koristiti za merenje jačine ambijentalne ekvivalentne doze gama zračenja  $H^*(10)$ , kao i za detekciju radioaktivnih izvora i kontaminacije. Korišćenjem mikrokontrolera omogućena je upotreba više različitih mernih sondi, korekcija na fon, kao i kompenzacija mrtvog vremena. Sve ovo omogućava širok spektar upotrebe ovog uređaja i dobre merne karakteristike.*

### 1. Uvod

Iz nastale potrebe za univerzalnim meračem radioaktivnog zračenja razvijen je ovaj uređaj. Njegove osnovne karakteristike su: jednostavna upotreba, lako očitavanje rezultata merenja na velikom displeju u obliku cifara i u analognom obliku vidu bargrafa. Pored zvučne indikacije svakog impulsa, postoji i poseban izlaz za slušalice. To omogućava korisniku lakši rad kada se uređaj koristi za detekciju izvora radioaktivnog zračenja i kontaminacije u okruženju sa povećanim nivoom buke. Mogućnost promene sonde i korišćenje više tipova sondi proširuje mu polje upotrebe.

Uređaj je napravljen po projektu Miloša Đaletića uz saradnju sa Đorđem Lazarevićem.

### 2. Konstrukcija uređaja

Merač je zamišljen kao prenosivi uređaj koji u određenim slučajevima može da se koristi i kao stacionarni merač. Kao takav može se koristiti i u laboratorijskim uslovima kao detektor kontaminacije. Moguće je i merenje na daljinu (do 100m) ukoliko se koristi daljinska sonda. Ovo je posebno korisno kada su u pitanju velike jačine doza (radioaktivni otpad, vanredna radijaciona situacija, udaljene merne tačke od kontrolnog punkta/carine, brodske prevodnice, portali...), jer je operater bezbedno udaljen od izvora koji se meri. Za detektor izabrana je Gajger-Milerova (GM) cev zbog svoje robusnosti, jednostavnosti, pristupačnosti i dobrih mernih karakteristika za ovaj tip instrumenta. Upravljanje uređajem vrši se preko četiri tastera. Korisnički meniji i rezultati merenja prikazuju se na dvorednom LCD displeju sa po 16 karaktera sa pozadinskim osvetljenjem. Za zvučnu indikaciju impulsa, upozorenja i alarma koristi se zvučni piezo element. Pored njega korisnik na raspolaganju ima i priključak za slušalice. Takođe, na prednjem panelu nalazi se i prekidač za uključivanje, kao i konektor za sondu.

Mikrokontroler je zadužen za upravljanje celim uređajem, brojanje impulsa koji stižu od detektora i kontrolu radnih parametara kao što su visoki napon za napajanje cevi i napon baterije. U njegovoj internoj memoriji upisani su i kalibracioni faktori za prateće sonde. Najveća brzina brojanja koju podržava mikrokontroler je 25k imp/s što odgovara zahtevima uređaja. Za potrebe generisanja visokog napona za napajanje GM cevi koristi se stabilisani DC-DC pretvarač sa kontinualnim podešavanjem izlaznog napona.

Kako bi se obezbedilo merenje na daljinu, izabran je diferencijalni prenos impulsa od sonde do merača kroz oklopljen kabl. Ovo omogućava prenos signala uz minimalan uticaj elektromagnetnih šumova čime se obezbeđuje minimalna degradacija signala. Takođe, kroz kabl se prenosi i visoki napon potreban za rad GM cevi, kao i napon za

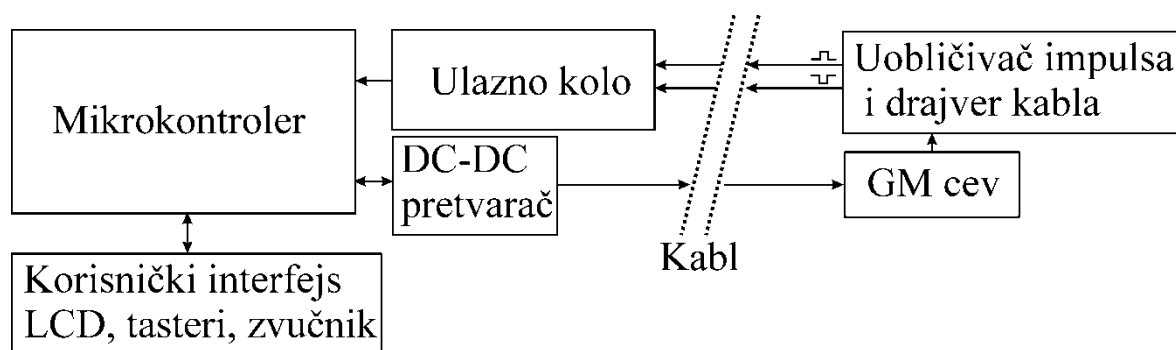
rad elektronike u samoj sondi. Kabl može biti dugačak i do 100m. Ulaz merača zaštićen je od prenapona TVS (Transient Voltage Suppression) diodama. Ovo rešenje je preuzeto od uređaja za kontinualno merenje jačine gama zračenja u životnoj sredini [1].

Ulazno kolo u meraču prima impulse koji stižu od sonde i pretvara ih u odgovarajuće naponske impulse koji se šalju na brojanje mikrokontroleru. Ovo kolo detektuje da li je sonda priključena i da li je sonda prešla iz impulsnog u strujni režim rada.

Normalan operativni režim rada GM cevi je impulsnog. Tada, prilikom svake jonizacije gasa u cevi, dolazi do stvaranja naponskog impulsa na radnom otporniku u trajanju od nekoliko desetina do nekoliko stotina mikrosekundi. Kada se cev preoptereći jakim poljem zračenja čija jačina prevazilazi maksimalno dozvoljenu za tu cev, GM cev prelazi iz impulsnog u strujni režim što podrazumeva stalni protok struje kroz cev, pri čemu ne dolazi do stvaranja impulsa na radnom otporniku. Duži rad u ovom režimu može da dovede do oštećenja cevi, zbog čega se prilikom njegove detekcije, isključuje visoki napon i upozorava se korisnik.

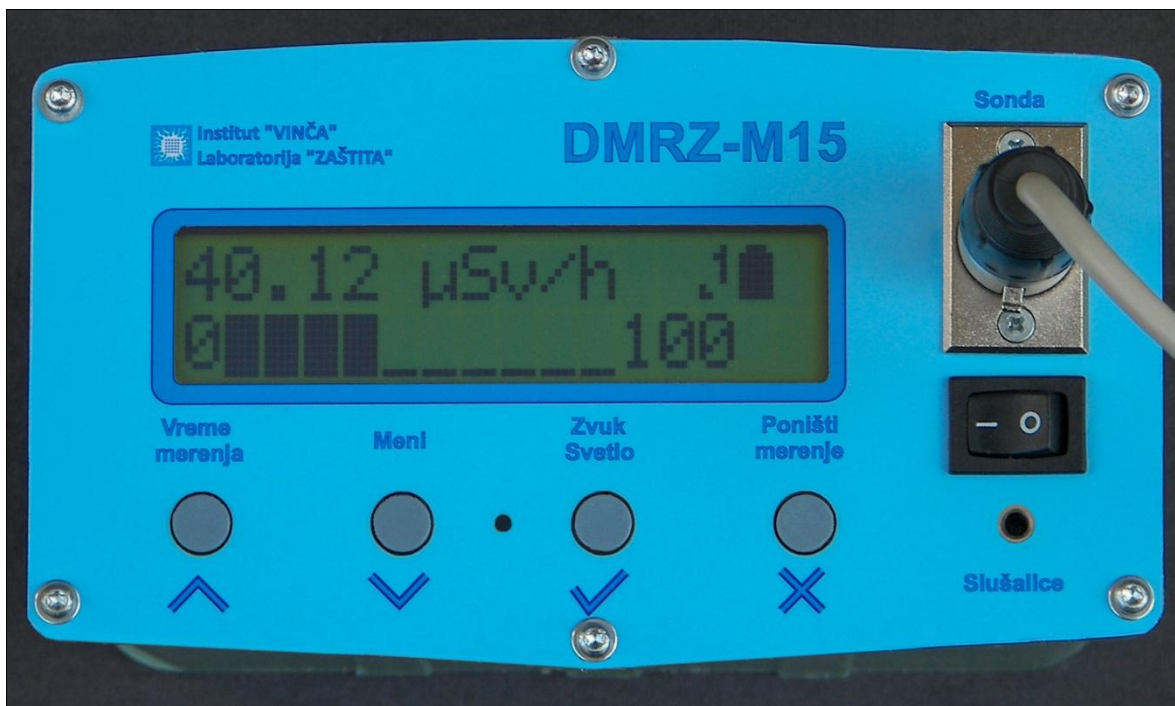
Sondu čine GM cev i prateća elektronika za uobličavanje i diferencijalni prenos impulsa. Impulsi se dobijaju na katodnom otporniku kojim je GM cev povezana na masu. Oni se uobličavaju Šmitovim okidnim kolom i dovode se na monostabilni generator impulsa čija se širina podešava tako da bude manja od mrtvog vremena GM cevi. Tako uobličeni impulsi pobuđuju drajver kabla. GM cev se bira prema nameni sonde. Za merenje  $H^*(10)$  gama zračenja koriste se energetske kompenzovane cevi. Za detekciju i merenje radioaktivnih izvora i kontaminacije koriste se cevi sa velikom površinom i prozorom koji omogućava detekciju alfa, beta i gama zračenja.

Uređaj ima baterijsko napajanje, a prilikom stacionarnog korišćenja može se priključiti na mrežno napajanje korišćenjem posebnog adaptera. U razmatranju je i verzija sa integrisanim punjačem baterija.

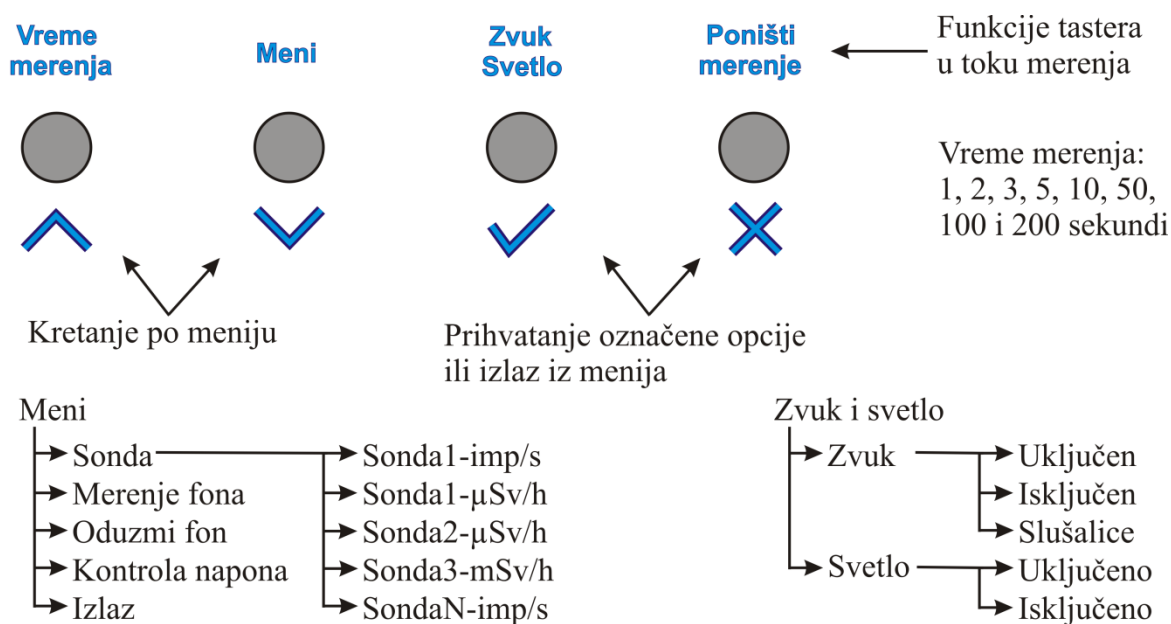


Slika 1. Blok šema merača DMRZ-M15





Slika 2. Izgled merača DMRZ-M15



Slika 3. Dijagram menija i opcija

### 3. Opis rada uređaja

Uređaj kada se uključi, proverava prisustvo sonde i ako je sonda priključena, počinje da generiše visok napon za rad GM cevi. Automatski se selektuje sonda koja je korišćena prethodni put i jedinica (imp/s ili Sv/h) i počinje merenje sa vremenom merenja od

jedne sekunde bez korekcije na fon.

U prvom redu na displeju ispisana je izmerena vrednost i jedinica. Ako je izabrana poznata sonda stoji  $L^1$ ,  $L^2$  ili  $L^3$ , a ako je uključena korekcija na fon i slovo **F**. U produžetku stoji ikonica na kojoj se očitava stanje baterije. U drugom redu je prikazan bar graf. Kada je vreme merenja manje od 10s on pokazuje izmerenu vrednost, a za vreme merenja od 10s i veće, pokazuje preostalo vreme do sledećeg rezultata merenja.

Promena vrednosti i kretanje po menijima vrši se tasterima  $\wedge$  i  $\vee$ . Potvrđivanje odabranog vrši se tasterom  $\checkmark$ , a otkazivanje tasterom  $\times$ . U toku merenja, pritiskom na taster  $\vee$  ulazi se u glavni meni. Pritiskom na taster  $\times$  poništava se merenje koje je u toku i započinje se novo, ukoliko je vreme merenja veće od 2 sekunde. Promena vremena merenja vrši se pritiskom na taster  $\wedge$ , kada se otvara meni sa ponuđenim vremenima: 1, 2, 3, 5, 10, 50, 100 i 200 sekundi. Pritiskom na  $\checkmark$  otvara se meni za odabir opcija zvuka i osvetljenja displeja.

U tom meniju pritiskom na  $\wedge$  menja se podešavanje zvuka (uključen, isključen i slušalice), a pritiskom na  $\vee$  pali se i gasi pozadinsko osvetljenje displeja. Pritiskom na  $\checkmark$  potvrđuju se promene. U glavnom meniju vrši se odabir sonde i jedinice merenja - imp/s i Sv/h.

Tu su i opcije za merenje fona i korekciju na fon (vrednost se pamti u internoj memoriji uređaja za svaku sondu posebno), kao i kontrolu napona baterije i visokog napona.

Ako je izabrana opcija nepoznata sonda (SondaN), rezultati merenja se prikazuju kao broj imp/s bez korekcije na mrtvo vreme. Ako je izabrana kalibrisana sonda (1, 2 ili 3), izmerene vrednosti su korigovane i mogu biti izražene u imp/s (za detekciju kontaminacije prilikom korišćenja sonde 1) ili u Sv/h (Sonde 1 i 2 za merenje malih i sonda 3 za merenje velikih jačina doza).

U slučaju da dođe do isključivanja sonde iz uređaja, automatski se isključuje visoki napon i korisnik se upozorava zvučnim signalom i porukom na displeju. Takodje, ako GM cev pređe iz impulsnog u strujni režim, korisnik se upozorava zvučnim signalom i porukom na displeju. Isključuje se visoki napon, kako ne bi došlo do oštećenja cevi i korisniku se pruža mogućnost da ponovi merenje. Alarm je uključen do ponavljanja merenja. Ako je GM cev prešla u impulsni režim rada, merenje se nastavlja, a ako nije, opet se pojavljuje poruka i alarm se ponovo aktivira i cela procedura se ponavlja. U slučaju nedozvoljenog stanja na diferencijalnom ulazu usled kvara na kablju, sondi ili ulaznom kolu, na ekranu se pojavljuje poruka "Greška" sa kodom greške uz zvučni alarm.

#### **4. Merne karakteristike mernih sondi**

Merne karakteristike svake sonde direktno zavise od detektora, a u ovom slučaju GM cevi. Bitna karakteristika koja je zajednička svim izabranim cevima je radni napon, koji je isti za sve, pa ga je nepotrebno menjati u toku rada prilikom promene sonde.

Sonda 1 služi za detektovanje radioaktivnih izvora i kontaminacije (imp/s), a uz korišćenje posebnih filtera za kompenzaciju energetske zavisnosti može da se koristi i za merenje  $H^*(10)$  ( $\mu\text{Sv/h}$ ) kao i sonde 2 i 3. Svaka od njih se može povezati na merač kablom dužine do 100m. U tabeli 1 dat je pregled GM cevi sa njihovim osnovnim karakteristikama [2,3].

**Tabela 1. Osnovne karakteristike korišćenih GM cevi**

Radni napon	Sonda	Oznaka cevi	Vrsta zračenja	Brzina brojanja impulsa i/ili H*(10)	Kompenzacija energetske zavisnosti
400V	Sonda 1	SI-8B	$\alpha, \beta, \gamma$	do 4420 imp/s	/
400V	Sonda 2	SMB-20	$\beta, \gamma$	do 7200 imp/s fon - 1,4mSv/h	/
400V	Sonda 3	SI-3BG	$\gamma$	0,5mSv/h - 2,9Sv/h	/
575V	Sonda 1	ZP1431	$\alpha, \beta, \gamma$	do 4300 imp/s 0,6 $\mu$ Sv/h - 6mSv/h	/
575V	Sonda 2	ZP1202	$\gamma$	1 $\mu$ Sv/h - 40mSv/h	+30 / -20%
575V	Sonda 3	ZP1314	$\gamma$	10 $\mu$ Sv/h - 3Sv/h	+/- 15%

Navedenim cevima iz tabele 1 koje nemaju fabrički ugrađen filter za kompenzaciju energetske zavisnosti [4], moguće ga je naknadno dodati. Kao što se može videti u tabeli, uređaj može da meri (uz promenu sondi) H\*(10) od nivoa fona pa do nekoliko Sv/h, kao i da detektuje prisustvo kontaminacije  $\alpha, \beta, \gamma$  izvorima. Sonde se priključuju i isključuju samo kada je uređaj isključen.

## 5. Zaključak

Prikazan je višenamenski merač koji se može koristiti za merenje jačine ambijentalne ekvivalentne doze gama zračenja H\*(10) ili za detektovanje radioaktivnih izvora i/ili kontaminacije. Njegove najvažnije karakterisitike su: jednostavno rukovanje, robusnost, mogućnost priključivanja slušalica i povezivanja različitih sondi koje mogu biti udaljene i do 100m od samog merača. Korišćenjem jedne sonde može se ostvariti zadovoljavajuća tačnost pri merenju H\*(10) korišćenjem filtera za kompenzaciju energetske zavisnosti koji se skida pri korišćenju za detektovanje radioktivnih izvora i kontaminacije, čime se ne smanjuje osetljivost sonde. Korišćenjem i daljinske sonde 3, moguće je meriti H\*(10) od nivoa fona pa do nekoliko Sv/h u zavisnosti od izabrane GM cevi.

## 6. Zahvalnost

Ovom prilikom autori bi se zahvalili na pomoći prilikom testiranja uređaja u polju zračenja za etaloniranje tehničarima Dragani Divnić i Milošu Jovanoviću.

## 7. Literatura

- [1] Miloš Đaletić, Miloš Živanović, Miloško Kovačević, *Uređaj za kontinualno merenje jačine doze gama zračenja u životnoj sredini*, Zbornik radova XXVI simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore 2011. 238-242.
- [2] *Geiger Muller tubes databook*, Centronic LTD, 2010.
- [3] *Products databook*, Научно-производственная фирма КОНЦЕНСУС, 2013.
- [4] Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley and Sons, 2000.

## DIGITAL RADIATION SURVEY METER DMRZ-M15

**Miloš ĐALETIĆ, Đorđe LAZAREVIĆ**

*Vinca Institute of Nuclear Sciences, radiation and Environmental Protection  
Department, Belgrade, [djalem@gmail.com](mailto:djalem@gmail.com)*

### ABSTRACT

This paper presents a portable digital instrument for measurement of ambient dose equivalent  $H^*(10)$  and detection of ionizing radiation and contamination sources. This is achieved by using a special removable energy compensation filter. Because it is based on microcontroller, it is possible to use several different types of probes. One of the main features is the possibility of using remote probe with cable length up to 100 meters. This allows remote measurement of strong radiation sources, where operator is at the safe distance from them. Also, there are several more useful functions like subtracting background radiation level and a dead time correction. The user interface is based on 2 rows by 16 characters LCD display and four push buttons. This allowed developing a simple and easy to use menus and shortcuts control system. Because of all of this, this meter can be used in a variety of different situations with good measurement characteristics.

# ISPITIVANJE ENERGETSKE ZAVISNOSTI ENERGETSKI NEKOMPENZOVANIH I KOMPENZOVANIH GAJGER MILEROVIH CEVI

**Miloš ĐALETIĆ, Miloš ŽIVANOVIĆ, Katarina KARADŽIĆ, Đorđe  
LAZAREVIĆ**

*Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu  
životne sredine, Univerzitet u Beogradu, Srbija, djalem@gmail.com*

## SADRŽAJ

Gajger-Milerove cevi su veoma zastupljene kao detektori u meračima jonizujućih zračenja zbog dobrih mehaničkih i tehničkih karakteristika, kao i zbog niže cene u odnosu na druge tipove detektora. Cilj ovog rada bio je da se ispita zavisnost njihove efikasnosti na različitim energijama  $x$  i gama zračenja. Ovo je posebno bilo važno za cevi ruskih proizvođača, jer se takvi podaci ne nalaze među tehničkim karakteristikama u njihovim katalogima. Merenja su pokazala da postoji značajna promena osetljivosti za srednje energije zračenja manje od 164 keV (kvalitet N-200) kod energetski nekompenzovanih cevi. Na ovu promenu potrebno je obratiti pažnju, jer može dovesti do greške merenja i do nekoliko puta. Pri korišćenju nekompenzovanih cevi, potrebno je prikazati u kom opsegu energija je promena osetljivosti u odnosu na osetljivost u referentnom kvalitetu propisana – tipično  $\pm 30\%$ . Ako donja granica tog opsega ne pokriva energiju zračenja koje se meri, potrebno je kompenzovati cev na energetsku zavisnost dodatnim filterom ili koristiti krivu energetske zavisnosti i vršiti kompenzaciju računskim putem.

## 1. Uvod

Veliki broj dozimetara koji se koriste za merenje ambijentalnog doznog ekvivalenta kao detektor koristi Gajger – Milerove cevi (GM cevi). GM cevi u principu imaju izrazitu zavisnost pokazivanja od energije zračenja, što predstavlja ograničenje za njihovu korišćenje. Najveći broj ovakvih dozimetara ima kalibracioni faktor koji je određen za jedan kvalitet snopa zračenja – najčešće  $^{137}\text{Cs}$  (662 keV). Nasuprot tome, postoje potrebe da se meri doza zračenja čije se energije kreću od nekoliko desetina keV (na primer u dijagnostičkoj radiologiji), pa do više od 1 MeV (srednja energija izotopa  $^{60}\text{Co}$  je 1,25 MeV).

Nelinearnost pokazivanja detektora u zavisnosti od energije zračenja se prevazilazi na različite načine. Jedan od načina je proizvodnja energetski kompenzovanih cevi, tj. cevi koje su obložene materijalom koji preferencijalno apsorbuje zračenje niskih energija. Drugi način je određivanje krive energetske zavisnosti, koju zatim korisnik može da iskoristi za korekciju u slučaju merenja doze zračenja poznatog radioizotopa. Konačno, proizvođač specifikacijama deklariše za koje energije zračenja se dozimetar može koristiti, što bi trebalo da predupredi nekorektno merenje doza (najčešće) niskoenergetskih kvaliteta zračenja.

Nelinearnost osetljivosti cevi u odnosu na energiju zračenja javlja se kao posledica zavisnosti efikasnih preseka interakcije od energija zračenja. Zračenje energija ispod 50keV (meki X-zraci) direktno jonizuje gas u GM cevi, dok zračenje viših energija (>200keV) to nije u stanju. Zračenje viših energija prolaskom kroz zid GM cevi proizvodi sekundarno zračenje (elektrone) koje ima dovoljno nisku energiju da direktno jonizuje gas u GM cevi. Iz ovoga sledi da efikasnost detekcije zavisi i od mogućnosti stvaranja sekundarnih elektrona, što je u direktnoj vezi sa debljinom zidova. Zbog

ograničenog dometa elektrona (~1mm), zidovi deblji od 1mm ne povećavaju efikasnost, jer samo elektroni koji su nastali dovoljno blizu unutrašnjosti cevi mogu da izazovu jonizaciju gasa i stvaranje impulsa. Efikasnost se može povećati i izradom katode od punog materijala, kao i maksimizacijom površine katode u odnosu na aktivnu zapreminu GM cevi [1]. Ako je dozimetar namenjen za merenje doza u poljima x-zračenja potrebno je smanjiti osetljivost GM cevi za niže energije. Za ovu svrhu koristi se zaštita od težih materijala. Kako se ne bi cev kompletno zaklonila i tako postala neosetljiva, na zaštiti se ostavljaju manji prerezi. Ovo pokazuje da je projektovanje energetske kompenzacije cevi poluempirijska disciplina.

U ovom radu je ispitivana energetska zavisnost 4 nekompenzovane i jedne energetski kompenzovane GM cevi u cilju određivanja energetskog opsega u kome se mogu koristiti u skladu sa standardom IEC 1017-1 [2].

## 2. Postavka merenja i korišćeni instrumenti

Ispitivanja su vršena prema standardu Međunarodne elektrotehničke komisije IEC 1017-1. Zahtev koji se postavlja je da promena osetljivosti detektora za bilo koji kvalitet zračenja u opsegu 50 keV - 1,5 MeV u odnosu na osetljivost u referentnom kvalitetu ( $^{137}\text{Cs}$ ) bude manja od 30% [2]. Referentne vrednosti kerme u vazduhu su određene u SSDL Instituta za nuklearne nauke „Vinča“ (VINS-SSDL), preko sekundarnog standarda PTW 32002 (jonizaciona komora – 11). Vrednosti ambijentalne ekvivalentne doze su utvrđene množenjem vrednosti kerme u vazduhu sa odgovarajućim konverzionim koeficijentima, prema standardu ISO 4037-3 [3]. Za ispitivanje su korišćena polja zračenja uspostavljena prema standardu ISO 4037-1 [4]. Korišćeni su kvaliteti snopova radioaktivnih izvora  $^{60}\text{Co}$  i  $^{137}\text{Cs}$ . Kao izvor x-zračenja korišćen je generator rendgenskog zračenja Philips MG-320, operativnog napona od 30 do 320 kV, preko kog su postignuti ISO kvaliteti snopova N-60, N-80, N-100, N-200 i N-300, srednjih energija zračenja od 48 keV, 65 keV, 83 keV, 164 keV i 250 keV, respektivno. Jačina doze u opsegu od oko 150  $\mu\text{Sv/h}$  odabrana je tako da je statistička greška merenja dovoljno mala, a uticaj mrtvog vremena zanemarljiv.

Merenja su vršena meračem GMC7 [5], koji ima mogućnost povezivanja sonde preko dugačkog kabla. Maksimalna brzina brojanja uređaja je 25k imp/s, a opseg vremena merenja je od 1s do 9999s. GM cevi su bile postavljene tako da je snop zračenja padao na površinu najvećeg poprečnog preseka cevi. Korišćena sonda je posebno bila napravljena za ovu priliku i omogućila je brzu i laku promenu GM cevi koja se ispituje. Glavne prednosti ovakvog sistema za merenje su promena napona napajanja GM cevi bez ulaska u radijaciono polje i direktno snimanje izmerenih vrednosti na PC računar. Ovo je omogućilo brz i efikasan rad u laboratoriji.

U tabeli 1 su navedene osnovne karakteristike ispitivanih cevi [6,7].

## 3. Rezultati i diskusija

U tabeli 2 su dati rezultati ispitivanja GM cevi, za referentni kvalitet  $^{137}\text{Cs}$  prikazana je osetljivost GM cevi, a za ostale kvalitete odstupanje od osetljivosti u poređenju sa osetljivošću za  $^{137}\text{Cs}$ .

**Tabela 1. Osnovne karakteristike ispitivanih cevi**

Radni napon	Oznaka cevi	Vrsta zračenja	Brzina brojanja impulsa i/ili H*(10)	Kompenzacija energetske zavisnosti
400V	SI-8B	$\alpha, \beta, \gamma$	do 4420 imp/s	/
400V	SMB-20	$\beta, \gamma$	do 7200 imp/s fon - 1,4mSv/h	/
400V	SI-3BG	$\gamma$	0,5mSv/h - 2,9Sv/h	/
500V	ZP1400	$\alpha, \beta, \gamma$	do 11000 imp/s 1 $\mu$ Sv/h - 100mSv/h	/
575V	ZP1201	$\gamma$	1 $\mu$ Sv/h - 40mSv/h	+30 / -20%

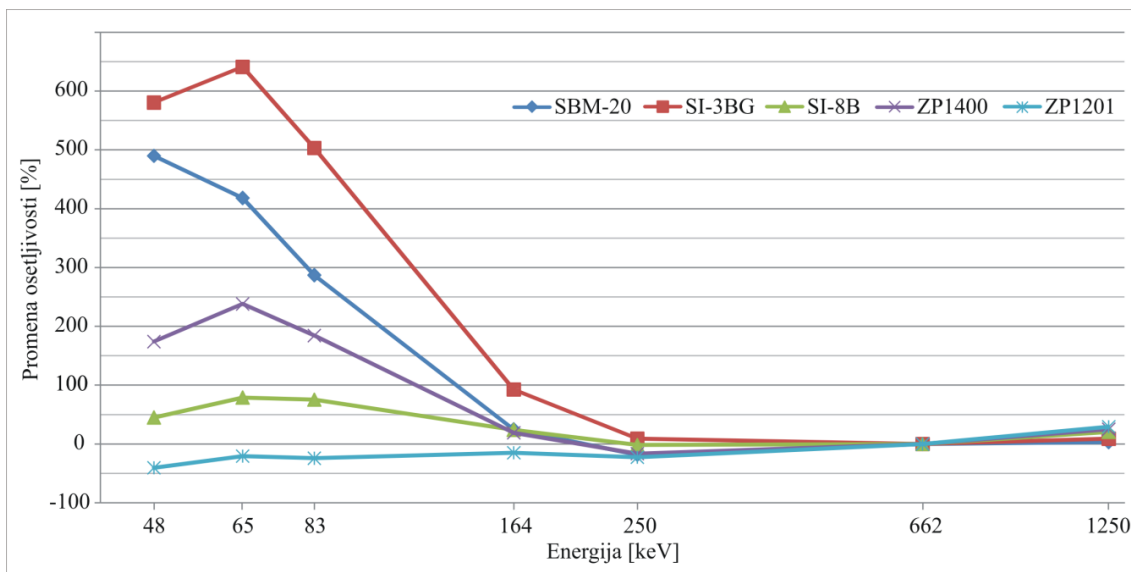
**Tabela 2. Rezultati ispitivanja GM cevi u 7 kvaliteta zračenja**

Kvalitet snopa	Referentni $^{137}\text{Cs}$	N-60	N-80	N-100	N-200	N-300	$^{60}\text{Co}$
GM cev	Osetljivost [ $\mu\text{Sv/h}$ / imp/s]	Promena osetljivosti u %					
SI-8B	0,134	+44,7	+78,7	+75,5	+23,7	-1,51	+20,4
SMB-20	0,575	+490	+418	+287	+25	-18,5	+3,15
SI-3BG	46,1	+580	+641	+503	+92,5	+8,84	+8,94
ZP1400	0,607	+174	+238	+184	+19,0	-16,4	+25,0
ZP1201	0,604	-40,4	-20,8	-24,3	-15,0	-22,5	+29,2

Analiza rezultata pokazuje da svih 5 GM cevi zadovoljava uslove koje postavlja IEC 4037-1 u slučaju kvaliteta snopa  $^{60}\text{Co}$ , kao i N-300. Kada je u pitanju kvalitet N-200, sve cevi osim SI-3BG koja služi za merenje visokih doza ispunjavaju kriterijum promene osetljivosti do 30%. Međutim, za energije niže od 164 keV promene osetljivosti svih nekompenzovanih cevi značajno prevazilaze uslov propisan standardom, u nekim slučajevima i dvadesetostruko. Nasuprot tome, kompenzovana cev ZP1201 pokazuje odlično ponašanje sve do energije od 65 keV (N-80), dok je za energiju od 48 keV (N-60) promena osetljivosti nešto veća od uslova propisanih standardom.

Bitno je napomenuti da je cev SI-8B imala ispred prozora i zaštitni lim sa prorezima. Ovo je dovelo do delimične energetske kompenzacije, pa su i rezultati merenja znatno bolji od ostalih nekompenzovanih GM cevi. Takođe, ova cev ima znatno deblji zid od ostalih i veću površinu poprečnog preseka, što je povećalo osetljivost detekcije zračenja.

Rezultati su grafički prikazani na slici 1.



Slika 1. Energetska zavisnost GM cevi u opsegu energija od 48 keV do 1250 keV

#### 4. Zaključak

Rezultati ispitivanja predstavljeni u ovom radu pokazuju koliko je važno dobro poznavanje mernog sistema koji se koristi, kao i poznavanje izvora čija se doza meri. Ispitivanjem 5 GM cevi dostupnih na tržištu, potvrđena je pretpostavka da je zavisnost pokazivanja od energije značajno bolja za kompenzovane nego za nekompenzovane cevi. Kada su u pitanju nekompenzovane cevi, njihova upotrebljivost je vrlo ograničena za energije niže od 164 keV (kvalitet N-200), jer su promene osetljivosti između 45 % i 640 % u poređenju sa osetljivošću u kvalitetu  $^{137}\text{Cs}$ . Ovakve cevi se u navedenom opsegu mogu koristiti samo u slučaju poznate energije merenog zračenja i poznate energetske zavisnosti, što je u praksi teško ostvarivo. Drugo rešenje bi bilo korišćenje izmenjivih energetskih filtera.

Nasuprot nekompenzovanim cevima, kompenzovana cev koja je bila predmet ispitivanja je u svim kvalitetima osim N-60 zadovoljila stroge zahteve propisane standardom IEC 1017-1.

#### 5. Literatura

- [1] Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley and Sons, 2000.
- [2] International Electrotechnical Commission. *Portable, transportable or installed X or gamma radiation ratemeters for environmental monitoring*, Part 1. IEC 1017-1 (1991).
- [3] ISO. ISO 4037-1: X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and doserate meters and for determining their response as a function of photon energy — Part 1: Radiation characteristics and production methods, ISO (1996)
- [4] ISO. ISO 4037-3: X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and doserate meters and for determining their response as a function of photon energy – Part 3: Calibration of area and personal dosimeters and the measurement of their response as a function of energy and angle of incidence, ISO (1999)
- [5] Miloš Đaletić, Miloš Živanović, Milojko Kovačević, Uređaj za kontinualno merenje jačine doze gama zračenja u životnoj sredini, Zbornik radova XXVI simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore 2011. 238-242.
- [6] Geiger Muller tubes databook, Centronic LTD, 2010.
- [7] Products databook, Научно-производственная фирма КОНЦЕНСУС, 2013.



## MEASUREMENT OF ENERGY DEPENDENCE OF THE ENERGY COMPENSATED AND UNCOMPENSATED GEIGER MULLER TUBES

**Miloš ĐALETIĆ, Miloš ŽIVANOVIĆ, Katarina KARADŽIĆ, Đorđe LAZAREVIĆ**

*Vinca Institute of Nuclear Sciences, radiation and Environmental Protection  
Department, University of Belgrade, djalem@gmail.com*

### ABSTRACT

*Geiger Muller tubes are very often used as a detection element in the ionizing radiation dosimeters, because of their good mechanical and technical properties and because of their low price. The aim of this paper was to examine the energy dependence of five Geiger Muller tubes for several X-ray and gamma radiation qualities. This was especially important for tubes made by Russian manufacturers, because energy dependence data is not available in respective technical manuals. The testing showed that non-compensated tubes response is significantly different for mean photon energy lower than 164 keV (N-200 radiation quality), as compared to response for <sup>137</sup>Cs. Knowing tube's energy response is very important, because such differences can be as high as 600 %. When using uncompensated tubes, it is important to state the energy range with acceptable response differences from reference quality – typically ±30%. In case that the energy of the measured radiation is not within that range, it is necessary to correct results by using energy response curve or to compensate the tube with suitable filter.*

## ГЛЕДАЊЕ У КУГЛУ-25 ГОДИНА ПОСЛЕ

**Радомир БАЊАНАЦ, Александар ДРАГИЋ, Владимир УДОВИЧИЋ, Дејан ЈОКОВИЋ, Димитрије МАЛЕТИЋ, Никола ВЕСЕЛИНОВИЋ, Михаило САВИЋ**

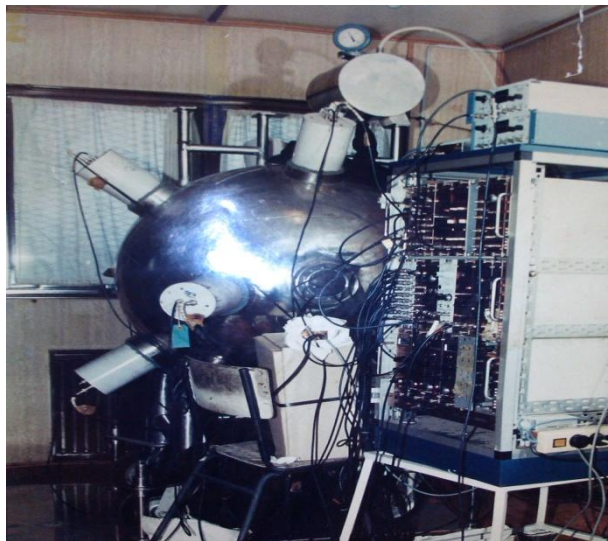
*Институт за физику, Универзитет у Београду, Србија, [banjanac@ipb.ac.rs](mailto:banjanac@ipb.ac.rs)*

### САДРЖАЈ

*Велики течни сцинтилациони детектор, сфера од нерђајућег челика пречника 100cm са 12 фотомултипликатора и последично велике ефикасности детекције неутрона, и после 25 година показује знаке живота. Велики неутронски, али и детектор свеprisутног амбијенталног зрачења, кога из очигледних разлога зовемо Кугла, прелиминарно је тестиран у циљу провере његових главних карактеристика које су га красиле у експерименту потраге за супертешким елементом са 113 протона. Досадашња тестирања наговештавају да Кугла још није за музеј нуклеарне инструментације.*

### 1. Увод

Крајем осамдесетих година прошлог века било је могуће у Институту за физику направити релативно велики сингл детектор који је по пројекту имао само једну намену. У конфигурацији са силицијумским детектором фисионих фрагмената који је, смештен у унутрашњем каналу Кугле, тригеровало велики сцинтилатор, Кугла је бројала неутроне. По теоријским претпоставкама за фисију супертешких елемената, из узорка руде лорандита која је садржавала екаталијум, из једног акта спонтане фисије хипотетичког елемента екаталијума ( $Z=113$ ) требало је да се емитује већи број неутрона него код трансурана нпр. калифорнијума  $Cf-252$ . Сам експеримент је имао високу осетљивост и дуго време мерења, али је ипак коначан резултат био негативан, па се могла само проценити граница обилности траженог елемента. Детаљи експеримента описани су у докторату колеге Александра Зарића под менторством професора Ђуре Крмпотића и руководством др. Радована Антанасијевића, [1], док је млађим сарадницима Лабораторије преостало да анализирају софистицираност реализованог мерења и баштине употребљену опрему.



Слика 2. Кугла и припадајућа електроника за велики експеримент

Фотографија Кугле у окружењу неопходног хардвера за велики експеримент приказана је на слици 1.

У међувремену, како је смештена у близину инсталације Плазма фокус експеримента, Кугла је послужила и за одређивање укупног приноса неутрона из деутеријумског Плазма фокуса, [2]. На жалост, због ограничених хардверских ресурса, њено напајање високим напонем расходовано је за потребе великих пластичних сцинтилатора и мерење космичког зрачења.

## 2. Техничке карактеристике детектора

Кугла је због своје велике запремине (600 литара) мета и за свеprisутно зрачење из околине пре свега продорно гама и космичко зрачење. Фон Кугле је зато велики, ако је сматрамо доминантно детектором неутрона, због адитива у виду гадолинијума. Поред поменутих компоненти фона, присутни су и сами неутрони из хадронске компоненте космичког зрачења и из околине ( $\alpha, n$  реакције и фисије урана), па је очекивани фон свих неутрона реда  $100/m^2s$ .

Детекциона осетљивост Кугле се повећава у коинцидентним мерењима, као и на примеру трагања за супертешким елементом. Ово се још једноставније постиже применом савремених дигиталних анализатора који временску спектрометрију стављају у први план.

Ипак, Кугла је доминантно детектор неутрона, како брзих тако и термалних. Ови први, ако су почетних енергија до око  $10MeV$ , расејањем на протонима и језгрима угљеника који чине сцинтилациону течност, са великом вероватноћом се термализују у великом детектору. На крају њиховог пута унутар сцинтилатора чекају их језгра гадолинијума 155 и 157, којим је *NE343* сцинтилатор допиран, на којима се због великог пресека за захват термални неутрони захватају, а потом језгра гадолинијума деекситирају емисијом каскадног гама зрачења широког опсега енергија. Пропагацијом кроз течност сцинтилатора, гама зрачење се (због малог  $Z$  течности) са највећом вероватноћом Комптоновски расејава и од Комптоновских електрона се ствара сцинтилациона светлост која доспева до великог броја правилно распоређених великих фотомултипликатора. На овај се начин у великом детектору постиже велика ефикасност детекције неутрона, али је спектрални одзив континуиран. На примеру неутрона из фисијоног спектра уранијума и за пречник детектора од  $100cm$ , применом симулационог програма *ДЕНИС* добијена је ефикасност детекције од 85%.

Имајући у виду да је енергија неутрона за доступан извор *Am-Be* до око  $10MeV$ , са средњим слободним путем кроз сцинтилациону течност од око  $20cm$ , симулација је проценила ефикасност детекције  $10MeV$ -ских неутрона од око 65%.

Дванаест фотомултипликатора (*Hamamatsu R1215*, пречника 5 инча ( $127mm$ )), селектовано је из базе од 16 за ову намену купљених ПМТ-ова, који имају уједначене одзиве (напонске сигнале) за идентичну светлосну побуду.

За смештање тригер детектора, силицијумског детектора са површинском баријером за фисијоне фрагменте, или како ћемо видети мало касније неког другог, као и узорка лорандита, Кугла по свом пречнику има канал дужине  $100cm$  и пречника  $100mm$ .

Детаљнији опис, за велики експеримент, употребљене аналогне нуклеарне електронике овде није релевантан, али су детаљи описани у [1].

На жалост, у докторату је само поменуто да се течност сцинтилатора “повремено барботира аргоном” у циљу елиминације кисеоника временом раствореног у

сцинтилатору. Овај технички проблем се сматра највећим у дуготрајној употреби течних сцинтилатора.

### 3. Прелиминарна мерења

Досадашња искуства са другим течним сцинтилаторима, посебно *NE213* који има особину дискриминације неутрона од гама зрачења по времену пораста сигнала, нису давала наду у оживљавање Кугле. Проблем код течних сцинтилатора старијих од неколико година представља присуство кисеоника који, као електронегативан гас, захвата електроне и гаси сцинтилације. Ово је посебно карактеристично код *NE213* сцинтилатора који се мора потпуно заменити новом течношћу након две године када изгуби главно својство *n-гама* дискриминације. Кугла је ипак затворен систем са експанзионом посудом на врху, слика 1, која јој је потребна због екстремног ширења растварача (толуола) на вишој температури, па је тако онемогућен улазак кисеоника, али сметњу представља и кисеоник растворен у сцинтилатору који такође доприноси гашењу сцинтилација.

Друга непознаница је постојаност хемије гадолинијума у растварачу тј. одрживост изотропне расподеле гадолинијума током 25 година.

Оно што се најједноставније могло проверити је одзив фотомултипликатора и то је најпре тестирано.

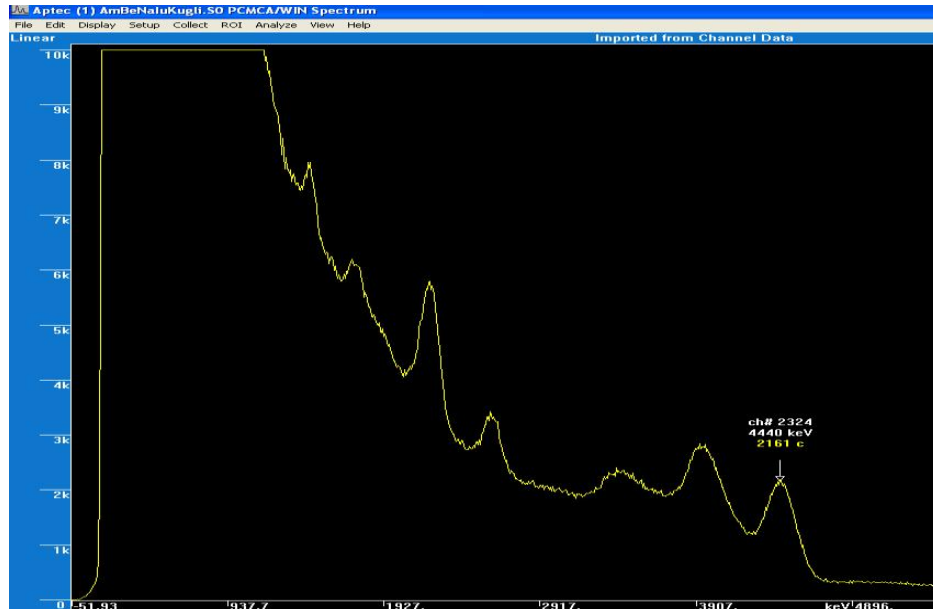
У оригиналној поставци великог експеримента, Кугла је калибрисана и на гама зрачење. Како је радило свих 12 ПМТ-ова, колекција светла је била максимална, па је калибрациони извор кобалта 60, довољно велике активности и смештен у центар Кугле, као одзив дао спектар са два “пика”. Први је један или други сингл (1173 или 1332keV) јер је резолуција сцинтилатора недовољна за њихово раздвајање, а други је њихов суминг на 2505keV. Ово мерење нисмо били у прилици да поновимо, макар због недостајућих напајања за свих 12 ПМТ-ова, па је тестиран сваки ПМТ засебно.

На радном напону од -1000V, са слабоактивним тачкастим извором кобалта 60, у идентичној геометрији за сваки ПМТ, одређивана је амплитуда излазног сигнала осцилоскопом. Резултати су, изненађујуће, репродуцибилни и потпуно се по односу амплитуда слажу са мерењима, која су спроведена током селекције и уједначавања 12 ПМТ-ова, [1].

Наредни тест је дотицао одзив гадолинијума. Пресек за захват термалног неутрона посебно је велики (254kVarn) код обилније присутног (у природном гадолинијуму) изотопа гадолинијума 157. Након захвата, побуђено језгро *Gd-158* деексцитира се емисијом мноштва гама зрака. У припреми великог експеримента, у коинцидентном мерењу са детектором фисијоних фрагмената у циљу редукације неутронског фона, и извором неутрона *Cf-252*, добијен је одзив Кугле на гама зраке из гадолинијума. Максимум континуиране расподеле је на око 4MeV са вишком на месту 6750keV што одговара гама зраку са највећим интензитетом.

Како су енергије емитованог и Куглом детектованог гама зрачења изнад енергија фонског гама зрачења, осмишљена је конфигурација са *NaI* сцинтилатором који је смештен у центар канала Кугле. За извор неутрона коришћен је *AmBe*, чији су се неутрони (који додају до око 10MeV) додатно термализовали у бурету са водом у коме се извор чува, у контактної геометрији *AmBe* буре-Кугла. Непријатност у детекцији високоенергетског гама зрачења од *Gd* за овај извор неутрона представљају фотони енергија 4.44MeV који се, по природи интеракције америцијума и берилијума у самом *AmBe* извору, емитују у односу један на један

са емитованим неутронима. У добијеном прилично линеарном спектру *NaI*, због његове лоше резолуције, није било могуће развојити појединачно гама зрачење из гадолинијума, али су поред слабашних фонских линија (511, 1461, 2614keV) јасно уочљиви пикови на 2223 и 4443keV и њихови припадајући једноструки и двоструки одбегли пикови, слика 2.



Слика 2. Спектар *NaI* за извор *AmBe* до 5keV

Следећа слика 3, приказује исти спектар на енергијама вишим од 4.44MeV-ског пика, где се очекују структуре које се једино могу идентификовати као гама зрачење од гадолинијума након захвата неутрона.



Слика 3. Спектар *NaI* за извор *AmBe* изнад 5MeV

Анализом библиотеке линија гама зрачења из *Gd-158* у областима 4 до 5 “пикова”, који се разазнају на слици 3, редом од 4770 до 5350, од 5350 до 5870, од 5870 до 6350, од 6340 до 6890 и од 6890 до 7400keV, њихови сумарни релативни интензитети се слажу са измереним нет интегралима. Ово важи претпостављајући благи пад ефикасности детекције у области енергија где доминира креација парова као механизам интеракције гама зрачења. Детаљнија квантитативна анализа је могућа уз помоћ симулације одзива детектора на гама зрачење високих енергија у конкретној геометрији извор-детектор.

Ипак, описани *NaI* спектар само доказује присуство гадолинијума у Кугли, и могуће га је детаљније истражити временском спектроскопијом знајући да због времена термализације неутрона “гадолинијумско” гама зрачење касни за промптним гама зрачењем од 4.44MeV. Ипак, главни доказ да је Кугла и после 25 година оперативна мора бити спектар космичког зрачења и неутрона.

#### 4. Резултати мерења космичког зрачења и неутрона

У последње описаној конфигурацији, анализа је обављена *C.A.E.N.* дигиталним анализатором, који је поред *NaI* добијао сигнале и са два ПМТ-а са Кугле.

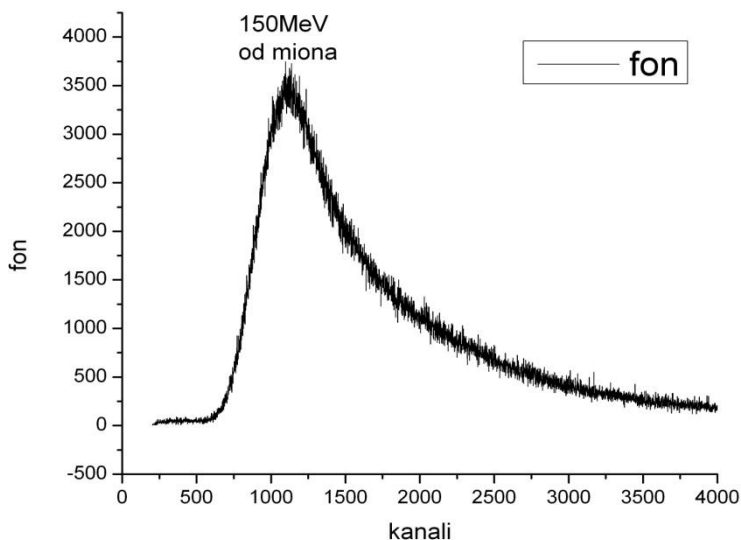
Због ограничених хардверских ресурса (4 независна улаза у *C.A.E.N.* и *HV* модули), поред *NaI* радила су у простору блиска два ПМТ-а повезана на исти *HV* модул. Миони из космичког зрачења су значајан високоенергетски део фонског спектра Кугле, који није једноставно искључити хардверском поставком вето заштите због широке угаоне дистрибуције површинских миона и димензија саме Кугле. Њихово детектовање је са друге стране корисно у смислу енергијске калибрације Кугле. Планирана је и *GEANT 4* симулација одзива Кугле на космичко зрачење, која у првој поставци није неопходна јер се “спектар неутрона” из *AmBe* извора добија одузимањем фонског (мионског) спектра. Поред миона, на ниским енергијама се очекује детекција нискоенергетског космичког зрачења (фотона и електрона), које се успешно анулира коинцидентним мерењем са два ПМТ-а. Ово је поуздано доказано дуговременским мониторингом космичког зрачења у Нискофонској лабораторији Института за физику, пластичним сцинтилаторима (100cm X 100cm X 5cm) који су опремљени са 4 ПМТ-а у смештеним у ћошковима детектора, [3]. Детаљније тестирање геометрије Кугле биће спроведено упаривањем различито позиционираних ПМТ-ова.

Додатни проблем интерпретације доприноса само од неутрона је присуство интензивног гама зрачења из самог извора (4.44MeV). У том смислу тестирање Кугле неутронским извором *Cf-252*, довољно велике активности, било би једноставније интерпретирати.

Природа интеракције неутрона у Кугли је посредна, преко гама зрачења из гадолинијума, али је у поступку дискриминације од промптног гама зрачења (4.44MeV), кашњење реда 10 $\mu$ s, што би се једноставно раздвојило избором закаснелих догађаја из временске криве. У описаној поставци, додатна могућност је коинцидирање са *NaI* подацима.

Мерење фона Кугле и мерење са извором *AmBe*, статистички значајно, добија се брзо после неколико дана због велике ефикасности детекције Кугле. Управо је велики фон Кугле највећи проблем екстраховања корисних података, јер значајно подиже захтеве за капацитетом хард дискова рачунара. Ово би било додатно изражено ако би оперативни били сви ПМТ-ови (у поставци великог експеримента сигнали су сабирани и миксовани за 4 групе од по 3 ПМТ-а).

То је и био случај код ових мерења посебно што се аквизиција података реализовала у моду осцилоскопа (што додатно троши HDD ресурсе). На слици 4 је приказан концидентни спектар фона Кугле (са два ПМТ-а) у коме доминира мионски  $\Delta E$  пик на око  $150\text{MeV}$ . Вишак од *AmBe* извора у односу на мионски фон је свега 6% и он је континуирано размазан на нижим енергијама. На вишим енергијама (мионски пик) слагање два мерења је потпуно.



**Слика 4. Фонски спектар Кугле**

Детаљнија временска спектроскопија закаснелих коинциденција тек ће, у наредном периоду, решити проблем високофонског одзива Кугле и пружити одговоре о самом неутронском спектру Кугле, имајући у виду природу интеракције неутрона:

- када неутрон уђе у Куглу он се термализује (успорава) сукцесивним еластичним расејањем на протонима и у мањој мери језгрима угљеника. Време до захвата на *Gd* језгрима траје до неколико десетина микросекунди. Постављањем гејта на регистрован догађај детекције рикојла (протона) са временом кашњења до тих неколико десетина микросекунди, регистроваће се сумарно фон и гама зрачење емитовано после захвата неутрона на *Gd*. Фон се екстрахује из дела временског спектра након захвата, па се разликом последња два добија чисти спектар из неутронског захвата. Додатна корекција на ометајуће  $4.44\text{MeV}$ -ско гама зрачење је такође неопходна (коинциденцијом са *NaI* детектором).

## 5. Закључак

После 25 година од великог експеримента потраге за супертешким елементом, у коме је велики течни сцинтилатор (Кугла) играо највећу улогу, извршена је серија тестова његових актуелних перформанси.

Иако предстоје још детаљније анализе посебно применом временске спектроскопије и евентуално мерења са другим изворима неутрона, досадашњи резултати карактеристика ПМТ-ова, интеракције гадолинијума и одзива сцинтилатора на високоенергетске мионе наговештавају да “гледање у Куглу” има научну перспективу.

## 6. Захвалница

Овај рад је реализован уз подршку Министарства просвете, науке и технолошког развоја Републике Србије у оквиру пројекта под бројем ОИИ71002.

## 7. Литература

- [1] Александар Зарић, *Истраживање супертежких елемената у геолошким узорцима*, Докторска дисертација, Физички факултет Универзитета у Београду, 1992.
- [2] В. Удовичић *et al.*, Scaling of the neutron yield with peak discharge current in the deuterium plasma focus device. 23<sup>rd</sup> Summer School and International Symposium on the Physics of Ionized Gases, (2006) 527-530.
- [3] А. Драгић *et al.*, The new set-up in the Belgrade low-level and cosmic-ray laboratory. *Nucl. Techn. & Radiat. Protect.* 26 (3) (2011) 181-192.

## LOOKING INTO THE SPHERE-25 YEARS AFTER

**Radomir BANJANAC, Aleksandar DRAGIĆ, Vladimir UDOVIČIĆ, Dejan JOKOVIĆ, Dimitrije MALETIĆ, Nikola VESELINOVIĆ, Mihailo SAVIĆ**  
*Institute of Physics, Pregrevica 118, University of Belgrade, Belgrade, Serbia,*  
[banjanac@ipb.ac.rs](mailto:banjanac@ipb.ac.rs)

### ABSTRACT

The SPHERE, big liquid scintillator is neutron detector, NE343 gadolinium loaded, has the shape of sphere with diameter of one meter and equipped with twelve (5inch) photomultipliers. The SPHERE was the main detector in high-sensitivity searching for hypothetic super-heavy ( $Z=113$ ) element, twenty five years ago. In this work the preliminary test of its actual performances was obtained by analyzing photomultipliers voltage outputs, interaction of gadolinium on neutrons, as well as response to cosmic muons. High energy gamma-rays which following gadolinium 157 captured slow neutrons were detected using NaI (3inch x 3inch) scintillator situated inside the SPHERE. Some information is provided using AmBe neutron source, but its intensive 4.44MeV gamma-rays and high detector efficiency producing high background require detailed time spectroscopy to resolve neutron response itself. Even without it, the obtained performances seem satisfactory now in order to the SPHERE could be useful detector using the same “detecting-alive” but old liquid.



# DETERMINATION OF BIOGENIC FRACTION IN USED CAR TYRES AND IN LIQUID FUELS BY $^{14}\text{C}$ METHOD

**Ines KRAJCAR BRONIĆ, Jadranka BAREŠIĆ, Nada HORVATINČIĆ and  
Andreja SIRONIĆ**

*Ruder Bošković Institute, Zagreb, Croatia, [krajcar@irb.hr](mailto:krajcar@irb.hr)*

## CONTENT

*Measurement of  $^{14}\text{C}$  activity of various types of samples that can be used as fuels for energy production and transport can be used to determine the fraction of biogenic component within the samples. The method is based on different  $^{14}\text{C}$  signatures of the biogenic and the fossil components. Here we present two examples: determination of the biogenic fraction in used car tyres and in liquid fuels. Various measurement methods are discussed in terms of their advantages or main drawback.*

## 1. Introduction

Intensive use of fossil fuels for energy production and transport during 20<sup>th</sup> century caused an increase of  $\text{CO}_2$  concentration in the atmosphere [1]. The increase of  $\text{CO}_2$  concentration can be slowed down by the use of biogenic materials for energy production and/or transport. The "environmentally kind politics" of the European Union stimulates the use of biogenic fuels by lower excise and income tax relief. Thus, there is a need for independent determination of the fraction of the biogenic component in various types of fuels by reliable and accurate methods. One of such methods is the  $^{14}\text{C}$  method, which is based on different content of  $^{14}\text{C}$  in biogenic and in fossil components.  $^{14}\text{C}$  is a cosmogenic isotope, formed in the atmosphere by interaction of cosmic rays (neutrons) with atmospheric  $^{14}\text{N}$ . Together with other carbon isotopes (stable isotopes  $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$ )  $^{14}\text{C}$  combines with atmospheric oxygen forming carbon dioxide, which is used by plants in the photosynthesis, and animals then acquire  $^{14}\text{C}$  by eating the plants. In such a way, a uniform distribution of  $^{14}\text{C}$  in the atmosphere and biosphere is attained. When the animal or plant dies, carbon exchange with the environment is stopped while the radioactive decay continues. This is the basis of the radiocarbon dating method [2]. A pure biogenic material reflects the modern atmospheric  $^{14}\text{C}$  activity, while no  $^{14}\text{C}$  is present in fossil fuels (oil, coal). Therefore, a biogenic fraction of any material of interest is proportional to its  $^{14}\text{C}$  content [3]. The  $^{14}\text{C}$  method is the most reliable method of determination of the biogenic fraction in fuels and it can be applied to various types of fuels used, such as solid communal waste, used car tyres, liquid fuels. It can be used also to determine the biobased content of various manufactured products (e.g., solvents and cleaners, lubricants, construction material, carpets, etc.) [4]. Alternatively, the  $^{14}\text{C}$  method can be applied to determine  $^{14}\text{C}$  content of the  $\text{CO}_2$  produced by combustion of various fuels in waste-to-energy plants [3,5]. Any measuring technique used in  $^{14}\text{C}$  laboratories could be used [6]. Here we present comparison of characteristics (precision, complexity, and price) of various techniques for biogenic fraction determination by the  $^{14}\text{C}$  method. An example of the application of the  $^{14}\text{C}$  methods to the used car tyres will be presented, and a special case of liquid fuels will be discussed.

## 2. <sup>14</sup>C measurement techniques

Different measurement techniques can be applied for <sup>14</sup>C activity measurement [2,6,7,8]. Radiometric measurement techniques are based on counting <sup>14</sup>C decay rate by liquid scintillation counters (LSC), while the accelerator mass spectrometry (AMS) technique counts the number of <sup>12</sup>C, <sup>13</sup>C and <sup>14</sup>C atoms. For LSC measurement a sample can be prepared in form of benzene or as CO<sub>2</sub> absorbed in a cocktail [7,8], while for AMS graphite targets are prepared [e.g., 9].

The main characteristics of the mentioned <sup>14</sup>C measurement techniques – sample type, required mass of carbon, complexity, precision, price, main drawback – are compared in Table 1. Advantages of AMS over LSC techniques are: smaller sample size needed (as little as 20 mg of a sample) and higher precision than radiometric techniques. However, the AMS analysis is more expensive, sometimes the representativeness of a sample may be questionable, and it is more sensitive to any contamination during sample preparation. The LSC-benzene technique has a time-consuming and complex benzene synthesis but gives lower uncertainties than the much simpler technique of CO<sub>2</sub> absorption in absorption-scintillation cocktails [7,8]. The simplest method of direct LSC measurement of liquids mixed with the appropriate scintillation cocktail is applicable only to liquid fuels [10,11] and will be discussed later.

Table 1. Comparison of different techniques for <sup>14</sup>C measurement

Measurement technique	Sample types	Required mass of carbon	Complexity *	Precision *	Price *	Main drawback
AMS	all	~1 mg	3	4	4	representativeness of the sample
LSC-benzene	all	~4 g	4	3	3	time-consuming
LSC-CO <sub>2</sub>	all	~0.6 g	2	2	2	high uncertainty
LSC-direct	liquid fuels	10 ml of liquid	1	1	1	quenching

\* The higher the number, the more complex the method / the lower the uncertainty / the higher the price

## 3. Presentation of the results

Results of measurement are presented as relative specific <sup>14</sup>C activity,  $a^{14}\text{C}$ , expressed in percent of modern carbon (pMC), where 100 pMC is equivalent to the specific activity of 226 Bq/kgC. In further text we use the term "<sup>14</sup>C activity" for  $a^{14}\text{C}$ .

A material can be composed of a biogenic component (of fraction  $f_{bio}$ ) and a fossil component ( $f_f$ ), where  $f_f + f_{bio} = 1$ . The measured <sup>14</sup>C activity of such a mixed material,  $a^{14}\text{C}_{mix}$ , can be presented as a combination of the biogenic and fossil components:

$$a^{14}\text{C}_{mix} = f_f a^{14}\text{C}_f + f_{bio} a^{14}\text{C}_{bio} \quad (1)$$

Since in fossil fuels all <sup>14</sup>C had been decayed, and  $a^{14}\text{C}_f = 0$  pMC, it follows that the fraction of the biogenic component can be determined as

$$f_{bio} = a^{14}\text{C}_{mix} / a^{14}\text{C}_{bio} \quad (2)$$

The value of  $a^{14}\text{C}_{bio}$  must be known. Generally,  $a^{14}\text{C}_{bio}$  refers to the biogenic <sup>14</sup>C activity of the year when the plant grew reflecting the <sup>14</sup>C content of atmospheric CO<sub>2</sub> during biomass growth. Before the anthropogenic activities disturbed the natural distribution of <sup>14</sup>C in the atmosphere and biosphere during the 20th century [2], the value of  $a^{14}\text{C}_{bio}$  was

100 pMC. The  $a^{14}\text{C}_{\text{bio}}$  has been changing in the second half of the 20th century approaching almost twice the natural  $a^{14}\text{C}_{\text{bio}}$  in the early 1960s due to atmospheric bomb tests, and declining since then. The ASTM 6866 [6] recommends the use of 105 pMC for biogenic material originating from last several years. The monitoring of  $^{14}\text{C}$  activity of the atmosphere and biosphere performed in our laboratory showed that the atmospheric and plant  $^{14}\text{C}$  activities have been almost constant during last 10 years, ranging from 103 pMC to 106 pMC (annual mean values) at clean-air sites, i.e., sites not influenced by industry or intensive traffic. In the city of Zagreb the atmospheric  $^{14}\text{C}$  activity is lower, ranging from 101 pMC to 105 pMC, due to intensive use of fossil fuels in industry and traffic, as well as for heating during winter [2]. Therefore, to calculate the fraction of biogenic component (eq. 2) the value  $a^{14}\text{C}_{\text{bio}}$  of 105 pMC will be used.

It should be noted that the value of 105 pMC can be safely used for short-lived biomass that grew during last ~10 years. When the wood, wooden products or wooden pellets produced from a wood grown in the second half of the 20<sup>th</sup> century are used as fuels,  $^{14}\text{C}$  activities may lie in the range between 105 pMC and even ~190 pMC, depending of the year of growth. Such values would yield unrealistic  $f_{\text{bio}}$  values of >100%, if the correct  $a^{14}\text{C}_{\text{bio}}$  values were not used.

#### 4. $^{14}\text{C}$ activity of used car tyres

Certain industries use end-of-life-tyres as fuel to reduce the consumption of traditional fuels and also to reduce their energy bills. The cement industry uses more scrap tyre fuels than any other industry. Tyres provide a heat output equivalent to that of petroleum coke and coal, but also make it possible to reduce fossil  $\text{CO}_2$  emissions due to combustion significantly because of their biomass fraction of 18.3 % and 29.1 % in passenger car tyres and truck tyres, respectively [12]. Car and truck tyres represent a heterogeneous material, and the sampling is a critical step of the complete process of determination of the biogenic fraction in tyres by the  $^{14}\text{C}$  method.

In the radiocarbon laboratory of the RBI we measured several car tyre samples obtained from cement industries. The samples submitted to the laboratory were non-homogeneous bulk samples of ~1 kg and consisted of several types of tyres/plastic material. We explored all 3 sample preparation and measurement techniques. The bulk samples were pre-treated by an acid-base-acid method usually applied in radiocarbon dating laboratories for removal of impurities [8,13]. About 90 g of homogenized tyre scraps was carbonized for 15 min at 400 °C followed by 15 min at 600 °C. An aliquot of 7.5 g (out of ~30 g obtained after the carbonization) was taken for combustion if benzene synthesis followed, while for the  $\text{CO}_2$ -absorption technique an aliquot of ~5 g produced enough  $\text{CO}_2$  to prepare duplicate  $\text{CO}_2$ -cocktails. Once the  $\text{CO}_2$  was obtained, further preparation and measurement procedure was the same as for any other sample [7,8]. For AMS, about 14 mg of pre-treated and homogenized tyre scraps was taken for combustion and subsequent graphite synthesis [9,13].

In Table 2 we present the  $^{14}\text{C}$  activities of several car tyre samples obtained by different measurement techniques, as well as the fraction of biogenic component in these samples determined by equation (2). As expected, the AMS gave the smallest and LSC- $\text{CO}_2$  the highest measurement uncertainties. The AMS subsample (14 mg) may not represent a perfectly homogenized mixture of various types of material in a composed sample which may cause somewhat different  $a^{14}\text{C}$  value from that obtained by the LSC method. Both LSC techniques gave consistent results, although we have not determined  $^{14}\text{C}$

activity of the sample by both LSC techniques. Generally, all obtained  $f_{bio}$  fractions are lower than the global average of biomass fraction of car tyres [12].

**Table 2.  $a^{14}\text{C}$  and fraction of biogenic component  $f_{bio}$  in several car tyre samples determined by different measurement techniques.**

Sample	AMS		LSC-benzene		LSC-CO <sub>2</sub>	
	$a^{14}\text{C}$ (pMC)	$f_{bio}$ (%)	$a^{14}\text{C}$ (pMC)	$f_{bio}$ (%)	$a^{14}\text{C}$ (pMC)	$f_{bio}$ (%)
A	4.32 ± 0.05	4.11 ± 0.05			8.3 ± 1.5	7.9 ± 1.4
B					8.7 ± 0.9	8.3 ± 0.9
C					6.2 ± 1.0	5.9 ± 1.0
D			5.8 ± 0.2	5.5 ± 0.2		
E					6.0 ± 0.9	5.7 ± 0.9

## 5. Liquid fuels

According to the EU Directive 2009/28/EC [14] all (liquid) fuels have to contain at least 10 % of bio-fuel, i.e., blend of biogenic origin, by 2020. Fossil matrix of the fuels is either gasoline (benzine) or diesel (gas oil), while biogenic blends are usually bioethanol, fatty acid methyl esters (FAMEs), hydrogenated vegetable oil (HVO) and others. A technique of direct measurement of the  $^{14}\text{C}$  content in liquid fuel is simple and fast but has a main disadvantage that different liquid colours cause different quenching properties of samples and thus change the measurement efficiency. Various methods have been suggested to overcome this problem (e.g., decolourization, separate quenching curves for various combinations of the fossil matrix and biogenic blends). Some of them resulted in rather complicated data evaluation techniques depending on the type of a sample, both of the fossil matrix and biogenic blend [10,11].

We proposed a new technique that uses liquids of different colours to construct modern and background calibration curves [15]. The proposed technique takes advantage of otherwise main drawback of the method, i.e., quenching parameter of various samples is used as the calibration parameter. In the first step we used various biogenic liquids having different quenching properties to construct “modern calibration curve” (MCC). We apply the conclusion about the constant  $a^{14}\text{C}_{bio}$  during last 10 years, as discussed above, so it was not critical to know exactly the year of production of the biogenic material, as long as it is “recent”. Materials used for MCC construction resemble the biogenic blends added to fossil matrix: various brands of domestic oil (vegetable, sunflower, olive and pumpkin oils) and bioethanol, as well as modern benzene of exactly known  $^{14}\text{C}$  activity (~105 pMC) measured in our laboratory for other purposes. The MCC curve relates the count rate of biogenic materials with their SQP values, where SQP is the standard quench parameter determined by the  $^{152}\text{Eu}$  external source in the LSC Quantulus. In the region of SQP values between 500 and 900 the MCC can be described by a quadratic function (with  $R^2 = 0.997$ ), while for  $\text{SQP} > 700$  it can be approximated by a linear function ( $R^2 = 0.98$ ). Intensive colours of olive and pumpkin oils resulted in low SQP values and lower count rates than other oil brands although all these samples were of recent biogenic origin. At the SQP values below 570, the count rate of the biogenic samples became indistinguishable from the background count rate, so the MCC is valid for the range  $570 < \text{SQP} < 900$ .

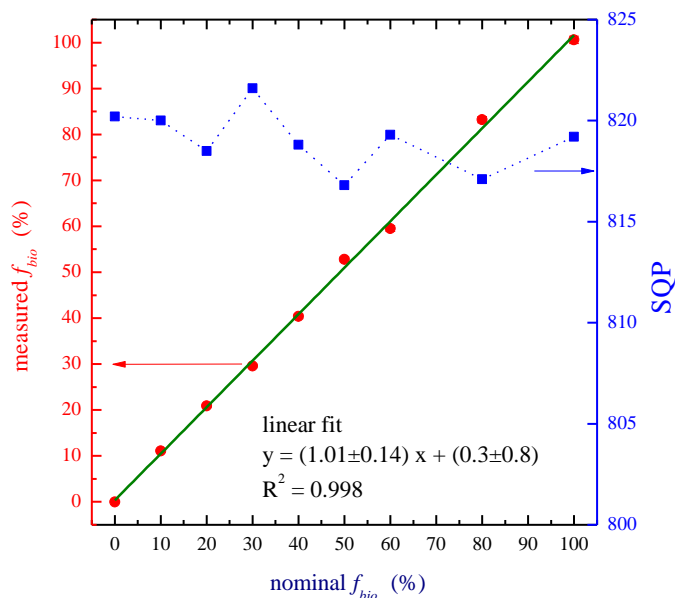
The background calibration curve (BCC) related the SQP and count rates of various background samples, i.e. samples that do not contain  $^{14}\text{C}$ , which can be considered as

“fossil” samples. For construction of BCC we used several 100 % fossil fuel samples, pure benzene and benzene, as well as distilled water. Among the benzene samples, we used  $^{14}\text{C}$ -free benzene used as background sample in our routine  $^{14}\text{C}$  dating measurements. The background count rate was linearly correlated with the SQP values in the range of SQP values from 400 (water) to 900 (benzene),  $R^2 = 0.94$ .

The procedure of data evaluation for the unknown sample consists of measurement of SQP and count rate, determination of background count rate corresponding to the measured SQP value by using BCC, and determination of the count rate of the biogenic sample corresponding to the measured SQP values by using MCC. The fraction of the biogenic component in the sample is then simply calculated as the ratio of net count rates of the sample to the biogenic material [15].

All samples, including modern and background standards, should be measured under the same conditions. Our experiments showed that the optimal measurement conditions are the following: low-potassium glass vials of 20 ml, scintillation cocktail UltimaGoldF (UGF), the ratio sample:UGF of 10 ml : 10 ml, spectra recorded by LSC Quantulus evaluated in the window 124 – 570 channels [15]. The lowest detectable biogenic fraction is 0.5 % for measurement duration of 600 minutes.

To test the method we prepared various mixtures of fossil and biogenic liquids in the nominal concentration ranges of the biogenic component from 0 % to 100 %. The following sets of mixture were analysed: vegetable oil and fossil fuel that both have approximately the same value of the SQP parameter, bioethanol and fossil fuel with different SQP values, bioethanol and  $^{14}\text{C}$ -free benzene. In all cases, the calculated biogenic fraction agreed well with the nominal fraction. As an example, in Figure 1 we show the results for mixtures of vegetable oil and fossil fuel. The measured  $f_{bio}$  values determined by the described data evaluation technique agree very well with the nominal  $f_{bio}$  values (linear correlation shown in Figure 1 with  $R^2 = 0.998$ ), while the SQP values of all mixtures remained more-or-less constant.



**Figure 1.** Comparison of the measured biogenic fraction  $f_{bio}$  (left ordinate) in prepared mixtures of vegetable oil and fossil fuel with the nominal fraction shown on x axis. The SQP values of the mixtures are shown also (right ordinate).

In addition, mixtures of two different biogenic liquids (vegetable oil and bioethanol, vegetable oil and olive oil) having different quenching properties were studied to examine the reliability of the method when the mixture components have different SQP values, while both are of biogenic origin. Both SQP values and count rates changed continuously as the mixture composition changed, and the measured biogenic fraction ranged from 97 % to 120 %. These results indicate that the method should be improved. Several cocktails of both biogenic liquids and fossil fuels were measured repeatedly during 90 days after preparation of the cocktails with UGF. No change in either SQP or count rate was observed, proving that the prepared cocktails are stable during at least 3 months after preparation.

The obtained results were in good agreement with those obtained by different evaluation technique, both for the benzene and diesel as the fossil matrix and various biogenic blends [15]. Our method depends neither on the fossil matrix or the biogenic additive type, it does not require  $^{14}\text{C}$  spikes or other expensive standards, and furthermore, one does not need to know the qualitative composition of the fuels, as it is the case for other evaluation techniques.

## 6. Conclusion

Determination of the fraction of the biogenic component in various materials has become recently a very interesting topic both for the scientists and for various industries. It is also important for the global environment, because the use of biogenic materials for energy production and transport may lower the increase of atmospheric concentration of  $\text{CO}_2$  of fossil origin. The  $^{14}\text{C}$  method is a very powerful method for determination of the biogenic fraction.

Different measurement techniques have been developed mainly for the radiocarbon dating application, and they can be successfully applied also for the purpose of biogenic fraction determination. Methods differ in complexity and the required mass of a sample. The AMS method requires about 1000 times less sample than the LSC techniques, and has a lower measurement uncertainty, which makes it the best choice for the dating application in e.g. archaeology or art history. However, it is quite expensive and the small sample (range of mg) may not be a representative sample of a non-homogeneous composed mixtures, such as used car tyres or communal waste. The LSC techniques (benzene synthesis and  $\text{CO}_2$ -absorption), although of different complexity and uncertainties, gave consistent results for the biogenic fraction in car tyres.

The innovative data evaluation technique of the direct measurement of  $^{14}\text{C}$  activity of liquid fuels in LSC is presented and discussed. The method still needs some improvements, especially for highly quenched liquids, but it gives comparable results with other data evaluation techniques, and does not depend on the type of the fuel mixture.

## 7. References

- [1] I. J. Dijs, E. van der Windt, L. Kaihola L and K. van der Borg. Quantitative determination by  $^{14}\text{C}$  analysis of the biological component in fuels. *Radiocarbon* 48 (2006) 315–323.
- [2] I. Krajcar Bronić, B. Obelić, N. Horvatinčić, J. Barešić, A. Sironić and K. Minichreiter. Radiocarbon application in environmental science and archaeology in Croatia. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*619 (2010) 491–496.

- [3] J. Mohn, S. Szidat, J. Fellner, H. Rechberger, R. Quartier, B. Buchmann and L. Emmenegger. Determination of biogenic and fossil fuel CO<sub>2</sub> emitted by waste incineration based on <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> and mass balances. *Bioresource Technology* 99 (2008) 6471–6479.
- [4] G. A. Norton and S. L. Devlin. Determining the modern carbon content of biobased products using radiocarbon analysis. *Bioresource Technology* 97 (2006) 2084–2090
- [5] G. K. P. Muir, S. Hayward, B. G. Tripney, G.T. Cook, P. Naysmith, B.M.J. Herbert, M.H. Garnet and M. Wilkinskon. Determining the biomass fraction of mixed waste fuels: A comparison of existing industry and <sup>14</sup>C-based methodologies. *Waste management* 35 (2015) 293-300.
- [6] ASTM D6866-12 Standard Test Methods for Determining the Biobased Content of Solid, Liquid, and Gaseous Samples Using Radiocarbon Analysis. ASTM International. 2012.
- [7] I. Krajcar Bronić, N. Horvatinčić, J. Barešić and B. Obelić. Measurement of <sup>14</sup>C activity by liquid scintillation counting. *Applied Radiation and Isotopes* 67 (2009) 800–804.
- [8] N. Horvatinčić, J. Barešić, I. Krajcar Bronić and B. Obelić. Measurement of low <sup>14</sup>C activities in liquid scintillation counter in the Zagreb Radiocarbon Laboratory. *Radiocarbon* 46 (2004) 105-116.
- [9] I. Krajcar Bronić, N. Horvatinčić, A. Sironić, B. Obelić, J. Barešić and I. Felja. A new graphite preparation line for AMS <sup>14</sup>C dating in the Zagreb radiocarbon laboratory. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 268 (2010) 943-946.
- [10] R. Krištof and J. Kožar Logar. Direct LSC method for measurements of biofuels in fuel. *Talanta* 111 (2013) 183–188.
- [11] R. Idoeta, E. Pérez, M. Herranz and F. Legarda. Characteristic parameters in the measurement of <sup>14</sup>C of biobased diesel fuels by liquid scintillation. *Applied Radiation and Isotopes* 93 (2014) 110–113.
- [12] C. Clauzade. Using used tyres as an alternative source of fuel: Reference values and characterisation protocols. Reference document. ALIAPUR, R/D Department. July 2009.
- [13] A. Sironić, I. Krajcar Bronić, N. Horvatinčić, J. Barešić, B. Obelić and I. Felja. Status report on the Zagreb Radiocarbon Laboratory – AMS and LSC results of VIRI intercomparison samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 294 (2013) 185-188.
- [14] European Parliament and Council Directive 2009/28/EC. Promotion of the use of energy from renewable sources. *Off J Eur Commun* L140 (2009) 16-62.
- [15] I. Krajcar Bronić, J. Barešić, N. Horvatinčić, R. Krištof and J. Kožar-Logar. Nova tehnika određivanja udjela biogene komponente u tekućim goprivima metodom <sup>14</sup>C. In Croatian with English abstract. New technique of determination of biogenic fraction in liquid fuels by the <sup>14</sup>C method). In: B. Petrinc, T. Bituh, M. Milić and N. Kopjar, eds. *Proc. 10<sup>th</sup> Symp. of Croatian Radiation Protection Association*, pp. 390-395, Šibenik, Croatia, 15-17 April 2015. HDZZ, Zagreb, 2015.

## DETERMINATION OF BIOGENIC FRACTION IN USED CAR TYRES AND IN LIQUID FUELS BY $^{14}\text{C}$ METHOD

**Ines KRAJCAR BRONIĆ, Jadranka BAREŠIĆ and Nada HORVATINČIĆ and  
Andreja SIRONIĆ**

*Ruder Bošković Institute, Zagreb, Croatia, [krajcar@irb.hr](mailto:krajcar@irb.hr)*

### ABSTRACT

Intensive use of fossil fuels for energy production and transport during 20<sup>th</sup> century caused an increase of  $\text{CO}_2$  concentration in the atmosphere. The increase of  $\text{CO}_2$  concentration can be slowed down by the use of biogenic materials for energy production and/or transport. One of the method for determination of the fraction of the biogenic component in any type of fuel or waste is the  $^{14}\text{C}$  method, which is based on different content of  $^{14}\text{C}$  in biogenic and in fossil component: while the biogenic component reflects the modern atmospheric  $^{14}\text{C}$  activity, no  $^{14}\text{C}$  is present in fossil fuels. The  $^{14}\text{C}$  method is the most reliable method of determination of the biogenic fraction in various materials. It can be applied to various types of fuels used, such as solid communal waste, used car tyres, liquid fuels, even to the  $\text{CO}_2$  produced by combustion of various fuels. Any measuring technique used in  $^{14}\text{C}$  laboratories could be used. Here we present comparison of characteristics (precision, complexity, and price) of various techniques for biogenic fraction determination by the  $^{14}\text{C}$  method in used car tyres, based on our experience.

Determination of biogenic fraction in liquid fuels is of special interest because all (liquid) fuels have to contain at least 10 % of bio-fuel, i.e., blend of biogenic origin, by 2020 (EU Directive 2009/28/EC). A technique of direct measurement of the  $^{14}\text{C}$  content in liquid fuel is simple and fast but has a main disadvantage: different liquid colours cause different quenching properties and changes in the measurement efficiency. Various methods have been suggested to overcome this problem (e.g., decolourization, separate quenching curves for various combinations of the fossil matrix and biogenic blends). We have proposed a new technique that uses liquids of different colours to construct modern and background calibration curves. The technique depends neither on the fossil matrix or the biogenic additive type. Lowest detectable biogenic fraction is 0.5 %. A case/problem of highly quenched samples still remains to be solved.



# WIRELESS SENSOR NETWORK USING CLOUD COMPUTING FOR RADIATION AND POLLUTION MONITORING: PROPOSAL FOR INNOVATIVE PILOT PROJECT

**Gordana LAŠTOVIČKA-MEDIN**

*Faculty of Science and Mathematics, University of Montenegro*

## ABSTRACT

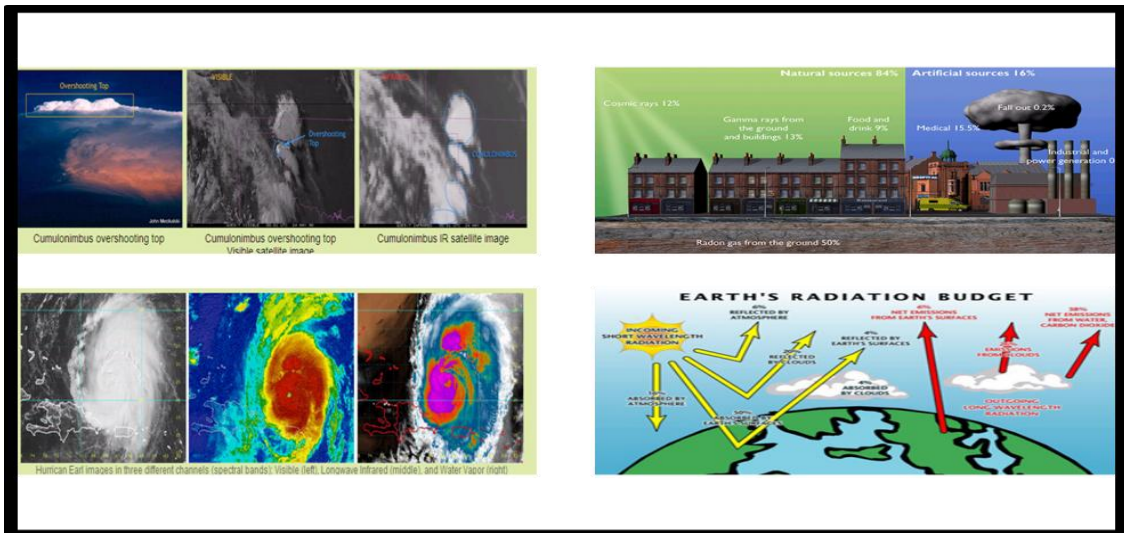
*This paper presents a survey on applications of wireless sensor networks using cloud computing for the purpose of radiation and pollution measurement. Popularity of cloud computing is increasing daily in distributed computing environment. Cloud computing provides applications, platforms and infrastructure over the internet. On the other hand, wireless sensor networks have been seen as one of the most essential technologies for the 21<sup>st</sup> century, where distributed, spatially connected sensor nodes automatically form a network for data transmission and reception among themselves. Due to miniaturization of communication technology, cloud computing is widely used for security and easy access to data in mobile computing and environment. It is well known that Chernobyl geographical fallout has had strong link to weather circumstances, and as a consequence regions have been geographically differently affected by nuclear accident. From other side Fukushima nuclear hazard was consequence of choices: ignorance of seismology conditions and climate change that both further triggered nature treat causing technology hazard and consequently environmental hazard with enormous radiation. The aim of research is to bring different sensor platforms such as radiation monitoring, weather forecasting and seismology under one common roof. In Montenegro, at present moment, there is no developed wireless sensor radiation monitoring, nor cloud computing implemented in radiation measurements.*

## 1. Introduction

Rapid progress and at the same time significant decline in the cost of sensors and wireless technology have given an additional dimension and a new perspective into radiation protection and nuclear and space radiation exploration. To make radiation data transparent it is important to have networks of sensors which communicate wirelessly and then send them to internet. The communication among sensor nodes using Internet is often a challenging issue. It makes a lot of sense to integrate sensors networks with Internet [1]. With the upcoming technique of wireless sensing networks (WSN), it becomes possible to seamlessly couple the physical environment with the digital world. Since it became possible to develop low-cost wireless networks, the implementation of wireless sensor networks to monitor physical or environmental conditions has become possible, such as temperature, humidity, pressure, solar radiation, radioactivity, and to cooperatively move data through the network to a main server.

The first research question in this paper was: how to develop a low-cost, reusable, and easy-to-use wireless sensing network for a given use-case – radiation monitoring in connection to climate changes and weather conditions. The second research question was to define the best architecture to meet the requirements. At present, there is no wireless sensor radiation network in Montenegro and cloud computing is not implemented in radiation data storage. There is also a lack of web-visualized data. It would be valuable to conduct citizen project in future in order to build satellite

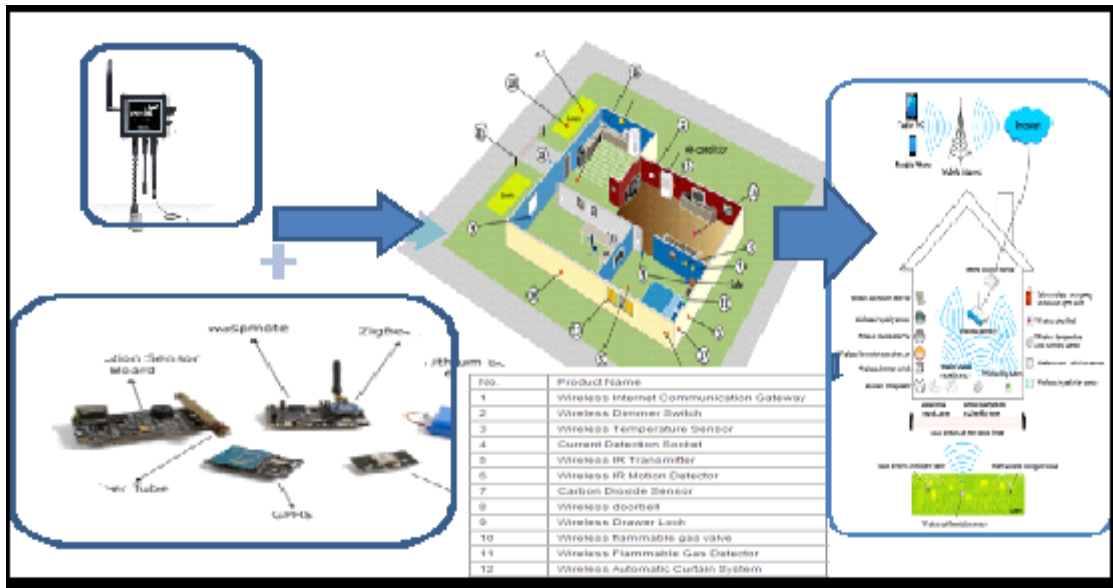
meteorology station which would be of great support to measurements gathered by equipment installed on earth. To grasp the whole picture and to develop big thinking it is necessary to connect earth and space radiation monitoring (see Figure 1) and to connect data globally. This research was supported by Ministry of Science and Technology. The research scope and boundaries are defined by the research questions as posed above. This research is innovative and scientifically relevant since it is focused on the current lack of existing low-cost, reusable and publicly accessible wireless sensing networks in Montenegro.



**Figure 1: Monitoring of the weather conditions through satellite meteorology stations (top left and bottom left figures); Radiation sources: natural and artificial (top right figure); Earth's radiation budget (bottom right picture)**

## 2. Building technology platforms

Wireless sensor networks make it possible to integrate devices with the virtual world of the Internet and to interact by tracking, sensing, and monitoring objects and their environment as it is illustrated in Fig. 2. The essence of wireless sensor networks is that wireless sensor network devices can generate and retrieve information about and from objects and their environment. Moreover it promotes citizen awareness and awareness networks. Wireless sensing network with cloud computing is highly recommended and becomes the desirable approach towards open access, open content and open knowledge through open software and open hardware. All of it becomes possible just through open standards, open licensing, knowledge commons and digital rights. Smart cities need smart radiation and smart pollution kits, collective awareness platforms (harnessing collective intelligence), and social web entrepreneurs. Currently within digital social innovation the most relevant initiatives are the European Innovative Partnerships, Smart Cities, and the European Cloud Computing Strategy. Their main goals are to promote and standardize pan-European technology platforms.



**Figure 2: Smart radiation and pollution kits for smart homes and smart cities supported by open data, open access and approach where citizen become scientists.**

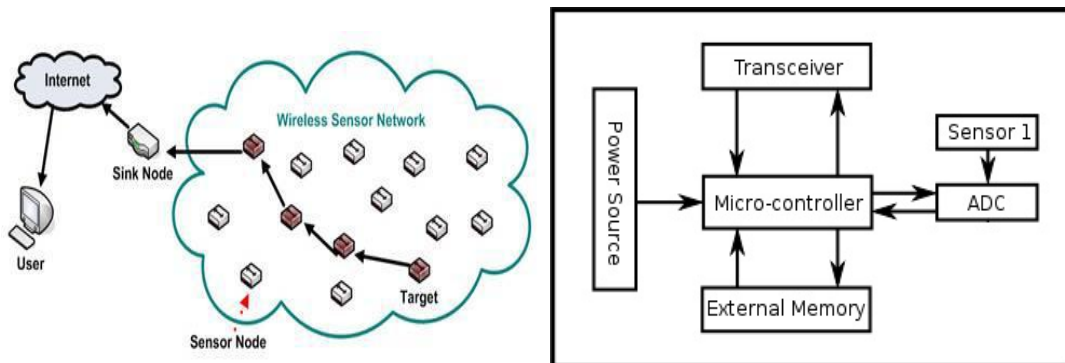
### 3. The essentials of wireless sensing radiation and pollution networks (WSN)

Wireless sensor networks combine three pieces of equipment: a microcomputer/microcontroller, a sensor, and wireless data communications. A sensor is a device that can measure a physical phenomenon (temperature, pressure, radiation, humidity). In other words, a wireless sensor network is a system consisting of spatially distributed autonomous sensors to cooperatively monitor physical or environmental conditions, such as temperature, sound, vibration, pressure, radioactivity, solar radiation. Here we will give brief overview of important terms:

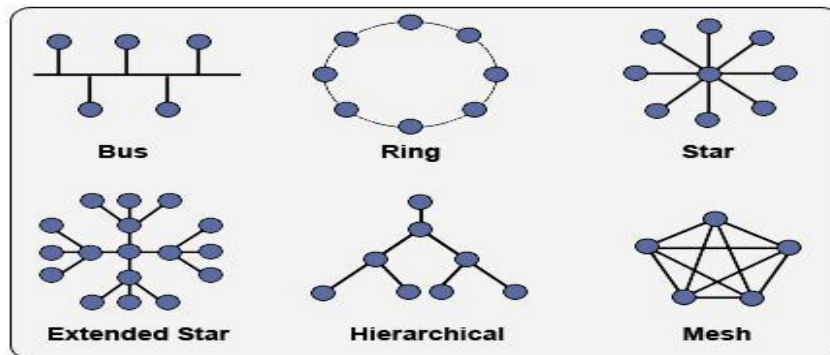
1. Sensor node: A basic unit in a sensor network, with processor, memory, wireless modem and power supply;
2. Network topology: A connectivity graph with nodes and edges, and links.
3. Routing: the process of determining a network path from resource to destination.
4. Resources: A combination of sensors, communication links, processors, memory, and node energy;
5. Data storage: the storage can be local on the node (where the data is generated) or at a server.

Typical architecture of WSN is shown in Figure 3[2,3]. Base station is used as the gateway between the sensor nodes the internet. However, the definition of base station is not clearly given in WSN literature. Figure 3 (display on the right side) shows a sensor node consisting of a basic unit in a sensor network, with processor, memory, wireless modem and power supply. Each node in a sensor network is typically equipped with a radio transceiver or other wireless communication device, a small microcontroller, and an energy source, usually a battery. A sensor network is a

computer network composed of a large number of sensor nodes. Usually these devices are small and inexpensive, so that they can be produced and deployed in large numbers. One of the crucial targets is to meet standards for wireless communication from sensor to base station. Figure 4 gives an overview of common network topologies. Comparison between Bluetooth, XBee and WiFi is given in Table 1. Routing protocols in WSN are broadly divided into two categories: Network Structure based and Protocol Operation based. Network Structure based routing protocols are divided into flat-based routing, hierarchical-based routing, and location-based routing. Protocol Operation based are divided into Multipath based, Query based and others.



**Figure 3: Typical architecture of WSN (on the left side); Sensor network (on the right side) [2].**



**Figure 4: Network protocol [2]**

**Table 1: Specifications of common wireless standards (right)**

Radio Interfaces					
Model	Protocol	Frequency	txPower	Sensitivity	Range *
XBee-802.15.4-Pro	802.15.4	2.4GHz	100mW	-100dBm	7000m
XBee-ZB-Pro	ZigBee-Pro	2.4GHz	50mW	-102dBm	7000m
XBee-868	RF	868MHz	315mW	-112dBm	12km
XBee-900	RF	900MHz	50mW	-100dBm	10Km
LoRa	RF	868 and 915 MHz	14 dBm	-137dBm	21+Km
WiFi	802.11b/g	2.4GHz	0dBm - 12dBm	-83dBm	50m-500m
GPRS Pro and GPRS+GPS	-	850MHz/900MHz/1800MHz/1900MHz	2W(Class4) 850MHz/900MHz, 1W(Class1) 1800MHz/1900MHz	-109dBm	- Km - Typical carrier range
3G/GPRS	-	Tri-Band UMTS 2100/1900/900MHz Quad-Band GSM/EDGE, 850/900/1800/1900 MHz	UMTS 900/1900/2100 0,25W GSM 850MHz/900MHz 2W DCS1800MHz/PCS1900MHz 1W	-106dBm	- Km - Typical carrier range
Bluetooth Low Energy	Bluetooth v.4.0 / Bluetooth Smart	2.4GHz	3dBm	-103dBm	100m

\* Line of sight, Fresnel zone clearance and 5dBi dipole antenna.

#### 4. Cloud Computing and Radiation Monitoring

Cloud is a term used to describe both a platform and type of application. Server in the cloud computing can be physical machine or virtual machine. Many formal definitions have been proposed in both academia and industry. The one provided by U.S. NIST (National Institute of Standard and Technology) [4]:

*Cloud computing is a model for enabling convenient, on demand network access to a shared pool of configurable computing resources (e.g., networks, servers, storage, applications, and services) that can be rapidly provisioned and released with minimal management effort or service provider interaction [4].*

Figures 5 and 6 show typical architecture for cloud computing and WSN. A wireless sensor network, as already mentioned, consists of spatially distributed autonomous sensors in order to cooperatively monitor physical or environmental conditions, such as pressure, humidity, motion, pollutions, wind speed, solar radiation, radon etc. Actually, the development of wireless sensor networks was motivated by military applications such as battlefield surveillance. For more details we refer to [5-7].

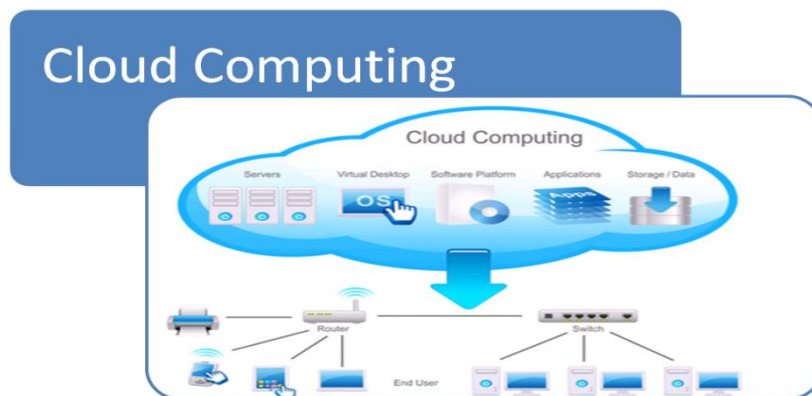


Figure 5: Typical architecture of WSN and cloud computing

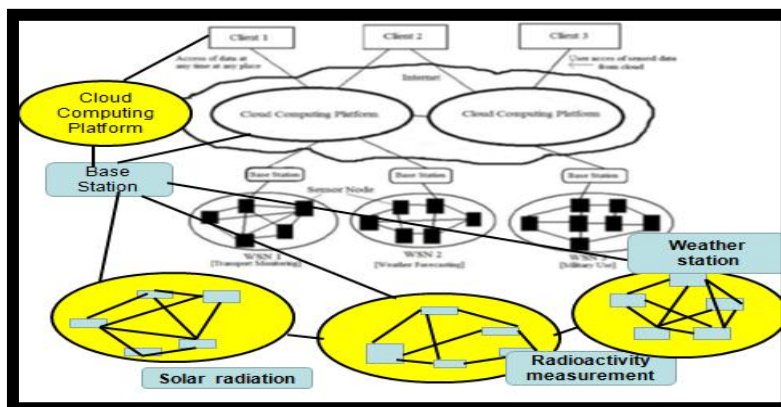


Figure 6: Typical architecture of WSN and cloud computing (adapted from [4])

## 5. Cloud computing with Wasp mote and Meshlium

Figure 7 shows wireless sensor network with Wasp mote and Meshlium [8]. The antenna is plugged to the appropriate modules and the sensor board is placed to be used in Wasp mote. The sensor data gathered by the Wasp mote Plug & Sense nodes are sent to the Cloud by Meshlium, the Gateway router specially designed to connect sensor networks to the Internet via Ethernet, WiFi and 3G interfaces. Meshlium (Figure 8) is Linux router which works as the Gateway of the Wasp mote sensor networks. It can contain 5 different radio interfaces: WiFi 2.4 GHz, WiFi 5GHz, 3G/GPRS, Bluetooth and Xbee/LoRa. As well as this, Meshlium can also integrate a GPS module for mobile and vehicular applications and can be solar or battery powered. These features along with an aluminium IP-65 enclosure allows Meshlium to be placed anywhere outdoor. The new Meshlium Xtreme allows to detect iPhone devices and in general any devices which works with WiFi or Bluetooth interfaces.

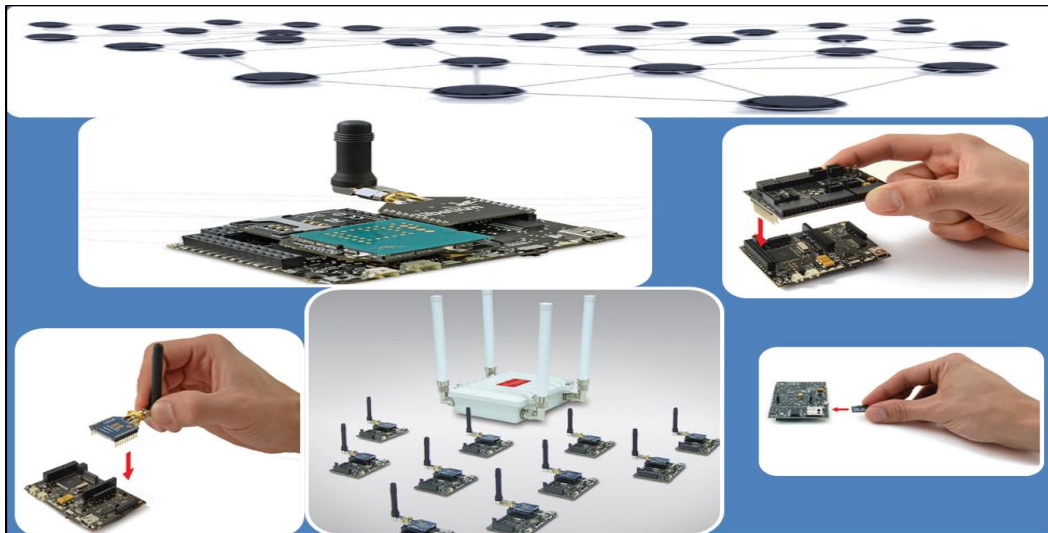


Figure 7: Wireless sensor network with Wasp mote and Meshlium ([8])

**Meshlium** is a Linux router which works as the Gateway of the Wasp mote Sensor Networks. It can contain 5 different radio interfaces: WiFi 2.4GHz, WiFi 5GHz, 3G/GPRS, Bluetooth and Xbee/LoRa. As well as this, Meshlium can also integrate a GPS module for mobile and vehicular applications and be solar and battery powered. These features along with an aluminium IP-65 enclosure allows Meshlium to be placed anywhere outdoor. Meshlium comes with the Manager System, a web application which allows to control quickly and easily the WiFi, Xbee/LoRa, Bluetooth and 3G/GPRS configurations along with the storage options of the sensor data received.

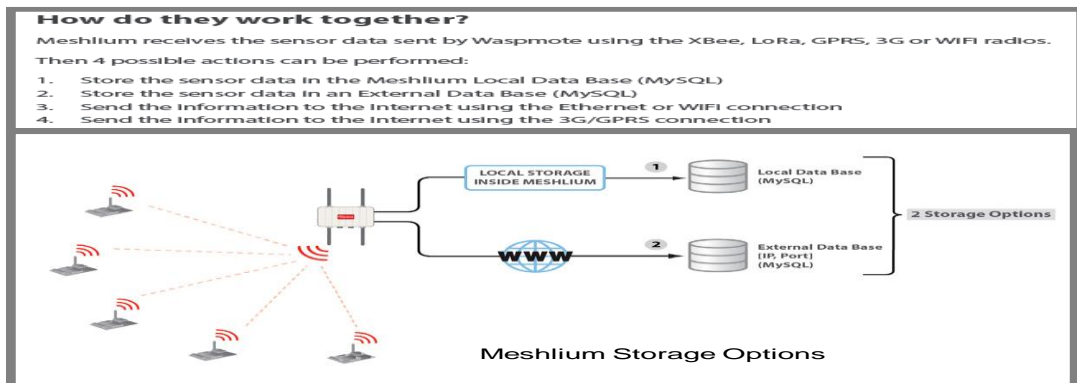
The new Meshlium Xtreme allows to detect iPhone and Android devices and in general any device which works with WiFi or Bluetooth interfaces. The idea is to be able to measure the amount of people and cars which are present in a certain point at a specific time, allowing the study of the evolution of the traffic congestion of pedestrians and vehicles.

More Info: <http://www.llbellum.com/meshlium>



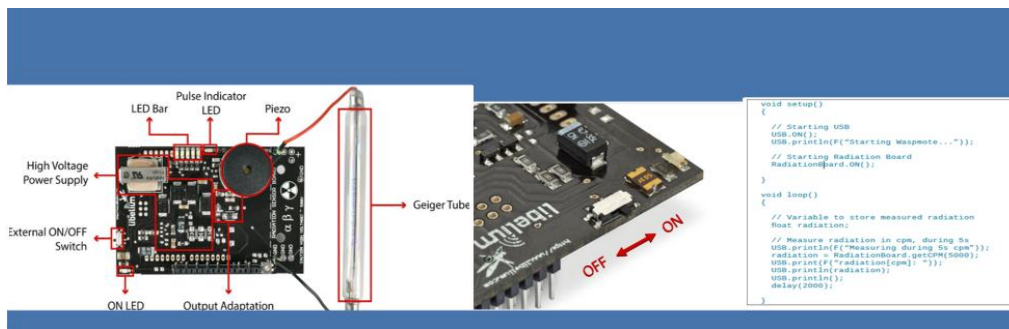
Figure 8: Meshlium: Meshlium is Linux router which works as the Gateway of the Wasp mote sensor networks [retrieved from [8])

The way Wasmote is integrated to Meshlium is explained in Figure 8. Information can be transmitted to the Internet using the Ethernet, WiFi and 3G/GPRS interfaces. The possible storage options are displayed in Figure 9.

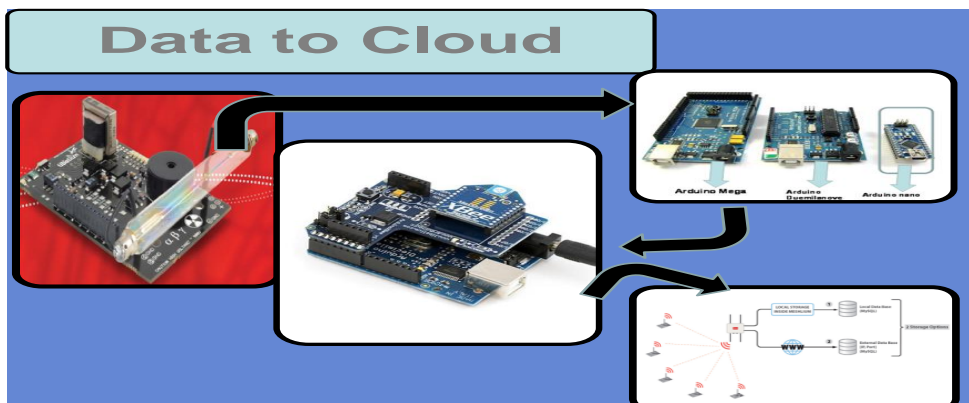


**Figure 9: Meshlium Storage Options [8]**

Figure 10 shows Libelium GM counter while Figure 11 shows the communication between GM radiation board and router Meshlium. Arduino as open platform is at heart of the project.

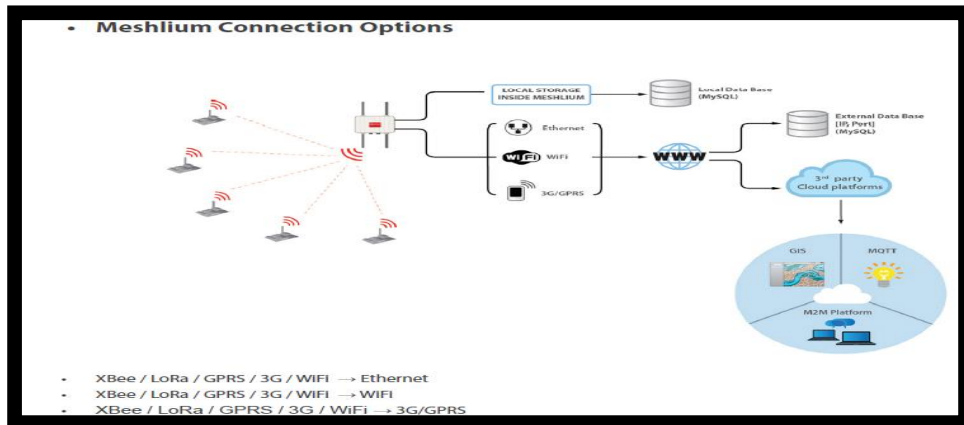


**Figure 10. Wasmote GM radiation board**



**Figure 11: Communication between GM radiation board and router Meshlium: radiation data storage**

Figure 12 shows comprehensive Meshlium’s connection options [8]. Meshlium receives the sensor data sent by Wasp mote using the radio module and it will store the frames in the Local Data Base. That can be done in an automatic way now thanks to the new Sensor Parser. The Sensor Parser is a new feature for Meshlium (version 3.0.5 or older). It is a new software system which is able to do the following tasks in an easy and transparent ways: receive frames from XBee, LoRa, GPRS, 3G or WiFi (with the Data Frame format); parse these frames; store the data in a local Database; synchronize the local Database with an external Database [8].



**Figure 12: Meshlium Connection Options ([8])**

Over the Air Programming is also possible once the node has been installed. With this technique it is possible to reprogram wirelessly one or more Wasp mote sensor nodes at the same time by using a laptop and the Wasp mote Gateway.

GM radiation board can be easily added to any Wasp mote wireless sensing network (Figure 13), or many Wasp mote monitoring probes can be interconnected in one module.



**Sensor Probes**

Sensor probes can be easily attached by just screwing them into the bottom sockets. This allows you to add new sensing capabilities to existing networks just in minutes. In the same way, sensor probes may be easily replaced in order to ensure the lowest maintenance cost of the sensor network.

**Figure 13: Wasp mote sensor probes (adapted from [8])**



## 6. Conclusions

This paper explores the possibility to use Wasmote wireless sensor network in conjunction with Linux router Meshlium. Arduino as a microcontroller is at the heart of the project. A lot of work is done towards uploading Arduino's libraries and significant amount of sensors compatible with Arduino platforms have been tested. The crucial request is building the WSN protocol and sending data to Cloud router. We believe that such project which is extremely delicate and sophisticated, in particular from the point programming and adapting standards into one common framework, can be done as citizen project and as part of social digital innovation supported by EU projects in future. Current research is supported by Montenegro's Ministry of Science.

## 7. Literature

- [1] C. Ulmer, L. Alcalai and S. Yalamanchili, Wireless distributed sensor networks for in-situ exploration of Mars, Work in progress for NASA Technical Report, Available in <http://users.ece.gatech.edu>
- [2] E.H. van Tol-Homan, Wireless Sensor Networks, Theses, TU Delft, Faculty of Science of Education, 7st of March, 2013
- [3] Sanjit Kumar Dash, Subasish Mohapatra<sup>2</sup> and Prasant Kumar Pattnaik, A Survey on Applications of Wireless Sensor Network Using Cloud Computing, *International Journal of Computer Science & Emerging Technologies (E-ISSN: 2044-6004)* 50 Volume 1, Issue 4, December 2010
- [4] P. Mell and T. Grance, „Draft NIST Working Definition of Cloud Computing – v15“, 21. August 2005, 2008
- [5] Römer, Kay; Friedemann Mattern (December 2004), "The Design Space of Wireless Sensor Networks", *IEEE Wireless Communications* 11 (6): 54–61, doi:10.1109/MWC.2004.1368897
- [6] Thomas Haenselmann (2006-04-05). Sensor networks. *GFDL Wireless Sensor Network textbook*.
- [7] Tiwari, Ankit et. al, Energy-efficient wireless sensor network design and implementation for condition-based maintenance, *ACM Transactions on Sensor Networks (TOSN)*
- [8] <http://www.libelium.com/development/wasmote/documentation/>

## **STUDIJA BEŽIČNE SENZORSKE PLATFORME UZ PODRŠKU ‘CLOUD’ PROGRAMIRANJA ZA POTREBE MONITORINGA I ZAŠTITE OD ZRAČENJA: PREDLOG PILOT PROJEKTA**

**Gordana LAŠTOVIČKA-MEDIN**

*Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet Crne Gore*

### SADRŽAJ

Ova studija predstavlja prijedlog projekta kojim bi se po prvi put u Crnoj Gori pristupilo izradi sofisticirane i jedinstvene platforme senzora koja bi povezala platforme za mjerenje i zaštitu od zračenja sa platformama za mjerenje vremenskih uslova i promjena u intenzitetu solarnog zračenja. Senzori bi bežično međusobno komunicirali i bili poslani u Cloud ruter. Vizualizacija podataka demokratizuje nauku i omogućava participaciju građana. Predlog je zasnovan na Wasmote tehnologiji i Meshlium router-u. Istraživanje je finansiralo Ministarstvo za nauku Crne Gore.

# INTERKOMPARACIJE KAO VAŽAN ELEMENT OSIGURANJA KVALITETA U METROLOGIJI JONIZUJUĆEG ZRAČENJA

**Miloš ŽIVANOVIĆ<sup>1</sup>, Đorđe LAZAREVIĆ<sup>1,2</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup>,  
Srbojlob STANKOVIĆ<sup>1,2</sup>, Sandra ČEKLIĆ<sup>1,3</sup>, Katarina KARADŽIĆ<sup>1,2</sup>**

1) *Institut za nuklearne nauke Vinča, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Univerzitet u Beogradu, Srbija, milosz@vinca.rs*

2) *Elektrotehnički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Srbija*

3) *Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Srbija*

## SADRŽAJ

Interkomparacije predstavljaju važnu aktivnost koja dokazuje da su usluge koje pružaju laboratorije za etaloniranje u skladu sa međunarodno prihvaćenim standardima. U oblasti metrologije jonizujućeg zračenja, najčešća su dva tipa interkomparacija – interkomparacije sa termoluminiscentnim dozimetrima i interkomparacije sa jonizacionim komorama ili drugim transfer instrumentima. U ovom radu su predstavljeni rezultati oba tipa interkomparacija u periodu od 2008. do 2014. godine. Takođe su analizirani rezultati interkomparacija i objašnjeno je na koji način su otklonjeni uočeni problemi.

### 1. Uvod

Međunarodni metrološki sistem (IMS) predstavlja okvir za metrologiju doza jonizujućeg zračenja i organizovan je tako da obezbedi sledljivost svakog merenja preko odgovarajućih primarnih i sekundarnih dozimetrijskih laboratorija (PSDL i SSDL) do primarnog etalona [1]. Na vrhu IMS se nalazi francuski Biro za tegove i mere (BIPM), koji zajedno sa drugim primarnim laboratorijama u IMS pruža usluge kalibracija sekundarnim laboratorijama i organizuje interkomparacije [2, 3].

SSDL Instituta za nuklearne nauke „Vinča“ (VINS-SSDL) je deo Laboratorije za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine. VINS-SSDL je članica mreže SSDL-ova koju je uspostavila Međunarodna agencija za atomsku energiju (IAEA) u saradnji sa Svetskom zdravstvenom organizacijom (WHO) od 1978 godine [4]. U nacionalnom metrološkom sistemu, VINS-SSDL je imenovani institut (DI) za jonizujuće zračenje od 2014. godine, zbog čega je uključen u dodatak A baze podataka ključnih interkomparacija (KCDB), gde se nalazi lista instituta učesnika sporazuma Međunarodnog komiteta za tegove i mere o uzajamnom priznavanju etalona, rezultata merenja i uverenja o etaloniranju (CIPM MRA) [5].

VINS-SSDL je uspostavio sistem kvaliteta i spoljnu akreditaciju prema standardu ISO/IEC 17025:2006 [6]. Veoma bitan deo sistema osiguranja kvaliteta predstavljaju interkomparacije, u kojima VINS-SSDL redovno učestvuje. U ovom radu su predstavljeni rezultati poslednjih sedam godina učešća u interkomparacijama uz kratku analizu rezultata.

### 2. Materijali i metode

#### 2.1 Merne mogućnosti VINS-LRM

U ovom radu će biti predstavljeni rezultati interkomparacija u oblastima dozimetrije u radioterapiji, zaštiti od zračenja i dijagnostičkoj radiologiji. Svi kvaliteti zračenja koji se koriste u VINS-LRM u okviru akreditacije, uspostavljeni su u skladu sa standardom ISO 4037-1 [7], odnosno u skladu sa IEC 61267 [8] u slučaju dijagnostičke radiologije.

U laboratoriji se koristi 6 izvora izotopa  $^{60}\text{Co}$ , 3 izvora izotopa  $^{137}\text{Cs}$  i industrijski generator X-zračenja Philips MG-320. Referentne vrednosti odgovarajuće veličine se određuju sekundarnim etalonima sledljivim do primarnog standarda BIPM. U tabeli 1 je dat pregled mernih mogućnosti VINS-LRM, uz navođenje standarda po kome se vrše etaloniranja.

**Tabela 1. Merne mogućnosti VINS-SSDL**

Područje primene	Sekundarni standard	Referentna veličina	Pokriveni kvaliteti zračenja [7, 8]	Standard	Proširena merna nesigurnost $k=2$
Radioterapija	PTW 30012 s/n 172, 0.6 cm <sup>3</sup>	Kerma u vazduhu	S-Co	IAEA TRS 277 [9]	1.1 %
Radioterapija	PTW 30012 s/n 172, 0.6 cm <sup>3</sup>	Kerma u vazduhu	T1 - T4 (100 kV - 250 kV)	IAEA TRS 277 [9]	2.1 %
Radioterapija	PTW 30012 s/n 172, 0.6 cm <sup>3</sup>	Apsorbovana doza u vodi	S-Co	IAEA TRS 398 [2]	1.2 %
Zaštita od zračenja	PTW 32002 s/n 311, 1 dm <sup>3</sup>	Kerma u vazduhu	S-Co, S-Cs	IAEA SRS 16 [3]	1.8 %
Zaštita od zračenja	PTW 32002 s/n 310, 1 dm <sup>3</sup>	Kerma u vazduhu	N-40, N-60, N-100, N-200 (40 kV - 200 kV)	IAEA SRS 16 [3]	1.8 %
Zaštita od zračenja	PTW 32003 s/n 126, 10 dm <sup>3</sup>	Kerma u vazduhu	S-Co, S-Cs	IAEA SRS 16 [3]	1.8 %
Dijagnostička radiologija	Exradin Magna A650, s/n D082611, 3 cm <sup>3</sup>	Kerma u vazduhu	RQR2 - RQR10 (40 kV - 150 kV)	IAEA TRS 457 [1]	2.2 %

## 2.2 Metodologija interkomparacija

Interkomparacije koje su predmet ovog rada su: interkomparacije uz korišćenje termoluminiscentnih dozimetara (TLD-ova) i interkomparacije etaloniranja jonizacionih komora. Prvi tip interkomparacija podrazumeva da organizator interkomparacije distribuiraju TLD-ove svim učesnicima, koji treba da ih ozrače unapred određenom dozom. Učesnici zatim poštom vraćaju TLD-ove organizatoru koji ih očitava i tako dobijene vrednosti poredi sa prijavljenim vrednostima. Drugi tip interkomparacija podrazumeva da jonizaciona komora (ili drugo merilo) kruži među laboratorijama učesnicama interkomparacije, pri čemu svaki učesnik određuje kalibracioni faktor. Tako dobijeni kalibracioni faktori se obično poredi sa vrednošću određenom od strane primarne laboratorije.

U interkomparacijama koje je organizovao EURAMET, tri transfer instrumenta su kružila između laboratorija, koje su određivale kalibracione faktore. Transfer instrumenti su bili dva merila proizvoda kerme i površine – KAP-metra (KERMA-X i PDC) i jonizaciona komora Magna A650. Kalibracioni faktor za svaku laboratoriju je bio podeljen sa srednjom vrednošću kalibracionih faktora koji su određeni od strane tri primarne laboratorije i na taj način je dobijen rezultat (R) za posmatranu laboratoriju. Ako je R jednako 1, onda je slaganje potpuno. Vrednosti R su korigovane na kvalitet zračenja, jačinu doze i veličinu polja (u slučaju KAP-metara).

### 3. Rezultati i diskusija

#### 3.1 Interkomparacije u organizaciji IAEA/WHO

U tabelama 2 – 4 su predstavljeni rezultati interkomparacija organizovanih od strane IAEA/WHO. VINS-LRM je u prethodnih sedam godina uzela učešće u ukupno 10 interkomparacija u oblastima radioterapije i zaštite od zračenja, a ostali učesnici su bili ili primarne ili sekundarne standardne laboratorije. Iako su zahtevi interkomparacija bili strogi, u svih 10 slučajeva su u VINS-LRM postignuti rezultati u okviru prihvatljivih granica odstupanja, što govori o adekvatnosti procedura, opreme i obučenosti osoblja, kao i o tome da je sistem kvaliteta odgovarajuć.

**Tabela 2. Interkomparacija etaloniranja jonizacionih komora sa primenom u radioterapiji u kvalitetu S-Co (2014. godina)**

Jonizaciona komora	Veličina	VINS-SSDL rezultat	Referentna vrednost	VINS-SSDL ref. vrednost*	Kriterijum
Farmer tip	Kerma u vazduhu	43.95 ± 0.48 mGy/nC	44.10 ± 0.35 mGy/nC	0.995	0.985 – 1.015
Farmer tip	Aps. doza u vodi	48.11 ± 0.58 mGy/nC	48.15 ± 0.48 mGy/nC	0.998	0.985 – 1.015

**Tabela 3. Interkomparacije u oblasti radioterapije uz korišćenje TLD-ova**

Godina ozračivanja	Kvalitet zračenja	VINS-SSDL prijavljena doza	IAEA izmerena doza	Relativno odstupanje	Kriterijum prihvatljivosti
2009	S-Co	2.00 Gy	1.97 Gy	1.6 %	± 3.5%
2010	6 MV	2.00 Gy	2.00 Gy	0.1 %	± 3.5%
2011	S-Co	2.00 Gy	1.99 Gy	0.7%	± 3.5%
2012	6 MV	2.00 Gy	2.02 Gy	-1.1 %	± 3.5%
2013	S-Co	2.00 Gy	2.01 Gy	-0.3 %	± 3.5%
2014	6 MV	2.00 Gy	2.02 Gy	-1.3 %	± 3.5%

**Tabela 4. Interkomparacije u oblasti zaštite od zračenja uz korišćenje TLD-ova**

Godina ozračivanja	Kvalitet zračenja	VINS-SSDL prijavljena doza	IAEA izmerena doza	Relativno odstupanje	Kriterijum prihvatljivosti
2008	S-Cs	5.00 mGy	5.24 mGy	0.96	0.93 – 1.07
2013	S-Cs	5.00 mGy	5.10 mGy	0.98	0.93 – 1.07

#### 3.2 Interkomparacije u organizaciji EURAMET

U tabeli 5 su predstavljeni rezultati interkomparacija organizovanih od strane Euramet u kojima je učestvovalo 22 laboratorije u 2011. i 2012. godini. Testiranje transfer instrumenata je pokazalo izrazitu zavisnost oba KAP-metra od kvaliteta zračenja, jačine doze i veličine polja, što je uzrokovalo velike razlike između korigovanih i nekorigovanih vrednosti kalibracionih faktora. Jonizaciona komora Magna A650 pokazuje zavisnost samo od kvaliteta zračenja, ali u manjoj meri, pa su korigovane vrednosti u slučaju VINS-SSDL jednake nekorigovanim.

Rezultati VINS-LRM pokazuju da su kalibracije jonizacionih komora u dijagnostičkoj radiologiji adekvatne. Kada je u pitanju kalibracija KAP-metara, rezultati su prihvatljivi za sve kvalitete osim za RQR3. Međutim, poludebljina slabljenja (HVL) koja je

izmerena za kvalitet RQR3 u VINS-LRM nije u skladu sa standardom [8], što je i prijavljeno organizatorima interkomparacije. Uzevši u obzir izrazitu zavisnost indikacije KAP-metara od kvaliteta zračenja, lošiji rezultati su bili očekivani. Istovremeno, kod Magne A650 ovaj problem ne dolazi do izražaja, zbog njene slabije zavisnosti. Na žalost, sa postojećom opremom je nemoguće postići bolje slaganje HVL-ova, već je neophodno nabaviti novi generator X-zračenja.

**Tabela 5. Interkomparacije u oblasti dijagnostičke radiologije**

Kvalitet zračenja	KAP-metar 1		KAP-metar 2		Magna A650	
	R	R <sub>korigovano</sub>	R	R <sub>korigovano</sub>	R	R <sub>korigovano</sub>
RQR3	1.612	1.061	1.122	0.984	1.020	1.020
RQR5	1.072	1.045	1.125	1.070	1.021	1.021
RQR6	1.033	1.029	1.114	1.077	1.019	1.019
RQR8	1.023	1.023	1.111	1.083	1.014	1.014
RQR9	1.013	1.013	1.114	1.095	1.013	1.013

U trenutku interkomparacije, metode etaloniranja u skladu sa standardom IAEA TRS 457 [1] nisu bile akreditovane u VINS-LRM (u međuvremenu je akreditovano etaloniranje jonizacionih komora). Pored već navedenih zaključaka, dodatno su analizirane procedure etaloniranja i postavka merenja. U toku analize, primećeno je da je pozicioniranje kolimatora koji se koriste za etaloniranje KAP-metara nedovoljno precizno, kao i da su same dimenzije kolimatora nedovoljno dobro poznate. U cilju otklanjanja prepoznatih nedostataka, izrađen je novi kolimator i ponovo su etalonirana merila dužine koja se koriste u laboratoriji. Takođe je sekundarni etalon u dijagnostičkoj radiologiji ponovo etaloniran i unapređene su interne procedure.

#### 4. Zaključak

Između 2008. i 2014. godine, VINS-SSDL je učestvovao u međunarodnim interkomparacijama u različitim oblastima metrologije doza jonizujućeg zračenja. Drugi učesnici u ovim interkomparacijama su bili ili PSDL-ovi ili SSDL-ovi, a mnogi od učesnika su nacionalni metrološki instituti ili imenovani instituti.

Interkomparacije iz oblasti radioterapije i zaštite od zračenja su pokazale kontinuitet dobrih rezultata VINS-SSDL, jer su svaki put bili zadovoljeni strogi kriterijumi prihvatljivosti. U interkomparacijama u oblasti dijagnostičke radiologije su postignuti dobri rezultati, posebno kada je u pitanju etaloniranje jonizacionih komora. Međutim, prilikom etaloniranja KAP-metara su prepoznati problemi vezani za uspostavljanje niskoenergetskih kvaliteta zračenja pomoću generatora X-zračenja, kao i u geometrijskoj postavci merenja. Problemi sa geometrijskom postavkom su otklonjeni, a takođe je pokrenut postupak nabavke novog generatora X-zračenja.

VINS-SSDL će nastaviti da učestvuje u svim dostupnim interkomparacijama, od kojih su neke već planirane. Međutim, postoji problem sa nedovoljnim brojem dostupnih interkomparacija sa jonizacionim komorama, posebno kada su u pitanju ključne interkomparacije.

## 5. Literatura

- [1] International Atomic Energy Agency. Dosimetry in Diagnostic Radiology: An International Code of Practice. Technical Report Series No. 457, 2007. IAEA, Vienna.
- [2] International Atomic Energy Agency, Dose Determination in External Beam Radiotherapy: An International Code of Practice for Dosimetry Based in Standards of Absorbed Dose to Water. Technical Report Series No. 398, 2000. IAEA, Vienna.
- [3] International Atomic Energy Agency. Calibrations of radiation protection monitoring instruments. Safety Report Series No 16, 2000. IAEA, Vienna.
- [4] International Atomic Energy Agency. SSDL Network Charter. The IAEA/WHO network of Secondary Standard Dosimetry Laboratories, 1999. IAEA, Vienna.
- [5] European Association of National Metrology Institutes. Role of Designated Institutes within the CIPM MRA. EURAMET Guide No. 2, Version 1.1 (01/2015), 2015. EURAMET, Braunschweig.
- [6] ISO, IEC. ISO/IEC 17025:2005 General requirements for the competence of testing and calibration laboratories, ISO/IEC (2005)
- [7] ISO. ISO 4037-1: X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and doserate meters and for determining their response as a function of photon energy — Part 1: Radiation characteristics and production methods, ISO (1996)
- [8] IEC. IEC 61267:2006. Medical diagnostic X-ray equipment. Radiation conditions for use in the determination of characteristics for medical diagnostic X-ray equipment, IEC (2006)
- [9] International Atomic Energy Agency. Absorbed dose determination in photon and electron beams. An international code of practice. Second edition. Technical Reports Series No 277, 1997. IAEA, Vienna.

### INTERCOMPARISONS AS AN IMPORTANT ELEMENT OF QUALITY ASSURANCE IN METROLOGY OF IONISING RADIATION

**Miloš ŽIVANOVIĆ<sup>1</sup>, Đorđe LAZAREVIĆ<sup>1,2</sup>, Olivera CIRAJ-BJELAC<sup>1,2</sup>, Srboľjub STANKOVIĆ<sup>1,2</sup>, Sandra ĆEKLIĆ<sup>1,3</sup>, Katarina KARADŽIĆ<sup>1,2</sup>**

- 1) *Vinca institute of nuclear sciences, Radiation protection department, Universty of Belgrade, Serbia, milosz@vinca.rs*
- 2) *School of Electrical Engineering, University of Belgrade, Serbia*
- 3) *Faculty of Physics, University of Belgrade, Serbia*

#### ABSTRACT

Intercomparisons are important activities performed to ensure that the services provided by calibration laboratories to end-users follow internationally accepted standards. Ionizing radiation dosimetry intercomparisons are usually of two types – postal thermoluminescent dosimeter intercomparisons and ionization chamber calibration intercomparisons. In this paper, both types of intercomparisons are discussed together with the results of 7 years of participation in such intercomparisons. Finally, several discrepancies were discovered as a result of intercomparisons analysis and the resolution of the discrepancies was discussed.

# ОДРЕЂИВАЊЕ ТЕМПЕРАТУРСКОГ ПРОФИЛА АТМОСФЕРЕ МЕРЕЊЕМ ИНТЕНЗИТЕТА КОСМИЧКОГ ЗРАЧЕЊА НА ПОВРШИНИ ЗЕМЉЕ

**Михаило САВИЋ**, Димитрије МАЛЕТИЋ, Дејан ЈОКОВИЋ, Никола  
ВЕСЕЛИНОВИЋ, Александар ДРАГИЋ, Радомир БАЊАНАЦ, Владимир  
УДОВИЧИЋ

*Институт за Физику, Универзитет у Београду, Србија, msavic@ipb.ac.rs*

## САДРЖАЈ

*Методи за корекцију одброја миона из космичког зрачења на метеоролошке параметре, пре свега на барометарски и температурски ефекат, добро су познати. Ови методи, осим временских серија миона, принципијелно захтевају познавање временских серија притиска као и временских серија целокупног температурског профила атмосфере. Познавање температурског профила атмосфере је омогућено појавом савремених нумеричких модела атмосфере. У овом раду је демонстрирана провера супротног приступа, односно одређивања температурског профила атмосфере на основу познавања временских серија миона. Представљена је и дискусија резултата, разматрање могуће примене овог приступа одређивања температурског профила као и могући правци усавршавања овог метода.*

## 1. Увод

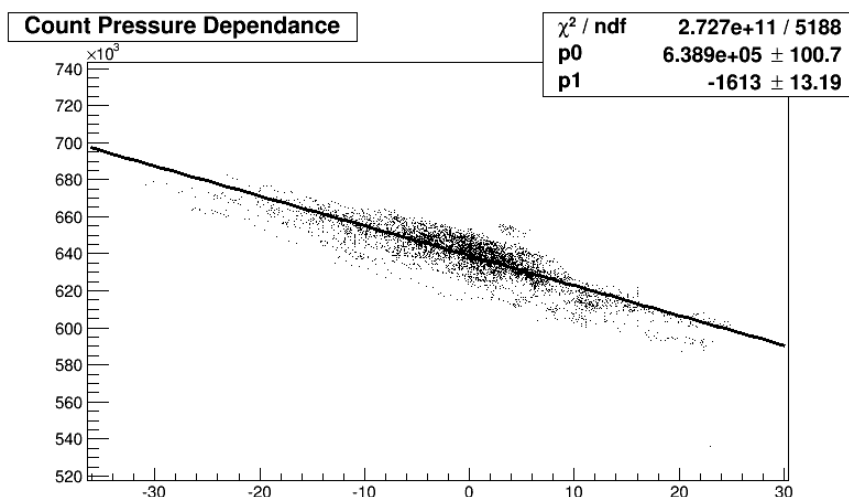
Нискофонска лабораторија Института за Физику Универзитета у Београду посвећена је мерењима ниских активности и на проучавању мионске и електромагнетске компоненти космичких зрака на површину земље и у плиткој подземној лабораторији. Надземни део лабораторије налази се на 75 м надморске висине и у подножју вертикалне литице од леса, висине око 10 метара. Подземни део лабораторије, корисне површине 45 m<sup>2</sup>, укопан је у подножју литице са укупном висином леса изнад лабораторије од око 12 метара, што је еквивалентно висини од 25 метара воде. [1] Пластични сцинтилаторски детектори [1m x 1m x 5cm] користе се за континуална мерења спектра космичког зрачења од 2008. године. Један сцинтилациони детектор се налази у надземној а други у подземној лабораторији. Сваки сцинтилациони детектор је опремљен са четири фотомултипликатора директно везане на угловма сцинтилатора. Сцинтилационе детекторе је произвела фирма Амцрис-Х из Харкова, Украина. У срцу система за прикупљање података су два брза аналогно-дигитална претварача (FADC), произвођача CAEN (тип N1728B). Ови инструменти могу да раде у такозваном хистограмском моду, када функционише као дигитални спектрометар или, у осцилограмском моду, када функционише као дигитални осцилоскоп. [1] Сатне временске серије континуалног мерења секундарног космичког зрачења, односно космичког зрачења које стиже на површину земље, производе се током обраде података и користе се за анализу представљену у овом раду. Овакви одброји космичког зрачења највећим делом су одброји мионске компоненте космичког зрачења које детектују сцинтилациони детектори.

## 2. Корекције одброја космичког зрачења

Зависност одброја секундарних миона из космичког зрачења од метеоролошких параметара добро је позната. То подразумева да варијација одброја миона зависи од варијације апсолутне дебљине атмосфере тј. притиска (барометарски ефекат), затим температуре (температурски ефекат), влажности и других параметара.

Теорија која формално описује ове зависности дата је у [2] и принципијелно омогућује корекцију одброја на варијацију метеоролошких параметара. Услов за корекцију је да су, упоредо са временским серијама миона, доступне и временске серије поменутих параметара. У пракси су ове корекције могуће када су у питању притисак и температура, док су за остале метеоролошке параметре тешко изводљиве.

За подручје Београда, подаци за притисак доступни су из више метеоролошких станица и редовно се освежавају у бази Нискофонске лабораторије. На слици 1 приказана је зависност одброја миона од варијације притиска за временски период од 2009. до 2015. године. На основу линеарног фита ове зависности одређени су параметри који се даље могу користити за корекцију на притисак.



**Слика 1. Зависност одброја миона од варијације притиска за временски период од 2009. до 2015. године.**

Зависност одброја миона од температуре одн. температурски ефекат, описана је изразом [2]:

$$\frac{\delta I}{I} = \int_0^{h_0} W_T(h) \delta T(h) dh$$

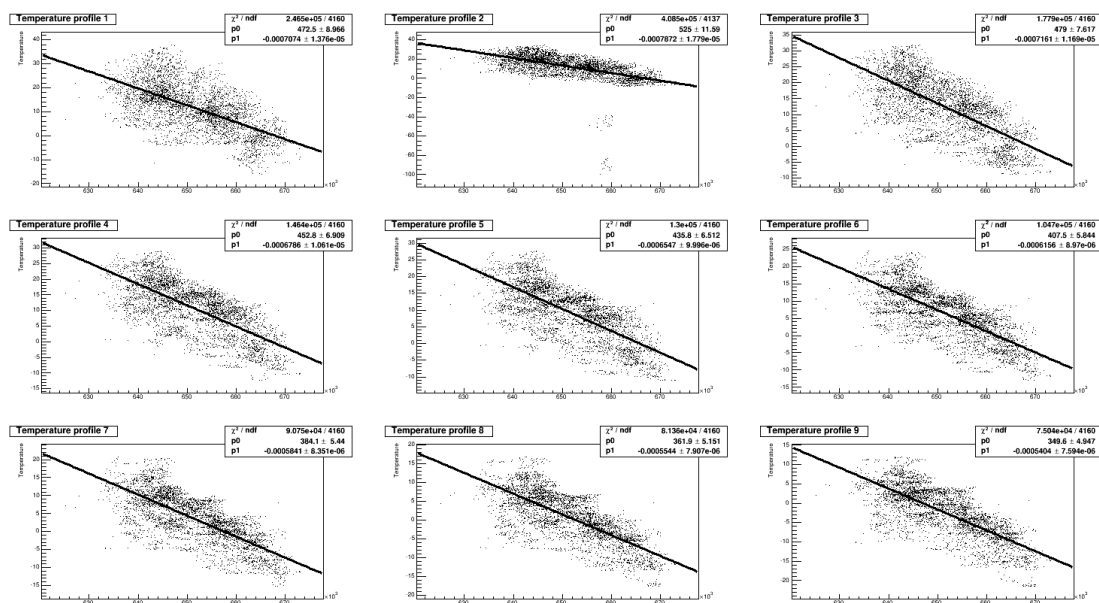
где је  $W_T$  коефицијент температурске зависности,  $\delta T$  варијација температуре у односу на базну температуру за дати ниво а  $h$  дебљина атмосфере у  $g/cm^2$ .

Да би се израчунала варијација одброја миона која потиче од температуре потребно је познавати температурски профил за дату локацију као и варијацију истог. Ови подаци су доступни захваљујући Глобалном прогностичком систему (GFS – Global Forecasting System) америчког Националног прогностичког центра (NCEP - National Centers for Environmental Prediction – USA) у оквиру кога је

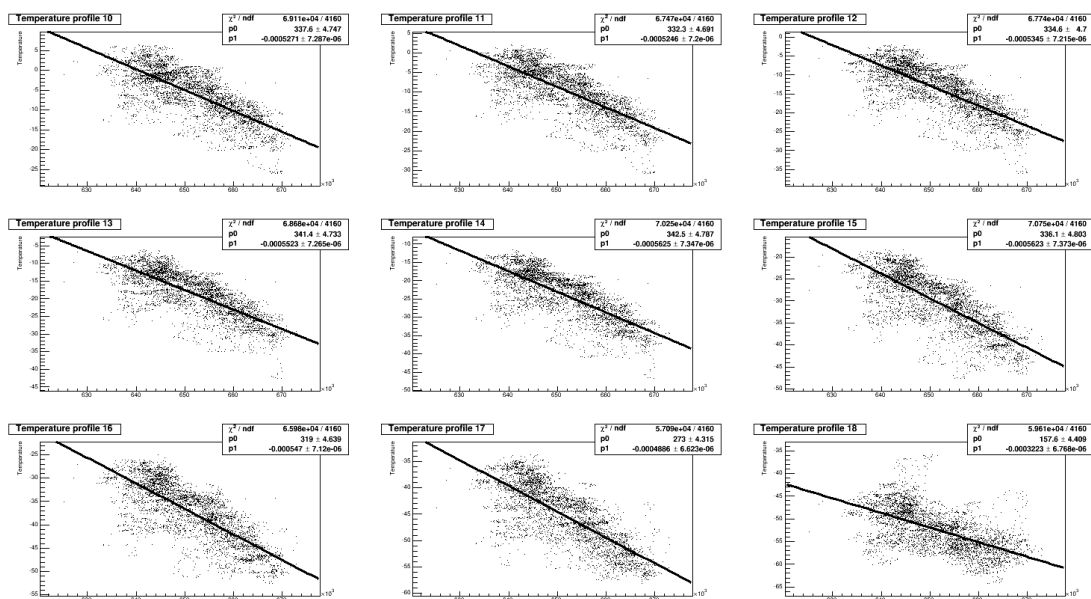


развијен модел температурских профила [3]. Резултати овог модела нам дају вредност температуре за 26 изобарних нивоа који одговарају следећим вредностима, датим у  $\text{g/cm}^2$ : 10, 20, 30, 50, 70, 100, 150, 200, 250, 300, 350, 400, 450, 500, 550, 600, 650, 700, 750, 800, 850, 900, 925, 975, 1000, 1013 и то за времена 0, 6, 12 и 18 часова. Интерполацијом могуће је добити сатне температурске профиле. Љубазношћу опсерваторије Измиран (<http://cr0.izmiran.rssi.ru>) ови подаци доступни су за Београд. То омогућава, уз познавање температурских коефицијената, корекцију одброја миона на температурски ефекат. Оба типа корекција (на притисак и на температуру) се успешно примењују у Нискофонској лабораторији.

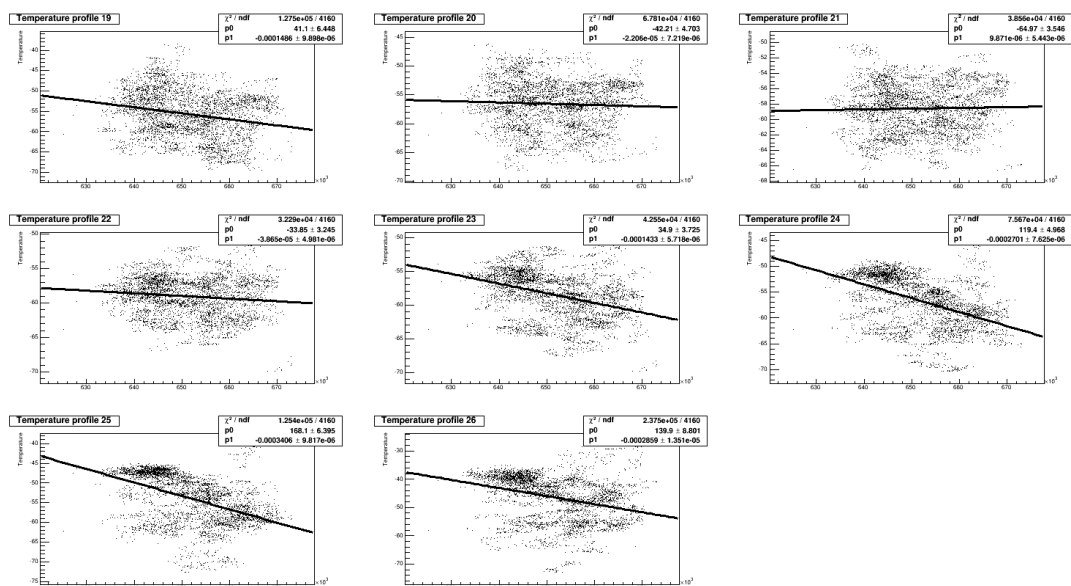
Међутим, овде желимо да на основу познатог одброја миона и познатих коефицијената зависности одредимо температуру датог изобарног нивоа. У ту сврху не користимо теоријски срачунате коефицијенте већ, претпостављајући њихову међусобну линеарну независност, исте одређујемо на основу фита експерименталних података. На следећим сликама 2а, 2б, 2ц представљене су зависности температуре од одброја за свих 26 изобарних нивоа. Такође, приказани су параметри линеарних фитова датих зависности. Одброј је претходно коригован на притисак. У обзир су се узимали само подаци у данима ниске активности сунца (International Quiet Days).



**Слика 2а. Зависности температуре од одброја са параметрима линеарних фитова датих зависности за температурске профиле 1-9 ( $700\text{-}1013 \text{ g/cm}^2$ ).**

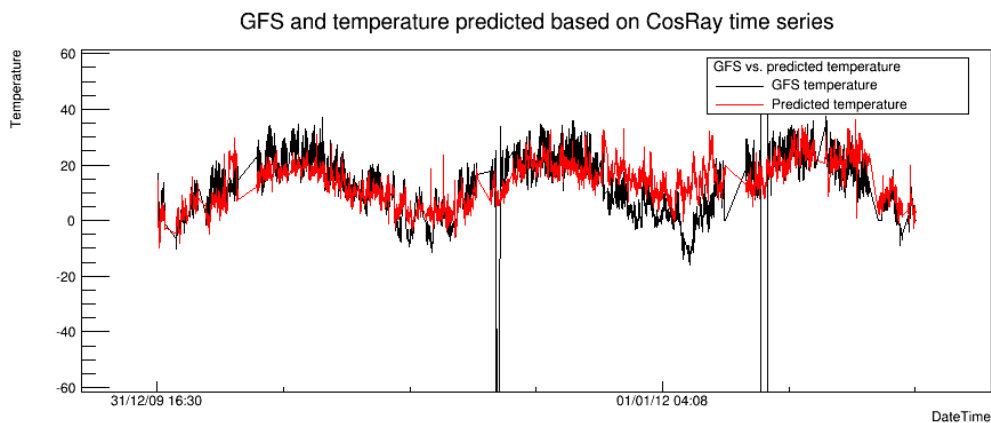


Слика 2б. Зависности температуре од одброја са параметрима линеарних фитова датих зависности за температурске профиле 10-18 ( $250-650 \text{ g/cm}^2$ ).

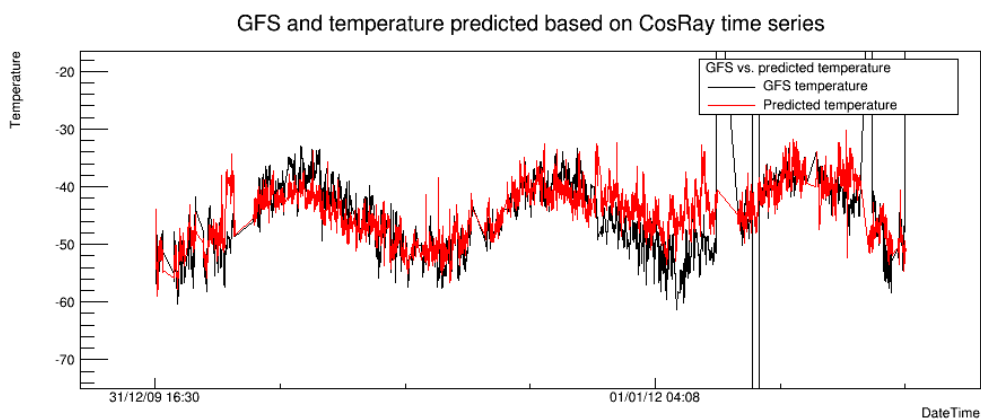


Слика 2ц. Зависности температуре од одброја са параметрима линеарних фитова датих зависности за температурске профиле 19-26 ( $10-200 \text{ g/cm}^2$ ).

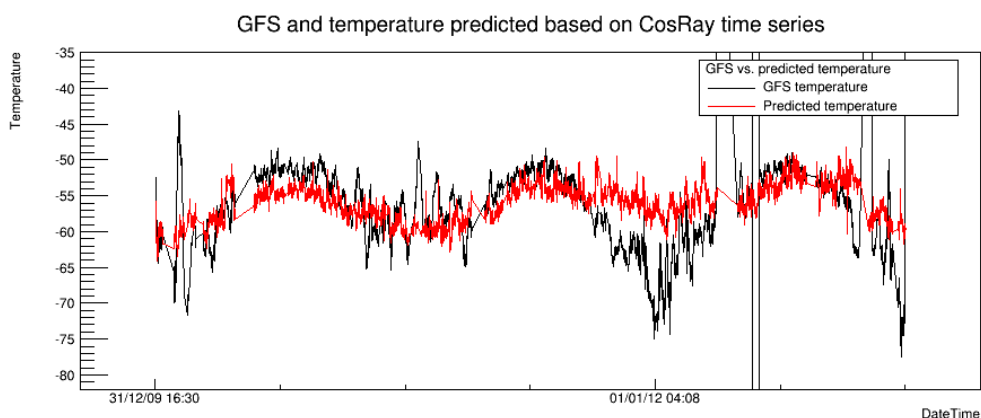
На основу добијених параметара сада је могуће дати предикцију температуре за дати изобарни ниво на основу познатог одброја миона. На сликама 3а, 3б и 3ц, за три различита изобарна нивоа, приказано је упоређење временских серија овако предвиђених температура и температура израчунатих на основу GFS модела. Због упоређења, изабрани су изобарни нивои различитих вредности коефицијената линеарног фита.



**Слика 3а. Поређење временских серија предвиђених температура и температура израчунатих на основу GFS модела за изобарни ниво близак површини земље.**



**Слика 3б. Поређење временских серија предвиђених температура и температура израчунатих на основу GFS модела за изобарни ниво средње висине у атмосфери.**



**Слика 3ц. Поређење временских серија предвиђених температура и температура израчунатих на основу GFS модела за изобарни ниво високо у атмосфери.**

Може се видети да је слагање најбоље у случају када је и линеарна зависност најбоље дефинисана, као што би се и могло очекивати. Даља неодређеност методе би у том случају била одређена мером одступања дистрибуције од линеарне, што може бити условљено чињеницом да коефицијенти нису нужно линеарно независни.

### **3. Закључак**

Методи за корекцију одброја миона из космичког зрачења на метеоролошке параметре, пре свега на барометарски и температурски ефекат, добро су познати. Они, осим временских серија миона, принципијелно захтевају познавање временских серија притиска као и временских серија целокупног температурског профила атмосфере. Нарочито познавање ових других је омогућено појавом савремених нумеричких модела атмосфере. Ти подаци такође омогућавају проверу супротног приступа, односно предвиђања температурског профила атмосфере на основу познавања временских серија миона. У овом раду је дата добра индикација да је то у принципу могуће, чак и најједноставнијим приступом. На основу тога, вероватно је да би софистицираније методе дале још поузданије резултате.

### **4. Напомена**

Овај рад је урађен уз помоћ Министарства просвете, науке и технолошког развоја Републике Србије унутар пројекта основног истраживања под ознаком ОИ171002.

### **5. Литература**

[1] Dragic Aleksandar, Udovicic Vladimir, Banjanac Radomir, Jokovic Dejan, Maletic Dimitrije, Veselinovic Nikola, Savic Mihailo, Puzovic Jovan, Anicin Ivan. The New Set-Up in the Belgrade Low-Level and Cosmic-Ray Laboratory, *Nucl. Technol. Radiat. Prot.* 26 (3) (2011) 181-192.

[2] Dorman, Cosmic Rays in the Earth's Atmosphere and Underground

[3] M. Berkova, A. Belov, E. Eroshenko, and V. Yanke, Temperature effect of muon component and practical questions of how to take into account in real time, *Astrophys. Space Sci. Trans.* 8 (2012) 41-44.

**DETERMINATION OF THE TEMPERATURE PROFILES OF THE  
ATMOSPHERE BY MEASURING THE INTENSITY OF THE COSMIC RAY  
AT SURFACE LEVEL**

**Dimitrije MALETIĆ, Dejan JOKOVIĆ, Mihailo SAVIĆ, Aleksandar DRAGIĆ,  
Radomir BANJANAC, Vladimir UDOVIČIĆ, Nikola VESELINOVIĆ**

*Institute of Physics, Univeristy of Belgrade, Serbia, maletic@ipb.ac.rs*

**ABSTRACT**

Method for correction of Cosmic ray' muon counts on meteorological parameters, especially for barometric and temperature-effects are well known. These methods, in addition to the time series of muons, in principle, require knowledge of the time series of pressure as well as the entire time series of temperature profiles of the atmosphere. Knowledge of temperature profile of the atmosphere is possible by the advent of modern numerical models of the atmosphere. In this study check the opposite approach is demonstrated, i.e. the determination of temperature profiles of the atmosphere based on the knowledge of muon time series. Discussion of the results is presented considering the possible application of this approach of determination of temperature profile of the atmosphere and possible ways to improve this method.

# AUTOMATSKA OBRADA PODATAKA KOSMIKE I EVALUACIJA KONCENTRACIJE RADONA NA INTERNET (WEB) SERVERU

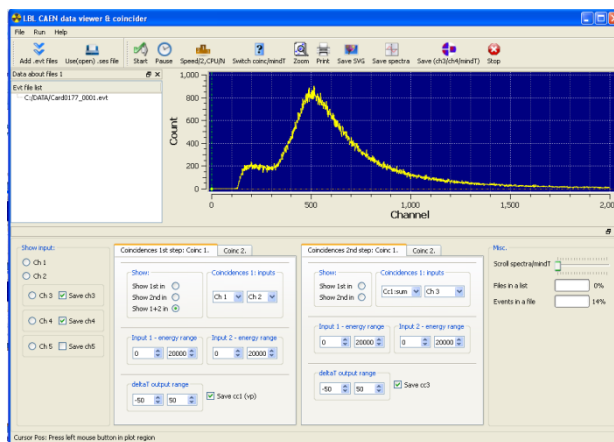
**Dimitrije MALETIĆ, Dejan JOKOVIĆ, Mihailo SAVIĆ, Aleksandar DRAGIĆ, Radomir BANJANAC, Vladimir UDOVIČIĆ, Nikola VESELINOVIĆ**  
*Institut za fiziku, Univerzitet u Beogradu, Srbija, maletic@ipb.ac.rs*

## SADRŽAJ

*U ovom radu je opisana automatska obrada podataka, na internet (web) serveru, kontinualnog merenja intenziteta kosmičkog zračenja i evaluacije koncentracije radona u Niskofonskoj laboratoriji Instituta za fiziku Univerziteta u Beogradu. Podaci o merenju kosmičkog zračenja sakupljaju se u podzemnoj i nadzemnoj laboratoriji i obradjuju se dnevno. Evaluacija koncentracije radona u podzemnoj laboratoriji takođe se obradjuje dnevno, skupljajući meteorološke podatke, satno, i koristeći ih za evaluaciju radona korišćenjem implementacije multivariatne regresione analize. Ovim podacima se prilazi preko laboratorijskog sajta [www.cosmic.ipb.ac.rs](http://www.cosmic.ipb.ac.rs).*

## 1. Uvod

Niskofonska laboratorija Instituta za fiziku Univerziteta u Beogradu sastoji se od dve laboratorije: nadzemne i podzemne laboratorije. U obe laboratorije se vrše kontinuirana merenja intenziteta kosmičkog zračenja [1]. Nabavkom CAEN brzih analogno-digitalnih konvertera, hardver za kontinualna merenja intenziteta kosmičkog zračenja dobija svoj konačan oblik 2008 godine. Poslednja verzija programa za analizu podataka završena je 2012 godine, a sledeće godine pokreće se web server koji služi za prikazivanje i automatsku analizu merenih podataka. Tokom rada niskofonske laboratorije, nekoliko godina (u periodu od 2008 do 2011) je kontinuirano monitorisana koncentracija radona u podzemnoj laboratoriji. Na osnovu rezultata merenja radona uradjena je multivariatna regresiona analiza, koja je za rezultat dala aproksimativnu više-parametarsku funkciju koja služi za evaluaciju koncentracije radona u podzemnoj laboratoriji sa uključenim sistemom za ventilaciju [2]. Za dobijanje evaluacije radona, program na internet (web) sajtu satno uzima meteorološke podatke koje se kontinualno mere na meteorološkoj stanici u neposrednoj blizini Niskofonske laboratorije.



**Slika 1. Izgled programa za analizu podataka kontinualnog merenja kosmičkog zračenja u podzemnoj i nadzemnoj laboratoriji.**

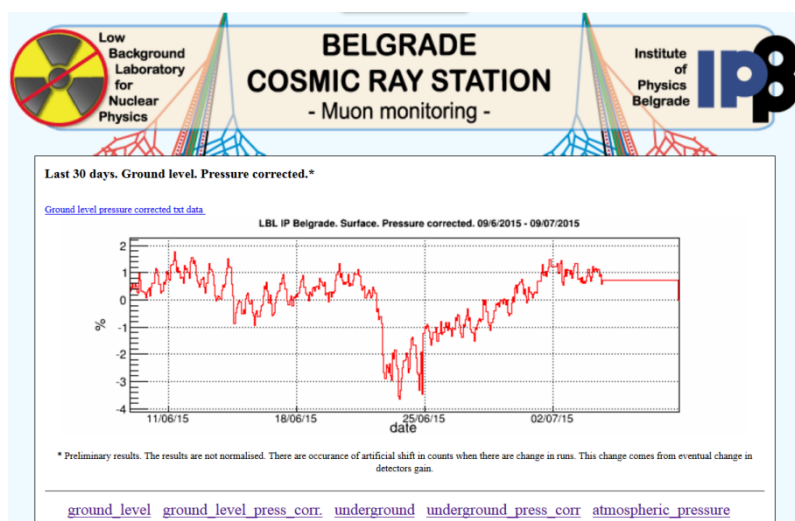
## 2. Programi za obradu podataka

Kako je kontinualno merenje intenziteta kosmičkog zračenja davalo sve više podataka, tako se javila potreba za specijalizovanim programom za analizu. Program za analizu razvijan je u C++ jeziku. Finalna verzija softvera za analizu podataka sa vizuelizacijom prikazana je na slici 1. Postoji veliki broj opcija pri analizi podataka, ali ne postoji mogućnost automatske obrade podataka. Kako se podaci sakupljaju na radnim računarima blizu detektora u podzemnoj i nadzemnoj laboratoriji, podaci se kopiraju na File Transfer Protocol (FTP) server na kome se nalazi i web server. Odlučeno je da je najbolje da se razvije linux verzija softvera za analizu koja radi bez vizuelizacije i koja može da radi na linux web serverima. Ovo je otvorilo vrata da se automatizuje analiza podataka kontinualnog merenja kosmičkog zračenja koristeći linux program za automatizaciju: „crontab“ program.

Programi i skripte za evaluaciju koncentracije radona u podzemnoj laboratoriji razvijene su posle analize varijacije radona u podzemnoj laboratoriji korišćenjem programskog paketa TMVA [2] unutar ROOT [3] paketa. TMVA pogramski paket nam omogućuje da se rezultati multivarijantne regresione analize, sadržani u rezultujućoj aproksimativnoj vise-parametarskoj funkciji, prenesu (kompajliraju) u izvršni linux program, koji se može pozvati iz linux programa za automatizaciju “crontab” na web serveru.

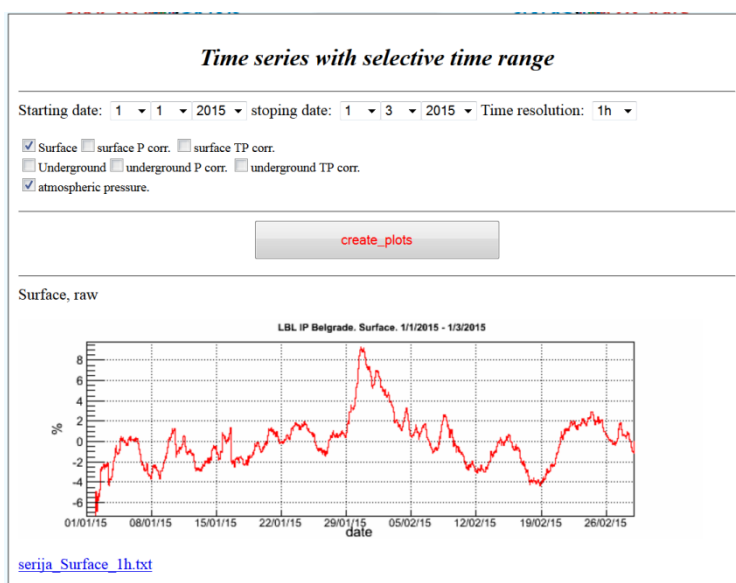
## 3. Internet stranica automatske mionske stanice i evaluacije radona u podzemnoj laboratoriji

Ovim internet stranicama možete pristupiti preko linkova na laboratorijskoj internet stranici: [www.cosmic.ipb.ac.rs](http://www.cosmic.ipb.ac.rs) . Kako je kontinualno merenje intenziteta kosmičkog zračenja davalo sve više podataka, tako je potreba za automatsku kontrolu merenja i analizu podataka rasla. Za automatizaciju je odabrano da se podaci iz laboratorija koncentrišu na linux FTP server, koji je ujedno i web server. Automatskim pristupom podacima programom „crontab“, (shell) skriptovima otpočinje otpakivanje prenetih fajlova putem FTP-a, a potom sledi pokretanje linux verzije programa za analizu podataka Niskofonske laboratorije. Posle obrade podataka, pokreće se ROOT skript za proizvodnju slika vremenskih serija za poslednjih mesec dana. (Slika 2).

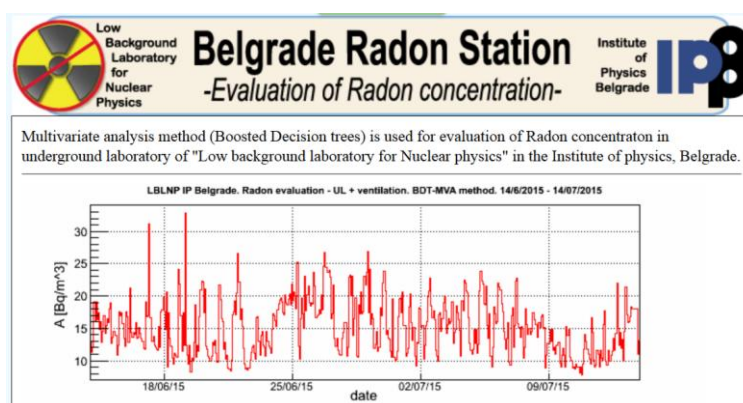


**Slika 2. Izgled internet stranice automatske mionske stanice. Svakodnevno se prikazuju najnoviji rezultati koji su uspesno prebačeni na FTP server.**

Pored mogućnosti pregleda vremenskih serija kontinualnog merenja intenziteta kosmičkog zračenja, pomoću (CGI) skriptova napisanih u programskom jeziku perl, omogućeno je da se proizvoljno odaberu vremenske serije od interesa, i to za vremenske serije podzemne ili nadzemne laboratorije, sa mogućnošću promene vremenske rezolucije od 1h vremenskih serija na serije sa 5-o minutnom rezolucijom. Postoji pogodnost pregleda korigovanih vremenskih serija, i to korigovanih na pritisak i korigovanih na temperaturu. (Slika 2.)



**Slika 2. Izgled internet stranice automatske mionske stanice sa mogućnošću izbora intervala vremena za prikaz vremenskih serija.**



**Slika 3. Izgled internet stranice evaluacije koncentracije radona u podzemnoj laboratoriji.**

Pored pregleda kontinualnog merenja intenziteta kosmičkog zračenja, na istom internet (web) serveru nalazi se stranica koja prikazuje evaluaciju koncentracije radona u podzemnoj laboratoriji. (Slika 3.) Kako su rezultati multivarijantne regresione analize, sadržani u rezultujućoj aproksimativnoj višeparametarskoj funkciji, preneti



(kompajlirani) u izvršni linux program, potrebno je da se ovaj program periodično pokreće kao i da ima ulazne varijable, gde se izlazne vrednosti ove funkcije prikazuju na server za proteklih mesec dana sa satnom rezolucijom. Vrednosti ulaznih varijabli sa satnom rezolucijom dobijaju se sa stranice meteorološke stanice u blizini Niskofonske laboratorije. Meteorološki podaci se preuzimaju sa meteorološke stanice skriptom kojeg takođe pokreće linux program za automatizaciju “crontab”, ali svakog sata, za razliku od procesa obrade podataka i prikaza rezultata koji se pokreći jednom dnevno.

#### **4. Zaključak**

Opisana je automatska obrada podataka na internet serveru i to kontinualnog merenja kosmičkog zračenja kao i evaluacije koncentracije radona u Niskofonskoj laboratoriji. Podaci o merenju kosmičkog zračenja sakupljaju se u podzemnoj i nadzemnoj laboratoriji i obradjuju se dnevno. Evaluacija koncentracije radona u podzemnoj laboratoriji takođe se obradjuje dnevno, skupljajući meteorološke podatke satno i koristeći ih za evaluaciju radona korišćenjem implementacije multivarijantne regresione analize koristeći program TMVA implementiran u programskom paketu ROOT. Softver za analizu u Niskofonskoj laboratoriji, napisan u c++, prerađen je da radi na linuxu i bez vizuelizacije, tako da se obrada podataka može odraditi direktno na internet serveru. Automatizacija na linux internet serveru se postiže korišćenjem programa „crontab“. Osobina biranja proizvoljnog intervala za koji se prikazuje vremenska serija intenziteta kosmičkog zračenja napisana je kao (CGI) skript korišćenjem programskog jezika perl. Dobijeni rezultati pomažu saradnicima niskofonske laboratorije da prate stabilnost instrumenata koji vrše kontinualno merenja intenziteta kosmičkog zračenja kao i da prate da li je došlo do značajnije promene u intenzitetu kosmičkog zračenja koje pada na zemljinu površinu ili u podzemlju.

#### **5. Napomena**

Ovaj rad je urađen uz pomoć Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije unutar projekta osnovnog istraživanja pod oznakom OI171002.

#### **6. Literatura**

- [1] Dragic Aleksandar, Udovicic Vladimir, Banjanac Radomir, Jokovic Dejan, Maletic Dimitrije, Veselinovic Nikola, Savic Mihailo, Puzovic Jovan, Anicin Ivan. The New Set-Up in the Belgrade Low-Level and Cosmic-Ray Laboratory, *Nucl. Technol. Radiat.* 26/3 (2011) 181-192
- [2] A. Hoecker, P. Speckmayer, J. Stelzer, J. Therhaag, E. von Toerne, and H. Voss. TMVA - Toolkit for Multivariate Data Analysis. PoS ACAT 040 (2007), arXiv:physics/070303
- [3] R. Brun and F. Rademakers. ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework. *Nucl. Inst. Meth. in Phys. Res. A* 389, 81, 1997

## **AUTOMATIC DATA PROCESSING OF COSMIC RAY DATA AND EVALUATION OF RADON CONCENTRATION ON WEB SERVER**

**Dimitrije MALETIĆ, Dejan JOKOVIĆ, Mihailo SAVIĆ, Aleksandar DRAGIĆ,  
Radomir BANJANAC, Vladimir UDOVIČIĆ, Nikola VESELINOVIĆ**  
*Institute of Physics, Univeristy of Belgrade, Serbia, maletic@ipb.ac.rs*

### **ABSTRACT**

This paper describes the automatic processing of data on the Internet (Web) server, of continuous measurements of Cosmic rays and evaluation of radon concentration in Low background laboratory of the Institute of Physics, University of Belgrade. Data on measurements of Cosmic ray intensities are collected from underground and above-ground laboratories and processed daily. Evaluation of the concentration of radon in the underground laboratories is also handled daily, and the gathering of meteorological data, hourly. Meteorological data for evaluation of radon concentration is used as an input variables of implementation of multivariate regression analysis. These data are accessed through laboratory site [www.cosmic.ipb.ac.rs](http://www.cosmic.ipb.ac.rs).

# KORIŠĆENJE MOBILNOG TELEFONA ZA TESTIRANJE I OPTIMIZACIJU LABORATORIJSKIH MERENJA FOTOMULTIPLIKATORIMA

**Dimitrije MALETIĆ, Dejan JOKOVIĆ, Radomir BANJANAC, Nikola VESELINOVIĆ, Mihailo SAVIĆ, Aleksandar DRAGIĆ, Vladimir UDOVIČIĆ**

*Institut za fiziku, Univerzitet u Beogradu, Srbija, maletic@ipb.ac.rs*

## SADRŽAJ

*Ubrzani razvoj telekomunikacionih uređaja omogućava korišćenje ovakvih uređaja pri testiranjima i optimizaciji laboratorijskih merenja. U ovom radu prikazujemo primer korišćenja modernih mobilnih telefona pri testiranjima i optimizaciji fotomultiplikatora koji se koriste u kontinuiranim merenjima kosmičkog zračenja u Niskofonskoj laboratoriji Instituta za fiziku Univerziteta Beogradu. Plastični scintilatori često imaju direktnu spoljnu vezu fotomultiplikatora sa spoljašnošću scintilacionog detektora putem optičkog kabla. Ovakva direktna veza se koristi za periodičnu kalibraciju mernih uređaja u cilju da se dobije stabilnost prilikom kontinuiranih merenja. Korišćenjem aplikacija za prikazivanje slika na mobilnom telefonu moguće je na ulaz optičkog kabla dovesti svetlost raznog intenziteta i talasnih dužina. U ovom radu su prikazani prvi rezultati odziva fotomultiplikatora na razne intenzitete i talasne dužine svetla. Periodične kalibracije upadnom svetlošću omogućavanju da se odredi potrebna korekcija visokog napona koje napaja fotomultiplikatore ili koriguje odbroj scintilacionog detektora u cilju stabilizacije kontinuiranog merenja.*

## 1. Uvod

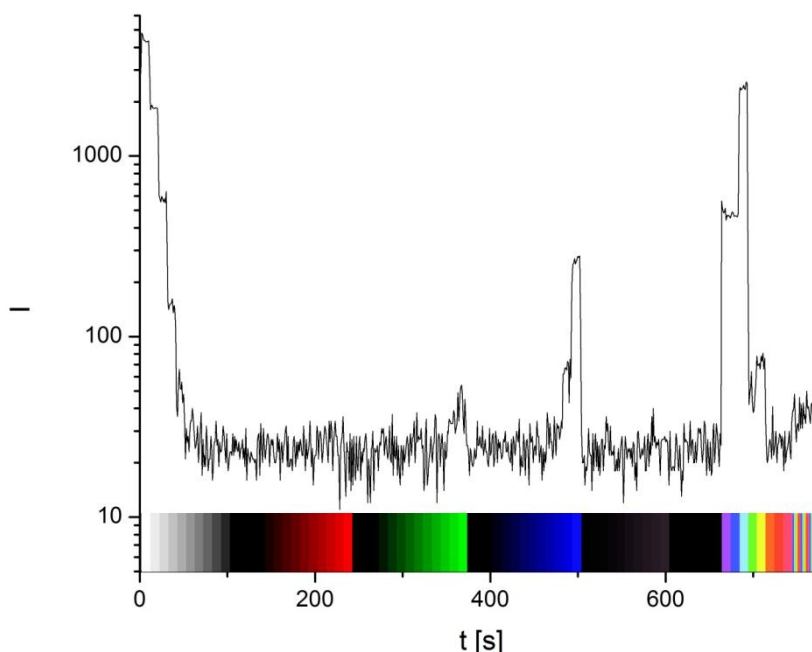
Niskofonska laboratorija Instituta za fiziku Univerziteta u Beogradu sastoji se od dve laboratorije; nadzemne i podzemne laboratorije. U obe laboratorije se vrše kontinuirana merenja intenziteta kosmičkog zračenja korišćenjem plastičnih scintilatora.[1] Svetlosni signal dobijen scintilacijom prilikom prolaska čestica kosmičkog zračenja sakuplja se na fotomultiplikatoru. Često se u realizaciji scintilacionih detektora na fotomultiplikator dovodi i optički kabl čiji se drugi kraj izvede iz scintilacionog detektora. Prilikom svakodnevnog rada, ovaj optički kabl je izolovan od spoljašnje svetlosti. Ovakva izvedba veze fotomultiplikatora i spoljašnjosti plastičnog scintilacionog detektora koristi se za kalibraciju scintilacionog detektora, odnosno samog fotomultiplikatora. Kalibracija se izvodi periodično i daje nam informaciju o stabilnosti fotomultiplikatora, njegovoj osetljivosti na intenzitet ulazne scintilacione svetlosti i na varijacije visokog napona koji napaja fotomultiplikator. Periodične kalibracije upadnom svetlošću omogućavanju da se odredi potrebna korekcija visokog napona koje napaja fotomultiplikatore ili da se koriguje odbroj scintilacionog detektora u cilju dobijanja stabilnijeg kontinuiranog merenja kosmičkog zračenja. Pri ovakvoj svetlosnoj kalibraciji mogu da se koriste razne izvedbe svetlosnih izvora, od kojih neke mogu biti veoma skupe. Ubrzanim razvojem telefonskih uređaja dobili smo veoma dobar i fleksibilan uređaj koji može da se koristi u svrhu monitorisanja promene osobina fotomultiplikatora tokom vremena. Jednostavnim pokretanjem aplikacije za prikaz fotografija, moguće je na ulaz optičkog kabla dovesti svetlost raznih intenziteta i talasnih dužina. Na ovaj način se može pratiti kako se menja osetljivost fotomultiplikatora na razne talasne dužine i intenzitete svetla tokom vremena.

## 2. Kalibraciona postavka

Scintilacioni detektor je postavljen vertikalno kako bi se učestalost signala koji dolazi od kosmičkog zračenja do fotomultiplikatora minimizovao. Na kraju optičkog kabla, koji se nalazi van scintilacionog detektora, postavlja se mobilni telefon na udaljenost od 10 cm. Optički kabl i telefon se zatim optički izoluju od spoljnog svetla crnim zastorom. Pre postavljanja telefona, na njega se snima gupa od 80 fotografija. Prvo idu 10 fotografija od bele do crne sa po 10% povećanja zatamnjenja. Posle ove sekvence idu sekvence od po 10 crvene, zelene i plave boje gde se od crne boje po 10% uvećava zasićenost boje (slika 1. donji deo). Sledeća sekvenca je smanjenje crne boje u CMYK formatu, a potom idu dugine boje, osnovni set od 8 boja, za kojima sledi istih 8 duginih boja odjednom na istoj fotografiji (ukupno bela svetlost). Mobilni telefon je postavljen da menja slike svakih 10s, a signal sa fotomultiplikatora se snimao u sekundnoj vremenskoj seriji. Ova sekundna vremenska serija prikazana je na slici 1.

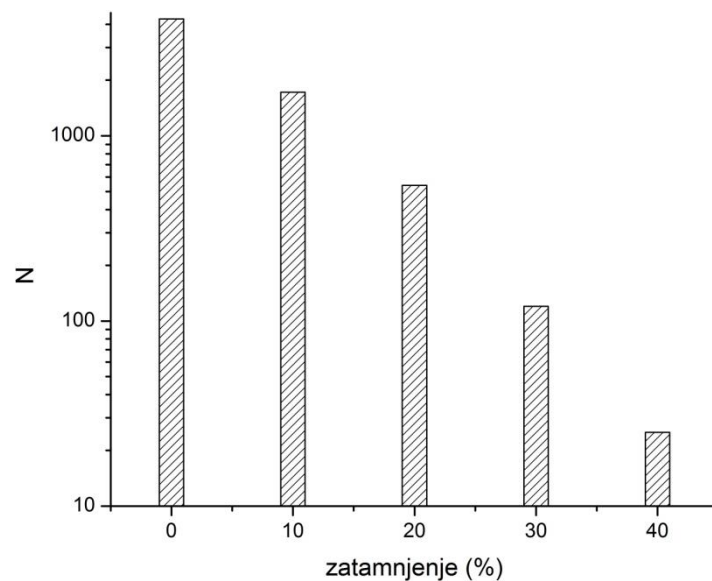
## 3. Rezultati

Odgovor fotomultiplikatora sniman je u sekundnoj vremenskoj seriji, a ulazno svetlo dolazilo je sa mobilnog telefona na kome su se fotografije raznih boja i intenziteta menjale svakih 10s (slika 1).



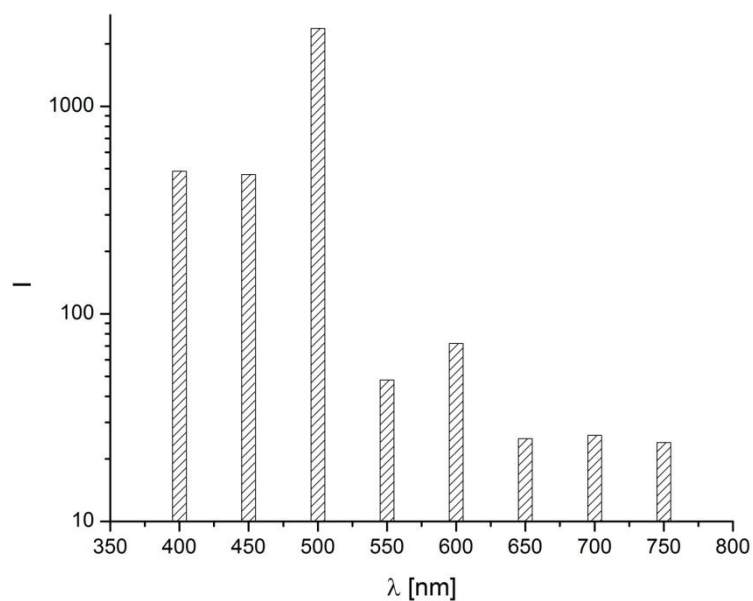
Slika 1. Odgovor fotomultiplikatora na promenu slika na mobilnom telefonu u toku vremena. Slike su menjane svakih 10s.

Kako je cilj da periodično merimo odgovore fotomultiplikatora za poređenje merenja u različitim vremenskim periodima, na primer svake nedelje, prvo mogu da se porede mereni intenziteti bele svetlosti, kod kojih se svakih 10s menja zatamnjenje za po 10% (slika 2). Na slici 2 se vidi kako se odbroji na fotomultiplikatoru menjaju sa povećanjem zatamnjenja i ono ima eksponencijalni pad.



**Slika 2. Odgovor fotomultiplikatora na promenu intenziteta bele svetlosti. Promena počinje od 0% zatamnjenja i svaka sledeća je 10% više zatamnjena.**

Interesantnija je promena efikasnosti fotomultiplikatora na razne boje svetlosti, odnosno talasne dužine tokom vremena. Ovu informaciju dobijamo kada na ulaz optičkog kabla dovodimo svetlost u različitim duginim bojama. Na slici 3 vidi se zavisnost odbroja fotomultiplikatora od talasne dužine upadne svetlosti. Kako se samo 8 boja koristilo u preliminarnim merenjima, sa slike 3 se vidi da je potrebno povećati broj boja u okolini boje kod koje fotomultiplikator daje najbolji odziv, tj. ima najveću efikasnost, a to je plava svetlost. U sledećoj iteraciji razvoja sistema za proveru varijacije efikasnosti fotomultiplikatora broj boja oko plave boje se mora povećati za red veličine.



**Slika 3. Odgovor fotomultiplikatora na promenu boje slike.**

#### **4. Zaključak**

U ovom radu je prikazan primer korišćenja modernih mobilnih telefona pri testiranjima i optimizaciji fotomultiplikatora koji se koriste u kontinuiranim merenjima kosmičkog zračenja u Niskofonskoj laboratoriji Instituta za fiziku u Beogradu. Prikazani su prvi rezultati odziva fotomultiplikatora na razne intenzitete i talasne dužine svetla. Ovakav metod za proveru efikasnosti i varijacije odbroja fotomultiplikatora veoma je lako postaviti. Dodatna poboljšanja su moguća i to ako povećamo broj tačaka za određivanje promene efikasnosti odbroja fotomultiplikatora u zavisnosti od talasne dužine upadne svetlosti, posebno oko boje za koju dobijamo najveći odbroj fotomultiplikatora, a to je plava boja. Uvođenjem periodične kalibracije upadnom svetlošću omogućavaju da se odredi potrebna korekcija visokog napona koje napaja fotomultiplikatore ili koriguje odbroj scintilacionog detektora u cilju stabilizacije kontinuiranog merenja.

#### **5. Napomena**

Ovaj rad je urađen uz pomoć Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije unutar projekta osnovnog istraživanja pod oznakom OI171002.

#### **6. Literatura**

[1] Dragic Aleksandar, Udovicic Vladimir, Banjanac Radomir, Jokovic Dejan, Maletic Dimitrije, Veselinovic Nikola, Savic Mihailo, Puzovic Jovan, Anicin Ivan. The New Set-Up in the Belgrade Low-Level and Cosmic-Ray Laboratory, *Nucl. Technol. Radiat. Prot.* 26 (3) (2011) 181-192.

## THE USEAGE OF MOBILE TELEPHONE FOR TESTING AND OPTIMISATION OF MEASUREMENTS WITH PHOTOMULTIPLIRES

**Dimitrije MALETIĆ, Dejan JOKOVIĆ, Radomir BANJANAC, Nikola VESELINOVIĆ, Mihailo SAVIĆ, Aleksandar DRAGIĆ, Vladimir UDOVIČIĆ**  
*Institute of Physics, Univeristy of Belgrade, Serbia, maletic@ipb.ac.rs*

### ABSTRACT

*The rapid development of telecommunication devices enables the use of such devices in testing and optimization of laboratory measurements. This paper shows an example of modern mobile phones use in testing and optimization of photomultiplier used in continuous measurements of cosmic radiation in Low background laboratory of the Institute of Physics University of Belgrade. Plastic scintillators often have direct external connection to the outside of photomultiplier scintillation detector via optical cable. This direct connection is used for periodic calibration of measuring devices in order to gain stability of continuous measurement. Using applications for displaying images on a mobile phone it is possible to input light of various intensity and wavelength to the optic cable. This paper presents the first results of the photomultiplier response to various wavelengths and intensities of light directing from mobile telephone. Periodic calibration using light source enable us to determine the required correction of high voltage which powers a photomultiplier or correct count rate of scintillation detector in order to stabilize the continuous measurement.*

# THE ORIGINAL SOFTWARE FOR MONITORING MEASUREMENT DATA FROM THE INSTRUMENT VICTOREEN 451P VIA INTERNET

**Trajan STALEVSKI, Luka PERAZIĆ and Branislav VULEVIĆ**  
*PC Nuclear Facilities of Serbia, Belgrade, Serbia, trajan@vinca.rs*

## ABSTRACT

*This paper presents original software for real time acquiring and analyzing data during measuring process using ion chamber radiation survey meter Victoreen 451P. This software improves functionality and provides more user friendly interface than the program provided by the instrument manufacturer. Also, software allows monitoring of measurement data in real time, data analysis, graphical presentation and distribution of the measurement data to remote clients over Internet. In the case of outdoor measurements, collected data can be transferred and stored on the company server via GSM network. The server application allows monitoring of the measurement data in real time and hosts network-published shared variables. The mobile clients (Apple iPhones, Android phones and tablets) can monitor measurement data in real time with National Instruments Data Dashboard application.*

## 1. Introduction

The instrument Victoreen 451P is pressurized ion chamber device, designed to measure gamma, x-ray radiation above 25 keV and beta radiation above 1 MeV. The radiation rate is displayed in digital and analog form on the liquid crystal display (Fig. 1). The digital refresh period is one second while the analog (bar graph) display update period depends on the measuring range and is less than 0.15 seconds [1]. The measurement units are also presented on the LCD display. The instrument has auto-range and auto-zero features. Besides the Rate mode the instrument can work in the Freeze and the Integrate mode. When configured to work in the Freeze mode the instrument remembers the highest measured radiation rate. The highest reading will be shown on the bar graph while the digital display will continue to show current reading. In the Integrate mode the instrument operates continuously 30 seconds after the instrument has been turned on. The instrument can communicate with a computer over a serial RS-232 interface. An optional Excel add-in for Windows can be used for acquiring data from the instrument. In the communication mode measurement data are transferred to computer every second.

## 2. 451 Assistant for Excel

The 451 Assistant for Excel (451EXL) is Excel Add-In software that provides additional commands and features to Microsoft Excel. The 451EXL software provides remote control for many of the Model 451's functions such as its internal data log and integrated dose measurement functions. The 451 Assistant also provides data logging in an Excel spreadsheet in the real time. The 451EXL works with Microsoft Excel versions 97 and 2000. Since the 451 Assistant for Excel is an Excel Add-In, it is automatically loaded with Excel once it is installed [2].

### 2.1 451 Assistant menu and toolbar

The 451 Assistant Menu and Assistant Toolbar provide an interface for the user to remotely control the 451P, configure the 451P, download the internal data log, start real



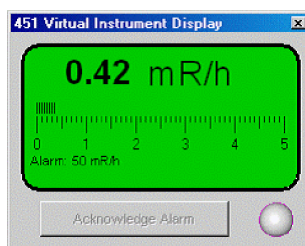
time data logging, and start an integrated dose measurement. With the menu/toolbar items the user can achieve the following functions:

- Connect/Disconnect the serial communication port;
- Start/Stop real time data log;
- Real time data properties;
- Start integrated dose;
- Download internal data log;
- Configuration of the Assistant options;

## 2.2 Data logging

Once Microsoft Excel has been started and the 451 Assistant has been loaded, data logging can be started and the data recorded in the active Excel worksheet. When a measurement is performed the 451 Assistant automatically places the measured data in the active worksheet cell, then moves down to the next row of cells where it will place the next measured data. The properties dialog allows setting the length of time to record data and the time interval between recording data points [2]. During data logging, the Virtual Instrument Display shows the real time rate measurements from the 451P instrument. Also are displayed the alarm setting, acknowledge alarm button and an alarm indicator (figure 1).

When a measurement is performed the 451 Assistant automatically places the measured data in the active worksheet cell, then moves down to the next row of cells where it will place the next measured data. The different colors displayed in the data log correspond to different alarm and alarm action levels. Measurements that are below the alarm threshold are displayed in black. Measurements that are above the alarm level are displayed in red. Measurements that are still above the alarm level after the alarm has been acknowledged are displayed in yellow. Measurements that are below the alarm level after an unacknowledged alarm states are displayed in blue (figure 2). These alarm state colors and other alarm options may be changed through the 451 Assistant options menu [2].



**Figure 1. Virtual instrument display**

	A	B	C	D
1				
2	Creation date: 2/9/2001 11:11:51 AM			
3	Created by: bjones			
4	Time Stamp	mR/h		
5	2/9/2001 11:12	0.07		
6	2/9/2001 11:12	0.06		
7	2/9/2001 11:12	0.06		
8	2/9/2001 11:12	1390		
9	2/9/2001 11:12	1340		
10	2/9/2001 11:12	1280		
11	2/9/2001 11:12	2400		
12	2/9/2001 11:12	1510		
13	2/9/2001 11:12	390		
14	2/9/2001 11:12	24		
15	2/9/2001 11:12	98		
16	2/9/2001 11:12	28		
17	2/9/2001 11:12	14.1		
18	2/9/2001 11:12	8.8		
19	2/9/2001 11:12	5.6		
20	2/9/2001 11:13	3		
21	2/9/2001 11:13	2.33		
22				
23				
24				

**Figure 2. Real time data logged to Excel**

## 2.3 Integrated dose

The 451 Assistant can also be used to make integrated dose measurements. The integration period can be specified for automatically timed integration or the user may control the integration and the 451 Assistant simply measures the integration period. The 451 Assistant will then start the 451P in the run mode. The 451 has a 30-second

reset period after the run mode is started, after which, the instrument will start integrating. After the stop button is pressed or the timer has expired, the assistant will read the integrated dose from the 451P and insert the dose in the active cell and the average dose rate in the next cell to the right [2].

*2.4 The disadvantages of the program 451 EXL*

The 451EXL software does not support graphical presentation of the measured data in real time. The existence of such characteristics is very important for the end user. Instead of graphic presentation in real time the 451EXL software offers the possibility of graphic presentation of measured data (line chart), but it requires interaction with EXCEL program.

Also the 451EXL program does not provide transfer of measured data to remote server computer so other interested persons can not follow the measurement in real time. It is desirable that remote clients can access the measurement data in real time with their smart phones and tablets.

Due to these disadvantages of the factory program 451EXL we decided to write our own program 451NFS that will meet all of our requirements. Unfortunately, the Fluke Biomedical documentation for the device 451P does not contain a communication protocol for the data exchanging between device 451P and the computer. Therefore, the first step in writing our program was discovering the mentioned communication protocol.

**3. Communication protocol**

We recorded the communication protocol for the device 451P with program "HDD Free Serial Port Monitor" [3]. Thanks to this program, we discovered that the device 451P uses commands that are given in the Table 1.

**Table 1. List of the Victoreen 451P commands**

<b>Cmd</b>	<b>Description</b>
F	Read saved
M	Modify
R	Review modified
T	Test
E	Exit & save new
X	Output log data
Q	Quit, keep old
U	Units
H	Freeze / Integrate
S	Set data log parameter
A	Set blink alarm

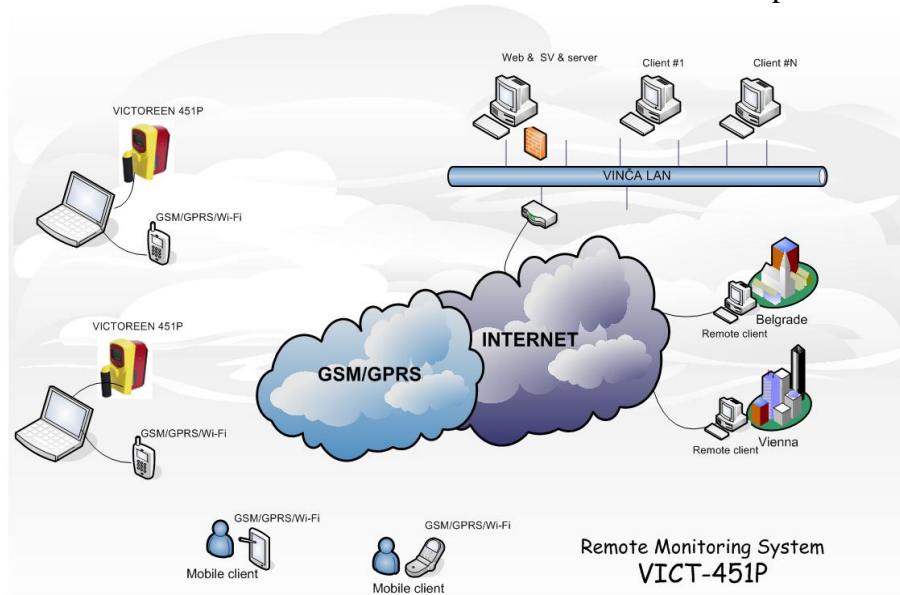
The implemented communication protocol between the instrument 451P and a computer is based on ASCII code. The good side of this solution is that the instrument can be tested using programs for terminal emulation (Hyper Terminal). All commands are one character long and therefore are easy to use in the program. Unfortunately, the command is not ended with termination character (CR or LF) and there is no checksum verification. Better serial protocols use checksum (additional bytes added at the end of

the data string) to check the data integrity, as errors might occur during data transmission. There are many types of checksum, from the simplest uses of it in Modula or BCC (Block Check Character) to sophisticated CRC (Cyclic Redundancy Check) calculation. The manufacturer should improve instrument software with checksum verification code.

Also, the instrument answer is not well formatted. For example, after issuing a command T instrument takes about 30 seconds to synchronize with the program, and then sends the measured intensity of the radiation dose every second. After sending fifteen measurement data instrument sends measurement units. This format of sending data is repeated until the operator does not interrupt further transmission of measurement data. When the instrument is controlled by the 451 Assistant software and the instrument sends measurement units as 16<sup>th</sup> data, the 451 Assistant software writes the 15<sup>th</sup> measurement data as a 16<sup>th</sup> data in the spreadsheet. The user does not know that this is happening in the background.

#### 4. Architecture of the monitoring system Victoreen 451P

The monitoring system VICTOREEN 451P (VICT-451) presents distributed measurement system which is realized in three hierarchy levels. Each level of the system VICT-451 plays its role in measurement, processing and visualization of measurement data. The architecture of the monitoring system VICT-451 is shown in figure 3. The lowest level of the monitoring system VICT-451 is consisting of one to several Victoreen 451P instruments. The second level of the monitoring system VICT-451 is consisting of mobile and desktop computers which are connected to Internet via cable, Wi-Fi or GSM network. The third level of the system VICT-451 is consisting of Web and Shared Variable servers and a certain number of client computers.



**Figure 3. Architecture of the monitoring system VICT-451**

The clients from PC Nuclear Facilities of Serbia as well as the special clients out of our computer network would have rights to access measurement data in real time. Access to the measurement data can be limited by defining the authorized IP addresses of

computers as well as with appropriate passwords. Also, the measurement data can be accessed by mobile phones and tablets.

## 5. Measurement application

The measurement application is completely written in LabVIEW 8.6 programming language [4]. LabVIEW is a dataflow graphical programming language specifically designed for measurement, analysis and presentation of data.

In the time interval of one second the program collects data from RS-232 serial port, performs processing, displays measurement data in graphic form in real time, writes measurement data to disk, updates the LED indicator to signals the alarm condition and sends measurement data to the Web&SV server via Internet.

At the operator request the program calculates the mean value, the integral dose and the maximum dose. Parallel with measurement data the mean value is plotted on the chart. The measurement data are presented in blue, while the calculated mean value is presented in red (Fig. 4).

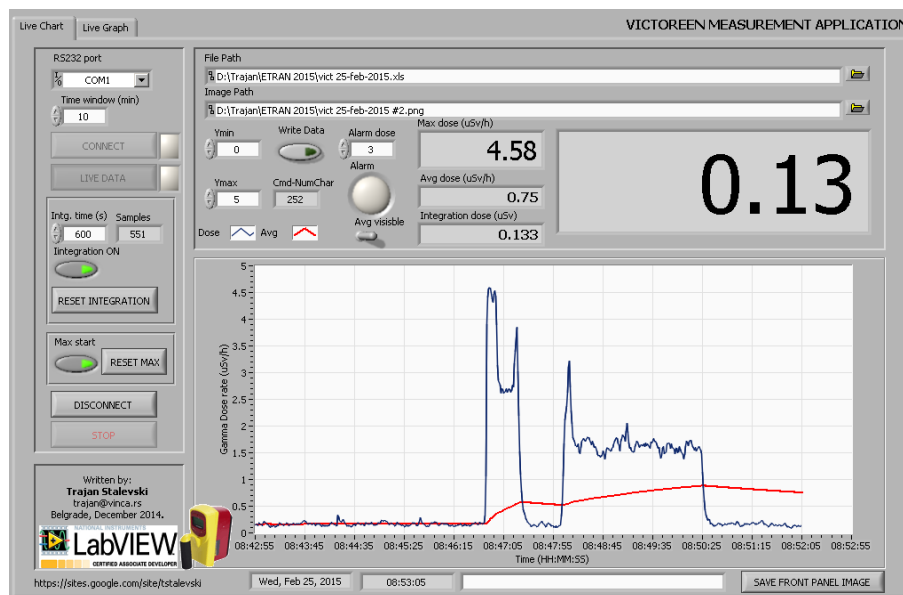


Figure 4. Front panel of the measurement application

At any time the active user front panel can be remembered as a PNG image file for documentation purposes. Besides displaying measurement data in real time the program allows displaying the history of measured data. Using the two graphical cursors operator can define an area on the time axes to calculate the mean, integration, minimum and maximum dose. Moving cursor along the measured curve the operator can read each measured data.

## 6. Server application

The server computer has a role of web and Shared Variable server. The web server allows individual clients to access measurement data via Internet using a web browser. Shared Variable server allows the distribution of measurement data in real time over Internet. Both servers can reside on the same computer. The server must have a static IP address. The server application has all the features that has the measurement application. The only difference is in the method of collecting measurement data. While

the measurement application communicates with the instrument, the server application communicates with shared variables. The shared variables are only supported on Windows machines. For other operating systems (Linux, Mac OS) DataSocket technology can be used. The shared (network) variables simplify data exchange between applications on the same system or across the network. The network variables use the NI Publish-Subscribe Protocol (NI-PSP) to send and receive data across the network.

## **7. Client application**

The client application is installed on the client side and works under operating systems MS Windows XP/2000/ VISTA. Also, this application is written in the programming language LabVIEW 8.6. Each client has unique identification information (username and password) and these data are automatically saved on the Web&SV server. The client application allows clients to monitor live measurement data via Internet. They can be located in different cities, countries, continents and is only necessary to have any access to the Internet. The remote clients can exchange text messages and download measurement data from Web&SV server.

## **8. Monitoring measurement data with web browser**

The graphical programming language LabVIEW has embedded web server since version 5. Thanks to this server developer can easily make visible user front panels with the web browser. There is no need for special coding in the block diagram. To see a static image of the virtual instrument (LabVIEW program) it is necessary to enter the following command in the address field of the web browser: *http://IP\_Host/.snap?program-name.vi*. Also, LabVIEW web server enables displaying of animated images. It is only necessary to replace the snap command with monitor command. Both commands are not supported by standard web servers. In addition to the integrated web server, company National Instruments has developed external web server, known as G web server. G web server is a standalone application that runs independently of other virtual instruments. This server enables developers to interact with measurement application via a web browser. This interaction is performed using CGI (Common Gateway Interface) functions [5].

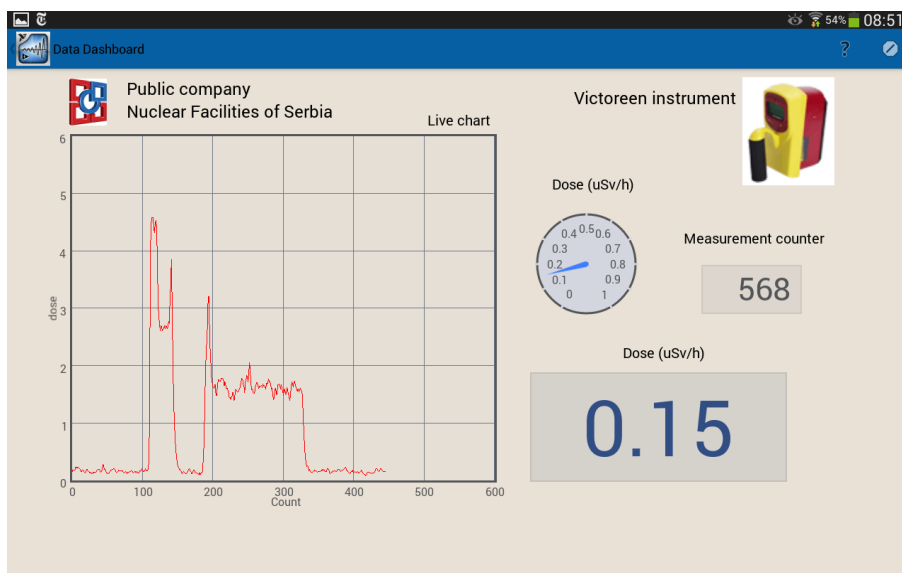
## **9. Data Dashboard Android application**

With the Data Dashboard for LabVIEW application, developers can create a custom, portable view of NI LabVIEW software applications. The application displays the values of network-published shared variables and/or web services on charts, gauges, text indicators, and LEDs (figure 5). Users can create custom layouts of one, two, four, or six indicators and quickly swipe between multiple layouts [6]. After the application is developed and web services or shared variables are deployed, building a dashboard is as simple as browsing to the server and choosing the signals to monitor. Numeric, Boolean, or string data types can be monitored and each data type features multiple indicator types including LEDs and charts.

The Data Dashboard Mobile for LabVIEW applications has the same functionality, but only has one indicator per dashboard instead of the multiple indicator layouts more easily readable on a tablet. With the Data Dashboard for LabVIEW applications on the iPad or Android tablet, programmers can develop customized dashboards that can both monitor and control remote applications.

## 10. Conclusions

The manufacturer software for communication between the instrument Victoreen 451P and a computer is very simple and does not support checksum verification. Therefore is not immune on errors that might occur during data transmission. Vendor software 451EXL for PC does not enable graphical presentation of measured data in real time.



**Figure 5. Real time monitoring of measurement data on the Android tablet**

Described measurement applications for monitoring gamma dose rate outdoors and indoors is fully developed and implemented in public company Nuclear Facilities of Serbia. In the time interval of one second the measurement application collects data from the Victoreen 451P instrument, performs processing, displays measurement data in graphic form in real time, writes measurement data to disk and sends measurement data to the shared variable server via Internet.

The measurement application communicates with the server computer via the mobile Internet. The server computer can reside anywhere.

The program is fully written in a graphical programming language LabVIEW 8.6 which has integrated web server. The remote clients can access the measurement data via Internet with web browsers. Also, the measurement data can be monitored in real time with tablets and mobile phones.

The client application allows remote clients not only to monitor the measurement data in real time but also to transfer measurement data from the server to the remote client computers. Additionally, the client application allows remote clients to exchange text messages.

## 11. References

- [1] Fluke Biomedical, Victoreen 451P & 451P-DE-SI Ion Chamber Survey Meter, *Operator manual*, June 2009.
- [2] Fluke Biomedical, 451P Assistant for Excel, *Instruction manual*, June 2009.
- [3] HHD Software, <http://www.serial-port-monitor.com>
- [4] National Instruments, *LabVIEW Fundamentals*, 2008.

[5]Trajan Stalevski, Kontrola uređaja pomoću veb pretraživača, *55. konferencija ETRAN*, Banja Vrućica, 6.-9.juna 2011, RT5.4 1-4.

[6] National Instruments, *Smartphones and tablets for measurement and control*, November 2014.

## **ORIGINALNI PROGRAMI ZA MONITORING MERNIH PODATAKA SA INSTRUMENTA VICTOREEN 451P PREKO INTERNETA**

**Trajan STALEVSKI, Luka PERAZIĆ i Branislav VULEVIĆ**  
*JP Nuklearni objekti Srbije, Beograd, Srbija, trajan@vinca.rs*

### **SADRŽAJ**

U radu je opisan skup originalnih programa za prikupljanje i analizu podataka koji se mere instrumentom Victoreen 451P u realnom vremenu. Ovi programi poboljšavaju funkcionalnost i pružaju mnogu ugodniji korisnički interfejs nego što to nudi program proizvođača instrumenta. Takođe, programi omogućavaju monitoring mernih podataka u realnom vremenu, analizu podataka, grafičku prezentaciju i distribuciju mernih podataka udaljenim klijentima preko Interneta. Ako se merenja obavljaju na terenu, prikupljeni podaci se prenose do serverskog računara preko GSM mreže. Serverska aplikacija omogućava monitoring mernih podataka u realnom vremenu i ujedno servisira mrežne varijable. Mobilni klijenti (Apple telefoni, Android telefoni i tableti) mogu pratiti merne podatka u realnom vremenu pomoću National Instruments Data Dashboard aplikacije.

## DIFRAKCIONE SLIKE NA KONUSNIM I SFERNIM OBJEKTIMA

Nenad STEVANOVIĆ, Vladimir M. MARKOVIĆ, Dušica SPASIĆ

*Univerzitet u Kragujevcu, Prirodno matematički fakultet, R. Domanovica 12, 34000*

*Kragujevac, Srbija*

*Univerzitet u Prištini, Prirodno matematički fakultet, Lole Ribara 29, 38220, Kosovska*

*Mitrovica, Srbija*

[nstevanovic@kg.ac.rs](mailto:nstevanovic@kg.ac.rs), [vmarkovic@kg.ac.rs](mailto:vmarkovic@kg.ac.rs), [dusica.spasic@pr.ac.rs](mailto:dusica.spasic@pr.ac.rs)

### SADRŽAJ

U ovom radu razvijen je model i programski kod za formiranje difrakcione slike svetlosti, koja prolazi kroz proreze i prepreke oblika sfere i kupe. Svetlosni talas koji prolazi kroz sredinu je modelovan na osnovu Hajgens-Frenolovog principa. Razvijen program omogućuje primenu u analizi trag detektora, analizi bioloških sistema i proceni raspodele aerosola po dijametru.

### 1. Uvod

Centralna tema u optici je prostiranje svetlosti kroz proreze, pored prepreka, dimenzija reda talasne dužine svetlosti. Usled toga nastaje difrakcija svetlosti [1]. Difrakcija svetlosti predstavlja efektivno skretanje svetlosnog talasa, kada prolazi kroz prorez ili pored prepreke, čije su dimenzije reda talasne dužine svetlosti. Kao rezultat difrakcije formira se difrakciona slika, naizmenična raspodela svetlih i tamnih oblasti. Otkriće difrakcije je u znatnoj meri doprinelo razvoju nauke i tehnike. Pri konstrukciji i izradi savremenih optičkih uređaja, pojava difrakcije se uzima obzir kod izrade sočiva, fotoaparata, kamera, teleskopa, mikroskopa. Efekti difrakcije mogu se videti posmatrajući biološke sisteme, ćelije ili skup ćelija. Difrakcione pojave se široko koriste za proučavanje strukture materije, u metalurgiji, farmaciji, u hemijskoj i prehrambenoj industriji, itd [1].

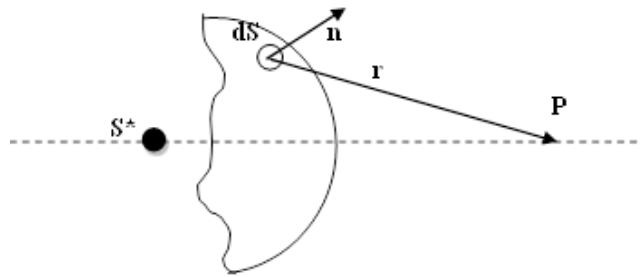
Prema obliku talasnog fronta razlikuju se dva tipa difrakcije svetlosti: **Frenelova** (sferni svetlosni talas) i **Fraunhoferova** (ravanski svetlosni talas). Pojava difrakcije se može objasniti Hajgens-Frenelovim principom prostiranja svetlosnog talasa.

Hajgens-Frenelov princip, se može predstaviti u vidu nekoliko iskaza: a) amplitude svetlosnih oscilacija iz izvora  $S^*$  u posmatranoj tački  $P$  mogu se zameniti sistemom sekundarnih izvora od elemenata  $dS$  proizvoljno izabranog oblika talasne površi (talasnog fronta)  $S$  koja obuhvata izvor, ali ne obuhvata posmatranu tačku  $P$  (Slika 1); b) sekundarni izvori su ekvivalentni sa izvorom  $S^*$  i koherentni među sobom i zato pri superpoziciji sekundarnih talasa dolazi do interferencije.

Amplituda oscilovanja jačine električnog polja u tački  $P$  izazvana sekundarnim izvorima talasa, direktno je srazmerna površini  $dS$  odgovarajućeg dela talasne površi  $S$ , a obrnuto srazmerna rastojanju  $r$  do tačke  $P$ . Amplituda zavisi od ugla  $\theta$  između spoljne normale na talasnu površ  $dS$  i pravca  $r$  od elementa  $dS$  ka tački  $P$  [1,2].

$$dE_p = a(\theta) \frac{1}{r} E e^{i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} ds \quad (1)$$





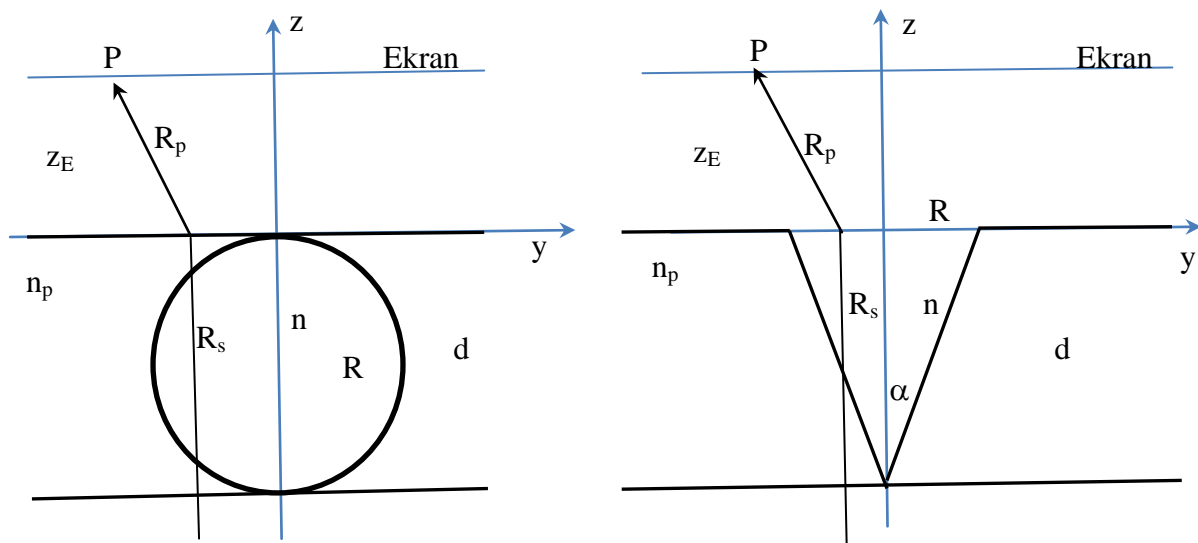
Slika 1. Talasni front

Mnogi radovi su posvećeni određivanju raspodele intenziteta svetlosti nakon njene difrakcije na različitim objektima. Razmatrane su Frenelova i Fraunhoferova difrakcija na kružnom, eliptičnom i pravougaonom prorezu [3,4]. Dobijanje analitičkog izraza za raspodelu intenziteta svetlosti je moguće samo za navedene slučajeve. Raspodela intenziteta svetlosti za kružni prorez se izražava preko Besselovih funkcija, a za pravougaoni oblik preko Frenelovih integrala. Pri tome mora da bude ispunjeno da su dimenzije proreza dovoljno male, odnosno da je rastojanje ekrana od proreza dovoljno veliko, kako bi se uvele pogodne matematičke aproksimacije.

Prema Hajgens-Frenelovom principu, u ovom radu je razvijen model i program koji omogućuje kreiranje difrakcione slike usled prolaska svetlosti kroz trodimenzionalnu prepreku. Projekcija razmatrane prepreke je podeljena na segmente i svaki segment do ekrana daje svetlost, čije je električno polje opisano relacijom (1). Sumirajući električna polja talasa od svih segmenata, zabeležena je raspodela intenziteta svetlosti na ekranu. Prednost ovog metoda je što se može primeniti za obe vrste difrakcije, za prepreku proizvoljnog oblika, i izbegava se komplikovano matematičko rešavanje.

## 2. Metodologija

Geometrija prolaska svetlosti kroz udubljenja oblika kupe i oblika sfere u planparalelnim pločama, sa ekranom, na kome se kreira difrakciona slika, prikazana je na Slici 1. Sistem se sastoji od ravne ploče, indeksa prelamanja  $n_p$ , debljine  $d$ , u kojoj se nalazi prorez oblika kupe (poluprečnika osnove  $R$  i visine  $d$ ) ili sfera (poluprečnika  $R=d/2$ ). Indeks prelamanja sredine proreza je  $n$ . Ravanski svetlosni talas, talasne dužine  $\lambda$ , upada na donju površ ploče. Na ekranu, koji se nalazi na rastojanju  $z_E$  od gornje površine ploče, formira se difrakciona slika.



**Slika 2. Geometrija ploče, preseza i ekrana. Oznake su sledeće: P- tačka na ekranu;  $z_E$ - rastojanje ekrana od ploče;  $R_p$  – rastojanje koje svetlosni talas pređe od ploče do tačke P;  $R_s$  – rastojanje koje svetlosni talas pređe kroz prorez unutar konusa, odnosno sfere; R- poluprečnik sfere, odnosno osnove kupe; d- debljina ploče;  $n_p$ , n- indeks prelamanja ploče i preseza**

Na Slici 2 je prikazan je jedan od pravca svetlosnih talasa koji prodiru kroz ploču i prorez i dopiru do ekrana u tački P. Projekcijom sfere, odnosno konusa, na donju površ ploče, dobija se krug poluprečnika R. Na taj krug upada ravanski svetlosni talas u pozitivnom smeru z ose. Krug je podeljen na segmente površi  $ds = \rho d\rho d\phi$  i svaki od njih emituje talas prema ekranu dat relacijom (1). Fazna razlika svetlosnog talasa na ekranu u odnosu na talas na donjoj površini ploče jednaka je

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda} (n_p \cdot (d - R_s) + n \cdot R_s + n \cdot R_p) \quad (2)$$

gde je  $R_s$  rastojanje koje pređe talas prolazeći kroz prorez, a  $R_p$  je rastojanje koje pređe talas od gornje površi ploče do tačke P na ekranu.

Rastojanje  $R_s$  se računa na osnovu jednačine konusa  $z = \text{ctg}(\alpha) \cdot \rho \cdot d$ , odnosno sfere  $x^2 + y^2 + (z + R)^2 = R^2$ , znajući položaj segmenta  $ds$ . Koordinate segmenta su  $(\rho \cos(\phi), \rho \sin(\phi), -d)$ .

Doprinos jačini električnog polja talasa, koji dopire do ekrana, u tački P od posmatranog segmenta  $ds$  je

$$dE_p \sim E e^{i\delta} ds \quad (3)$$

Ukupna jačina električnog polja talasa u tački P na ekranu, jednaka je zbiru polja svih talasa koji dopiru do tačke P, emitujući se od svih segmenata  $ds$ , prodirući položiu i prorez.

$$E_p \sim \sum_n E e^{i\delta_n} ds_n \quad (4)$$

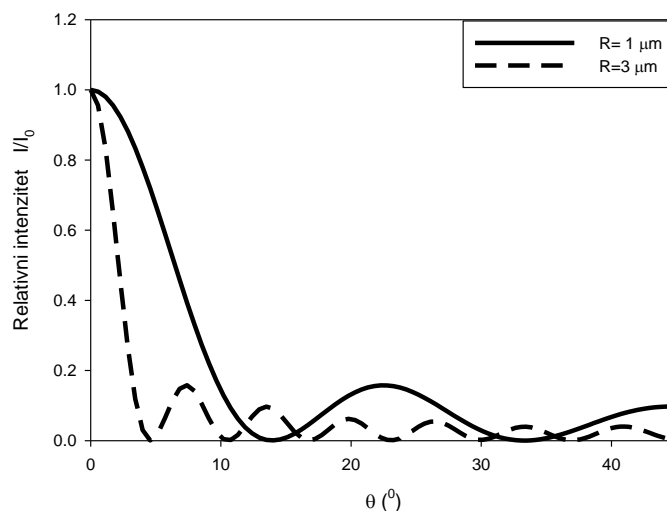
Intenzitet svetlosti u tački P na ekranu, može se računati kao kvadrat modula jačine električnog polja rezultujućeg talasa

$$I \sim |E_p|^2 \quad (5)$$

Treba naglasiti da prolaskom svetlosnog talasa kroz prorez prikazane geometrije, dolazi do deformacije talasnog fronta na konusnoj, odnosno sfernoj površi. Ta promena je uračunata u faznoj razlici, data relacijom (2). Ovaj pristup je prihvaćen od autora koji su razmatrali sličan problem [5,6]. Na graničnim površinama pored deformacije talasnog fronta, dolazi i do superpozicije talasa od ostalih segmenata. S obzirom da je veoma malo radova posvećenih difrakciji svetlosti na 3D objektima, problem deformacije talasa će biti predmet našeg daljeg istraživanja.

### 3. Rezultati i diskusija

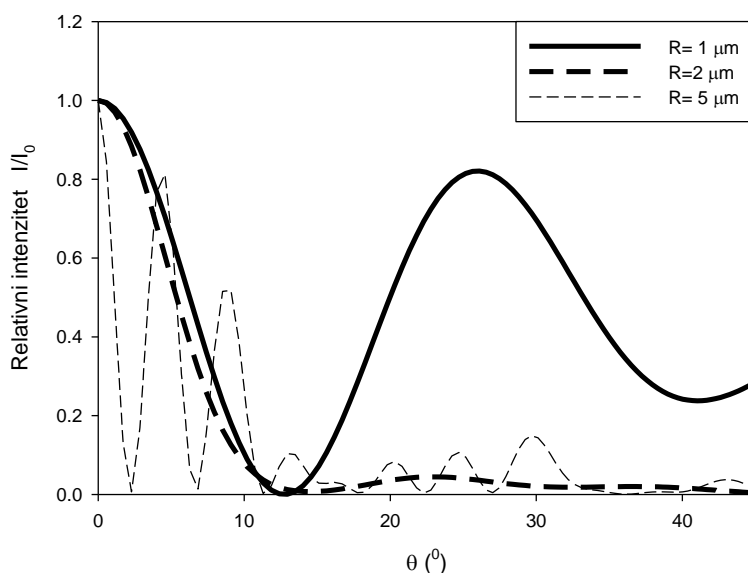
Razmatran je intenzitet svetlosti od konusa radijusa osnove  $1 \mu\text{m}$  i  $3 \mu\text{m}$ , sa debljinom ploče  $d=20 \mu\text{m}$ . Talasna dužina svetlosti je  $\lambda=633 \text{ nm}$ . Segmenti talasnog fronta kojim se osvetljava prorez i ploča su birani u okviru kruga, koji se dobija projekcijom proreza na donju površ ploče. Indeks prelamanja ploče  $n_p=1.5$ , a konusa je  $n=1$ . Smatrano je da se sistem nalazi u vazduhu. Normirana raspodela intenziteta je prikazana na Slici 3, kao funkcija ugla posmatranja difrakcione slike,  $\theta$ . Ugao  $\theta$  je definisan kao  $\text{tg } \theta = y_e/z_e$ . Prikazani rezultati su isti kao što je dobijeno u radu [5] u kome su autori odredili analitički izraz za intenzitet svetlosti koji prolazi kroz konusni prorez. Sa slike se vidi da je difrakciona slika manje širine i sa većim brojem perifernih maksimuma, ukoliko je radijus konusa veći. U radovima [5,6] dat je analitički izraz intenziteta svetlosti za tragove u vidu pravog konusa i polusfere. Prikazani model u ovom radu se može primeniti za analizu difrakcione slike tragova u detektoru različitih oblika.



**Slika 3. Normirana raspodela intenziteta svetlosti nakon prolaska konusnog proreza**

Na Slici 4 prikazana je raspodela intenziteta svetlosti koja prolazi kroz ploču indeksa prelamanja  $n_p=1$  u kojoj se nalazi neprozirna sfera radijusa  $R$ . Intenzitet svetlosti na ekranu je dat u funkciji ugla posmatranja difrakcione slike, za različite

vrednosti radijusa sfere. Sa Slike 4 se može videti da se difrakciona slika menja sa promenom radijusa sfere. Centralni maksimum difrakcione slike se nalazi na osi ekrana. Njegova širina je manja sa porastom radijusa sfere. Broj perifernih maksimuma raste sa porastom radijusa sfere, a njihove širine i njihovi intenziteti se smanjuju. Ovakav model se može primeniti za analizu distribucije aerosola po dijametru [7].



**Slika 4. Normirana raspodela intenziteta svetlosti nakon prolaska pored sferne prepreke**

#### 4. Zaključak

U ovom radu predstavljen je model i razvijen je program za kreiranje difrakcione slike svetlosti koja prolazi kroz prorez/prepreku oblika sfere ili kupe. Model je razvijen na osnovu Hajgens-Frenelovog principa prostiranja svetlosti. Nađena je zavisnost promene difrakcione slike u zavisnosti od parametara proreza/prepreke. Model prikazan u ovom radu je dobra osnova za proučavanje difrakcione slike svetlosti koja prolazi kroz sredine različitih oblika i struktura.

Analiza difrakcione slike svetlosti kroz 3D prepreke može imati široku primenu: posmatranje bioloških sistema (ćelija) mikroskopom, gde ćelija, u rastvoru koji se posmatra, ima približno sferni oblik; u radijacionoj i nuklearnoj fizici pri analizi nagrizanih trag detektora optičkim mikroskopom, gde formitan trag u detektoru je konusnog i oblika ili oblika polusfere; u analizi raspodele aerosola po dijametru, posmatranjem sloja aerosola (sfernih oblika) na tankoj planparalelnoj ploči optičkim mikroskopom.

Prisutup u formiranju i analizi difrakcione slike prikazan u ovom radu, je samo osnova i početak daljeg istraživanja, sa ciljem da se primeni u navedenim oblastima.

#### 5. Literatura:

- [1] D. M. Nikolić. Eksperimenti sa difrakcijom svetlosti i njihov značaj za nastavu fizike. Doktorska disertacija, 2013. Prirodno–matematički fakultet, Niš.
- [2] K. G. Makris, D. Psaltis. Huygens–Fresnel diffraction and evanescent waves. *Optics Communications*. 284 (2011) 1686–1689.

- [3] Y. Cui, W. Zhang, J. Wang, M. Zhang, S. Teng. Fresnel diffraction of aperture with rough edge. *Journal of Optics*. 17 (2015) 065607 (11pp).
- [4] K. M. Abedin, S.M. M. Rahman. The iterative Fresnel integrals method for Fresnel diffraction from tilted rectangular apertures: Theory and simulations. *Optics & Laser Technology*. 44 (2012) 939–947.
- [5] A. Belafhal, L. Dalil-Essakali, M. Fahad. Fraunhofer diffraction by conical tracks. *Optics Communications*. 175 (2000) 51–55.
- [6] M. Ibnchaikh, K. Nassim, A. Belafhal. Theoretical study of Fraunhofer diffraction by hemispherical tracks. *Phys. Chem. News*. 4 (2001) 15-18.
- [7] Z. Stojanović, S. Maković, D. Uskoković. Merjenje raspodele veličina čestica metodom difrakcije laserske svetlosti. *Novi materijali*. 19 (2010) 5.

## **DIFFRACTION PATTERN OF THE LIGHT ON SPHERICAL AND CONICAL OBJECTS**

**Nenad STEVANOVIĆ, Vladimir M. MARKOVIĆ, Dušica SPASIĆ**

*University of Kragujevac, Faculty of Science, R. Domanovica 12, 34000 Kragujevac, Serbia*

*University of Priština, Faculty of Science, Lole Ribara 29, 38220, Kosovska Mitrovica, Serbia*

[nstevanovic@kg.ac.rs](mailto:nstevanovic@kg.ac.rs), [vmarkovic@kg.ac.rs](mailto:vmarkovic@kg.ac.rs), [dusica.spasic@pr.ac.rs](mailto:dusica.spasic@pr.ac.rs)

### **ABSTRACT**

The model and program code for creation of diffraction pattern of the light, when passes through a spherical and conical medium, were developed in the paper. Wave-light was modelled according to Huygens-Fresnel principle. The developed model can be applied for analysis of tracks detectors, biological systems, determination of aerosols distribution, etc.

## **НЕЈОНИЗУЈУЋА ЗРАЧЕЊА**

# KARAKTERIZACIJA IZVORA UV ZRAČENJA ZA VEŠTAČKO TAMNJENJE KOŽE

**Branislav VULEVIĆ, Trajan STALEVSKI**

*JP Nuklearni objekti Srbije, Vinča, Beograd, Srbija*

[branislav.vulevic@nuklearniobjekti.rs](mailto:branislav.vulevic@nuklearniobjekti.rs)

## SADRŽAJ

*Veštački izvori ultraljubičastog (UV) zračenja za kozmetičko tamnjenje kože (lampe i kreveti za sunčanje – tzv. » kozmetički solarijumi«) i dalje se aktivno koriste širom sveta, posebno u Evropi i Severnoj Americi, uprkos činjenici da je Međunarodna agencija za istraživanje kancera (IARC) svrstala UV zračenje solarijuma u grupu 1 tj. najveću kategoriju rizika od kancera – „kancerogeno za ljude“. Cilj ovoga rada je da, na osnovu dosadašnjeg nivoa saznanja, pruži polaznu osnovu za razvoj metoda merenja i karakterizacije veštačkog UV zračenja u neposrednoj blizini solarijuma.*

### 1. Uvod

UV zračenje odlikuje se najvećom energijom fotona (3,10 do 12,4 eV) u odnosu na ostale vidove nejonizujućih zračenja, tako da je biološki najaktivnije [1].

Prema očekivanom biološkom delovanju, a na osnovu fizičkih osobina UV-zračenja, Međunarodna komisija za osvetljenje (CIE) usvojila je 1963. godine podelu UV-zračenja u tri oblasti [2]:

UVA zraci (315 nm – 400 nm) – područje crne svetlosti;

UVB zraci (280 nm – 315 nm) – područje eritema kože;

UVC zraci (100 nm – 280 nm) – germicidno područje.

Najveći prirodni izvor UV zračenja je Sunce. Najznačajniji veštački izvori UV zračenja kojem mogu biti izloženi pojedinci iz opšte populacije su: solarijumi, fluorescentne cevi koje služe za osvetljavanje u kancelarijama i domaćinstvima, lampe za uništavanje insekata, lampe za utvrđivanje adekvatnosti dokumenata, novčanica i poštanskih maraka i UVA lampe crne svetlosti koje izazivaju fluorescenciju kože i odeće igrača na estradi i u diskotekama [3].

Poslednje dve decenije kozmetički solarijumi se sve više koriste u svrhu dobijanja tamnog tena. IARC kao deo Svetske zdravstvene organizacije (WHO), je još novembra 1997. godine uvrstila UV zračenje navedenih izvora u grupu 2A – verovatno kancerogeno za ljude jer su tada postojali sigurni dokazi vezani samo za eksperimente sprovedene na životinjama. Jula 2009. godine, nakon daljih istraživanja, IARC je prebacio kozmetičke solarijume u grupu 1 tj. najveću kategoriju rizika od kancera – „kancerogeno za ljude“ [4]. Prema navedenom, treba izbegavati preterano izlaganje veštačkim izvorima UV zračenja, posebno osoba mlađih od 18 godina. Ostale zaštitne mere bi se svele na: strogo doziranje UV zračenja u zavisnosti od tipa kože, korišćenje odgovarajućih zaštitnih naočara, zabrana istovremene upotrebe kozmetičkih preparata kao i nekih lekova i dr.

### 2. Fizičke veličine i jedinice

Fizičke veličine kojima se vrši kvantitativno izražavanje karakteristika UV-zračenja su:

intenzitet zračenja ili ozračenost (oznaka: I) i

gustina energije ili zračna ekspozicija (oznaka: H)

Intenzitet zračenja predstavlja snagu po jedinici površine i koristi se za kontinualnu ekspoziciju. Izražava se u jedinicama  $W/m^2$  ili u  $W/cm^2$ .

Gustina energije predstavlja energiju zračenja po jedinici površine i koristi se kod ograničene ekspozicije (impulsni izvori). Izražava se u jedinicama  $J/m^2$  ili  $J/cm^2$ .

Efektivna ozračenost ( $E_{eff}$ ) definiše se sledećom jednačinom:

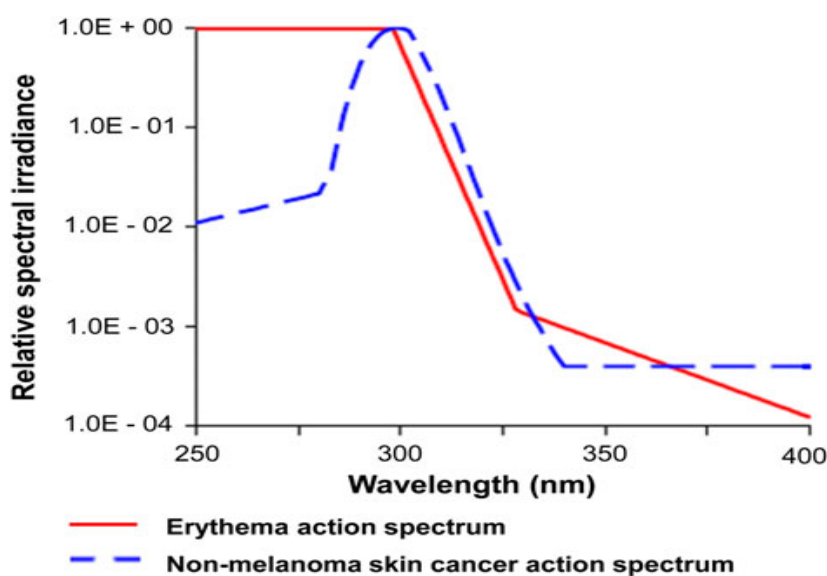
$$E_{eff} = \sum_{250}^{400} E(\lambda) S(\lambda) \Delta\lambda \quad (1)$$

gde su:

$E_{\lambda}$  - spektralna ozračenost ( $W \cdot m^{-2} \cdot nm^{-1}$ );

$S(\lambda)$  – relativna spektralna efikasnost (težinski faktor) sa slike 1 (Erit. akcioni spektar);

$\Delta\lambda$  - interval talasne dužine (nm)



**Slika 1. Akcioni spektri - Eritemski i nemelanomski rak kože [5,6,7]**

Na slici 1 prikazani su akcioni spektri dobijeni na osnovu bioloških ispitivanja uticaja UV zračenja na kožu i to: eritemski (eritem – crvenilo kože) [5] i tzv. akcioni spektar nemelanomskog raka kože (NMSC) [6, 7].

Efektivno izlaganje – doza ( $D$ ) definiše se kao:

$$D = E_{avg} \cdot \Delta t \quad (2)$$

gde su:

$E_{avg}$  - Srednja efektivna ozračenost ( $W/m^2$ );

$\Delta t$  – vreme izlaganja

### 3. Tipovi solarijuma i klasifikacija

Solarijumi su uređaji koji imaju jednu ili više lampi koje emituju UV zračenje. Dele se na medicinske i kozmetičke.

Medicinski solarijumi su veštački izvori UV zračenja koji se koriste u terapijske svrhe sa ciljem lečenja bolesti.



Kozmetički solarijumi su veštački izvori UV zračenja koji se koriste u estetske svrhe. Postoje dve različite kategorije solarijuma sa različitim karakteristikama emisije UV zračenja i različitim tehničkim karakteristikama usled zahteva za eliminisanjem neželjenih talasnih dužina (tzv. “filtriranje”) [6]:

Solarijumi sa fluorescentnim lampama niskog pritiska (LP) koji emituju širokopoljasno ili uskopoljasno uglavnom UVA ili uglavnom UVB zračenje i

Solarijumi koji, zbog filtracije, koriste lampe visokog pritiska (HP) koje praktično emituju samo UVA ili određenu kombinaciju UVA i UVB zračenja.

LP solarijumi se uglavnom koriste za ozračivanje tela, dok se HP solarijumi koriste za ozračivanje lica (tzv. “kvarceri za lice”).

Princip rada, odnosno emisije zračenja, lampi visokog pritiska je sličan principu rada fluorescentnih lampi. Lampe visokog pritiska emituju linijski spektar zračenja karakterističan za živu i primese. Pored UV-A zračenja, lampe visokog pritiska emituju i znatne količine UV-C, UV-B, vidljivog i IC zračenja. Zbog toga je u solarijumima, koji ove lampe koriste kao izvor zračenja, obavezna upotreba odgovarajućih filtera koji apsorbuju neželjeno zračenje. Filtri su često, zbog velike gustine vidljivog zračenja, obojeni tamno. Upravo zbog neophodnog filtriranja zračenja, lampe visokog pritiska imaju manji ukupni koeficijent korisnog dejstva u poređenju sa fluorescentnim lampama. Naime, njima je potrebno izvesno vreme (nekoliko minuta) da se zagreju i dostignu punu snagu UV zračenja. Nakon isključivanja se moraju ohladiti, da bi se mogle ponovo uključiti [8].

Proizvođači lampi, koje se koriste kao izvori zračenja u solarijumima, imaju zadatak da ih, u pogledu fizičkih karakteristika, konstruišu tako da se što veći deo primenjene električne energije konvertuje u energiju UV zračenja. Upravo ova efektivna iskorišćenost daje podatak o snazi nekog izvora zračenja [8].

U cilju ograničenja opasnosti po kožu usled korišćenja solarijuma, Evropski standard EN 60335-2-27:2010 [9] navodi sledeće uslove koje treba ispoštovati:

- UV uređaji treba da pripadaju jednom od 4 tipa prikazanih u Tabeli 1 u pogledu emitovanja UVA i UVB zračenja;

**Tabela 1. Klasifikacija UV uređaja na osnovu efektivne eritemne ozračenosti [9]**

Tip UV uređaja	Eritemna efektivna ozračenost ( $W/m^2$ )	
	$250\text{ nm} < \lambda \leq 320\text{ nm}$	$320\text{ nm} < \lambda \leq 400\text{ nm}$
1	$< 0,0005$	$\geq 0,15$
2	$0,0005$ do $0,15$	$\geq 0,15$
3	$< 0,15$	$< 0,15$
4	$\geq 0,15$	$< 0,15$

- Efektivna eritemna ozračenost za opseg talasnih dužina od 250 - 400 nm ograničena je na  $0,3\text{ W/m}^2$  a za UVC opseg (200 – 280 nm) na  $0,003\text{ W/m}^2$ ;

- Za “prvo sunčanje” preporučuje se vreme izlaganja pri kojem ne bi bila pređena granica efektivnog izlaganja (doze) od  $100\text{ J/m}^2$  uzimajući u obzir težinske faktore za eritemni akcioni spektar (Slika 1) i

- Preporučena maksimalna godišnja doza ne bi trebala da pređe  $25\text{ kJ/m}^2$ , uzimajući u obzir težinske faktore za nemelanomski akcioni spektar raka kože (slika 1).

#### 4. Merenja

Pored navedenog, tehnički standard EN 60335-2-27:2010 [9] ukazuje na merni protokol vezan za karakterizaciju i ispitivanje UV zračenja uređaja za veštačko tamnjenje kože. Posebno treba naglasiti sledeće:

- Srednja efektivna ozračenost treba biti merena u krugu prečnika manjem od 20 mm. Merni instrument treba da ima kosinusni odziv. Spektralna raspodela treba da bude merena u intervalima od 1 nm sa spektrometrom čiji propusni opseg ne prelazi 2,5 nm i
- Merenja treba vršiti nakon aktiviranja lampi koje su bile u radu za približno polovinu dozvoljene maksimalne doze koja se određuje uz pomoć tajmera.

Karakterizacija UV zračenja poreklom iz solarijuma na osnovu EN 60335-2-27:2010 [9] vrši se na osnovu sledeća dva koraka:

Širokopojasnim mernim uređajem odredi se maksimalni nivo zračenja. Ukoliko se radi o vertikalnim solarijumima, rastojanje od lampi na kome se vrši merenje jednako je najkraćem rastojanju koje se određuje na osnovu preporučenog načina izlaganja iz uputstva za korišćenje uređaja. Za krevete za sunčanje i stolice, merne tačke se određuju u skladu sa EN 60335-2-27:2010 i

UV spektrometrom se izvrše merenja u tački maksimalnog nivoa zračenja radi utvrđivanja tri radiometrijska parametra:

- a) efektivne eritemske ozračenosti,
- b) eritemske doze i
- c) doze određene na osnovu NMSC akcionog spektra.

#### 5. Literatura

- [1] M.Hrnjak. „Osnovi fitofizike, fitohemije i fotobiologije“. U: Karadaglić Đ, ed. Dermatologija. 1362-1373, 2000. Vojnoizdavački zavod, Beograd.
- [2] B.Vulević, „Zaštita od nejonizujućih zračenja - Problem budućnosti,“ *BILTEN VINČA* 7 (1-4) (2002) 7-20.
- [3] M. Hrnjak, D. Živković. “Izloženost stanovništva veštačkom ultravioletnom zračenju i zaštita“, *Vojnosanitetski pregled* 59 (4) (2002) 411-416.
- [4] IARC Press, “IARC Monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans”, Vol.100 D, 2012.
- [5] International Commission on Illumination. “Erythema reference action spectrum and standard erythema dose”. CIE S 007/E, 1998.
- [6] International Commission on Illumination. “Action spectrum for photocarcinogenesis (non melanoma skin cancers)”.Vienna:CIE, CIE 132/2: TC6-32 ed. 2000.
- [7] International Commission on Non-Ionizing Radiation Protection. ICNIRP statement. „Health issue of ultraviolet tanning appliances used for cosmetic purposes“, *Health Physics*. 84 (1) (2003)119-127.
- [8] A. Perić. „Spektralne karakteristike veštačkih izvora UV zračenja – Solarijumi“, Diplomski rad, Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-Matematički fakultet, Departman za fiziku, 2007.
- [9] European Committee for Electrotechnical Standardization (CENELEC). European Standard. „Household and similar electrical appliances-safety. Part 2: particular requirements for appliances for skin exposure to ultraviolet and infrared radiation“. EN 60335-227:2010.

## CHARACTERIZATION OF UV RADIATION SOURCES FOR ARTIFICIAL SKIN TANNING

**Branislav VULEVIĆ, Trajan STALEVSKI**

*PC Nuclear Facilities of Serbia, Vinča, Belgrade, Serbia*

[branislav.vulevic@nuklearniobjekti.rs](mailto:branislav.vulevic@nuklearniobjekti.rs)

### ABSTRACT

Artificial sources of ultraviolet (UV) radiation for cosmetic tanning of the skin (lamps and tanning beds - the so-called "Solarium cosmetic") is still in active use worldwide, especially in Europe and North America, despite the fact that the International Agency for Cancer Research (IARC) classifies UV tanning beds in group 1 - the highest risk category for cancer - "carcinogenic to humans". The aim of this paper is that, based on previous levels of knowledge, provide a starting point for the development of methods of measurement and characterization of artificial UV radiation in the immediate vicinity of the solarium.

## **ИНДЕКС АУТОРА**

---

**А**

Агота КОСОРУШ .....	434, 440
Александар ДРАГИЋ .....	481, 548, 577, 584, 589
Александар КАНДИЋ .....	92, 464
Александра ФРИДРИХ .....	387, 405
Александра МИЛАТОВИЋ .....	312
Ана ЧУЧУЛОВИЋ .....	75, 487
Андреја СИРОНИЋ .....	555
Абделкадер ЈАИХЕ .....	12
Аза ХАМОУ .....	12

---

**Б**

Бенард БЕРИШАЈ .....	312
Биљана БОЖИН .....	377
Биљана ВУЧКОВИЋ .....	63, 142, 193
Биљана МИЛЕНКОВИЋ .....	134, 193, 511
Бобан РАКИЋ .....	355, 361, 369
Бојан ЈАНКОВИЋ .....	81
Бојан ШЕШЛАК .....	92, 464
Бојана ЗМЕЈКОВСКИ .....	400
Борис ЈОНЧАР .....	92
Боривоје АДНАЂЕВИЋ .....	400
Бранислав ВУЛЕВИЋ .....	594, 609
Бранислава МИТРОВИЋ .....	88
Бранислава СРЂЕНОВИЋ .....	377
Бранислава ТЕЊОВИЋ .....	222
Бранка ЂУРОВИЋ .....	160
Бранкица АНЂЕЛИЋ .....	440, 518

---

**В**

Верица ГАРАУ ВРХОВЕЦ .....	283
Весна АРСИЋ .....	99, 120, 130, 173, 186, 212
Винко ВИДЈАК .....	283
Владимир ЂУРЂЕВИЋ .....	28, 35
Владимир ЈУРИШИЋ .....	377
Владимир МАРКОВИЋ .....	173, 602
Владимир УДОВИЧИЋ ..	173, 207, 248, 254, 418, 481, 548, 577, 584, 589
Војислав АНТИЋ .....	361
Војислав СТАНИЋ .....	400
Вукосава ЖИВКОВИЋ-РАДОВАНОВИЋ ..	400

---

**Г**

Гордан НИШЕВИЋ .....	248, 424
Гордана ЛАШТОВИЧКА-МЕДИН .....	2, 563
Гордана МИЛИЋ .....	63, 193, 241
Гордана ПАНТЕЛИЋ ..	12, 28, 70, 88, 155, 173, 212, 234, 456, 470, 492

---

**Д**

Давид КНЕЖЕВИЋ .....	518
Далибор АБУТИНА .....	53
Данијела АРАНЂИЋ .....	293, 307, 323, 340, 414
Дарко САРВАН .....	20, 35
Дејан ЈОКОВИЋ ..	207, 248, 254, 481, 548, 577, 584, 589
Димитрије МАЛЕТИЋ .....	173, 207, 248, 254, 481, 548, 577, 584, 589
Драган ВЕСЕЛИНОВИЋ .....	75
Драган ДРАМЛИЋ .....	53
Драгана КРСТИЋ .....	142, 334
Драган РАДНОВИЋ .....	47, 434
Драгана ТОДОРОВИЋ .....	12, 28, 35, 70, 155, 234, 414, 456, 470, 492
Драгољуб ЈОВАНОВИЋ .....	400
Драгослав НИКЕЗИЋ .....	134, 173, 241, 334, 511
Драгутин Т. МИХАИЛОВИЋ .....	43
Дубравка ВУКОВИЋ .....	88
Дубравка ЈОВИЧИЋ .....	361, 369
Душан Б. ТОПАЛОВИЋ .....	400
Душан ЈОКСИМОВИЋ .....	53
Душан МИРКОВИЋ .....	355
Душан МРЂА .....	165, 222, 233, 429, 445, 475, 497
Душан НИКЕЗИЋ .....	53
Душица РИСТИЋ .....	63
Душица СПАСИЋ .....	142, 602

---

**Ђ**

Ђамел Таieb Ерахмани .....	12
Ђорђе ЛАЗАРЕВИЋ ..	293, 328, 340, 414, 537, 543, 572
Ђорђе СТРАТИМИРОВИЋ .....	20
Ђурђица МИЛКОВИЋ .....	283

---

**Ж**

Жељко ДОЛИЈАНОВИЋ .....	70, 577
-------------------------	---------

---

**З**

Зора С. ЖУНИЋ .....	199, 241
Зоран ГРШИЋ .....	53
Зоран ЈОВАНОВИЋ .....	334
Зоран МАРКОВИЋ .....	464
Зоран МИЛОШЕВИЋ .....	92, 464
Зоран МИРКОВ .....	301, 344

---

**И**

Иван ПЕТРОВИЋ .....	28, 155, 470
Ивана ВУКАНАЦ .....	92, 464
Ивана ЈЕЛИЋ .....	379

Ивана СМЧИКЛАС ..... 387, 405  
Ивана СТАНКОВИЋ ..... 475  
Ивана СТОЈКОВИЋ ..... 115, 260  
Иванка АНТОВИЋ ..... 125  
Игор ЧЕЛИКОВИЋ ..... 173, 199  
Илија АРСЕНИЋ ..... 43  
Илија ПЛЕЋАШ ..... 379, 393  
Инес КРАЈЦАР БРОНИЋ ..... 108, 555  
Инес ПАП ..... 43  
Ирена ТАНАСКОВИЋ ..... 99, 120, 130, 186  
Иштван БИКИТ ..... 165, 222, 233, 429, 445, 475, 497

---

*J*

Јадранка БАРЕШИЋ ..... 108, 555  
Јарослав СЛИВКА ..... 445, 475  
Јасминка Д. ЈОКСИЋ ..... 418  
Јасминка МРЂАНОВИЋ ..... 377  
Јан СУЂИ ..... 377  
Јан ХАНСМАН ..... 47, 165, 222, 233, 429, 434, 440, 445, 497, 518  
Јелена АЈТИЋ ..... 20, 35  
Јелена ЖИВКОВИЋ РАДОВАНОВИЋ ... 63, 142  
Јелена КРНЕТА НИКОЛИЋ .. 12, 28, 35, 70, 155, 234, 456, 470, 492  
Јелена ПАЈИЋ ..... 355, 361, 369  
Јелена ПЕТРОВИЋ ..... 487  
Јелена ПОПИЋ РАМАЧ ..... 283  
Јелена СТАЈИЋ ..... 134, 142, 193  
Јелена СТАНКОВИЋ ..... 277, 307, 323, 328, 340  
Јелена ФИЛИПОВИЋ ..... 248, 254  
Јелица КАЉЕВИЋ ..... 12, 277, 323, 328, 414  
Јована ИЛИЋ ..... 99, 120, 130, 173, 186, 212  
Јована НИКОЛОВ ..... 47, 108, 115, 260, 429, 434, 445, 475, 497

---

*K*

К.Н.ЈУ ..... 511  
Катарина КАРАЦИЋ ..... 307, 543, 572  
Ковиљка СТАНКОВИЋ ..... 449  
Кристина БИКИТ ..... 108, 165, 212, 222, 233, 429, 445, 475, 497

---

*L*

Лука ПЕРАЗИЋ ..... 449, 532, 594

---

*Љ*

Љиљана ГУЛАН ..... 63, 134, 142, 193, 241

---

*M*

Маја ЕРЕМИЋ САВКОВИЋ ..... 12, 99, 173  
Марија ЈАНКОВИЋ .12, 28, 70, 81, 155, 456, 470, 492  
Марија ПАЈИЋ ..... 115  
Марија ШЉИВИЋ-ИВАНОВИЋ ..... 387, 405

Марина ЖИКИЋ ..... 207  
Милан ТОМИЋ ..... 108  
Миленко ЂУКИЋ ..... 349, 355  
Милица РАЈАЧИЋ .. 12, 28, 70, 81, 155, 234, 456, 470, 492  
Милић ЕРИЋ ..... 464  
Милош ЂАЈЕТИЋ ..... 537, 543  
Милош КОСТИЋ ..... 379  
Милош ЖИВАНОВИЋ .... 234, 323, 328, 340, 543, 572  
Миодраг КРМАР ..... 43, 47, 115, 429, 434, 440, 497, 518  
Мирјана Б. РАДЕНКОВИЋ ..... 160, 418  
Мирјана ЂУЈИЋ ..... 487  
Мирјана ЂУРАШЕВИЋ ..... 92, 464  
Мирољуб МИЛИНЧИЋ ..... 92  
Михајло ВИЋЕНТИЈЕВИЋ ..... 88  
Михајло ЈОВИЋ ..... 405  
Михаило САВИЋ 207, 254, 481, 548, 577, 584, 589

---

*H*

Нада ХОРВАТИНЧИЋ ..... 555  
Наташа САРАП ..... 12, 28, 70, 155, 456, 470, 492  
Наташа ТОДОРОВИЋ 47, 108, 115, 260, 429, 434, 445, 497  
Никола ВЕСЕЛИНОВИЋ ..... 207, 254, 481, 548, 584, 589  
Никола ЈОВАНЧЕВИЋ ..... 47, 429, 434, 497, 518  
Никола Р. СВРКОТА ..... 125, 148, 502, 526  
Небојша КЛАДАР ..... 377  
Ненад СТЕВАНОВИЋ ..... 602  
Невенка АНТОВИЋ ..... 125, 148, 526

---

*O*

Оливера ЦИРАЈ-ЂЕЛАЦ 277, 293, 301, 307, 323, 328, 334, 414, 572

---

*П*

Патама ПИСПАК ..... 260  
Петер ЈОВАНОВИЧ ..... 181  
Предраг БОЖОВИЋ ..... 277, 293, 307, 340  
Предраг УЈИЋ ..... 173, 199

---

*P*

Радомир БАЊАНАЦ. 207, 248, 254, 481, 548, 577, 584, 589  
Радмила ТРАЈКОВИЋ ..... 63  
Ранка ЖИЖИЋ ..... 125, 148, 502  
Ранко ЗЕКИЋ ..... 148, 502  
Родољуб ЧУЧУЛОВИЋ ..... 75

---

*C*

Сандра ЂЕКЛИЋ ..... 293, 307, 323, 340, 572  
Сања ДОЈЧИНОВИЋ ..... 377

Савета МИЉАНИЋ.....	268, 276, 283
Сергеј К. АНДРУХОВИЧ.....	526
Слађана ВУКОВИЋ.....	349, 355
Славица ИВКОВИЋ.....	317
Славко ДИМОВИЋ.....	53, 387, 393, 405
Славко СМИЉАНИЋ.....	400
Слободан ЈОВАНОВИЋ.....	312
Софија ФОРКАПИЋ.....	233, 475
Србољуб СТАНКОВИЋ.....	572
Срдјан АЛЕКСИЋ.....	379
Срђан БОРЈАНОВИЋ.....	349
Стефан ДРАМЛИЦ.....	53
Стефан РАФАЈЛОВИЋ.....	317, 424
Сузана БЛЕСИЋ.....	20
Сузана БОГОЈЕВИЋ.....	99, 120, 130, 186
Софија ФОРКАПИЋ...165, 173, 212, 222, 429, 445, 497	

---

*T*

Тамара МАРКОВИЋ.....	108
Тања ПЕТРОВИЋ ПАНТИЋ.....	108

Томислав АНЂЕЛИЋ.....	502
Трајан СТАЛЕВСКИ.....	594, 609

---

*Ф*

Филип ВАНХАВЕРЕ.....	323
Францесцо БОЦХИЦЦИО.....	241

---

*Ц*

Цармела ЦАРПЕНТИЕРИ.....	241
Чедомир БЕЛИЋ.....	449, 532

---

*Ш*

Шћепан МИЉАНИЋ.....	160
---------------------	-----

# САДРЖАЈ



ОПШТИ ПРОБЛЕМИ ЗАШТИТЕ ОД ЗРАЧЕЊА.....	1
DIGITAL SOCIETY INNOVATION AND OPEN PARTICIPATORY POLICY IN THE RADIATION PROTECTION: BIG THINKING.....	2
РАДИОЕКОЛОГИЈА И ИЗЛАГАЊЕ СТАНОВНИШТВА.....	11
МОНИТОРИНГ РАДИОАКТИВНОСТИ И ПРОЦЕНА ДОЗЕ У ОКОЛИНИ НУКЛЕАРНЕ ЕЛЕКТРАНЕ ФУКУШИМА ТРИ ГОДИНЕ НАКОН АКЦИДЕНТА .....	12
ANALIZA DINAMIKE SPECIFIČNE AKTIVNOSTI BERILIJUMA-7 U POVRŠINSKOM SLOJU ATMOSFERE.....	20
KORELACIJA IZMEĐU SPECIFIČNE AKTIVNOSTI <sup>7</sup> BE U AEROSOLIMA I UKUPNOM DEPOZITU I METEOROLOŠKIH INDEKSA NAO, EA, EAWR I SCA .....	28
BERILIJUM-7 I VISINA TROPOPAUZE: ANALIZA KORELACIJA PO ROJASEVIMA GEOGRAFSKE ŠIRINE.....	35
ЗАВИСНОСТ АТМОСФЕРСКЕ ДЕПОЗИЦИЈЕ <sup>7</sup> ВЕ И <sup>210</sup> РВ ОД ПАДАВИНА МЕРЕНА УЗ ПОМОЋ БИОМОНИТОРА .....	43
УТИЦАЈ ВЕГЕТАЦИЈЕ НА АТМОСФЕРСКУ ДЕПОЗИЦИЈУ РАДИОНУКЛИДА.....	47
PROVERA MATEMATIČKIH MODELA ZA ATMOSFERSKU DISPERZIJU U OKVIRU IAEA PROGRAMA MODARIA .....	53
РАДИОНУКЛИДИ ТЕРЕСТРИЧНОГ И КОСМОГЕНОГ ПОРЕКЛА У РАЗЛИЧИТИМ УЗОРЦИМА БИЉАКА СА ПОДРУЧЈА КОСОВА И МЕТОХИЈЕ.....	63
RASPODELA UKUPNE BETA I SPECIFIČNE AKTIVNOSTI <sup>40</sup> K U VEGETATIVNIM I GENERATIVNIM ORGANIMA KUKURUZA .....	70
PROCENA VREMENA POLUŽIVOTA <sup>137</sup> CS U PEČURKAMA I MAHOVINAMA SRBIJE .....	75
ARONIJA – TERMALNE I RADIOAKTIVNE KARAKTERISTIKE.....	81
RADIOAKTIVNOST VITAMINSKO –MINERALNIH DODATAKA ZA STOČNU HRANU U 2014. GODINI.....	88
RADIOLOŠKA ANALIZA UZORAKA PODZEMNIH VODA DONJE ŽUPE, ALEKSANDROVAC, SRBIJA: SADRŽAJ RADIONUKLIDA I PROCENA RIZIKA.....	92
РАДИОАКТИВНОСТ РЕЧНИХ ВОДА И СЕДИМЕНАТА РЕПУБЛИКЕ СРБИЈЕ У 2012. ГОДИНИ, ДУЖ ТРАСЕ ГАСОВОДА "ЈУЖНИ ТОК".....	99
ODREĐIVANJE STAROSTI I POREKLA PODZEMNIH VODA SA TERITORIJE VOJVODINE .....	108
ОПТИМИЗАЦИЈА МЕТОДЕ ЗА ИСПИТИВАЊЕ <sup>90</sup> SR У ВОДИ И МЛЕКУ ДЕТЕКЦИЈОМ ČERENKOVЛJEVOG ZRAČENJA.....	115

ОДРЕЂИВАЊЕ СПЕЦИФИЧНЕ АКТИВНОСТИ ВЕШТАЧКИХ РАДИОНУКЛИДА У УЗОРЦИМА МЛЕКА СА ТЕРИТОРИЈЕ РЕПУБЛИКЕ СРБИЈЕ У 2014. ГОДИНИ.....	120
KONCENTRACIJE ČETIRI RADIONUKLIDA I ČETIRI METALA U MIŠIĆU <i>LIZA RAMADA</i> .....	125
RADIOAKTIVNOST LEKOVITOG VLATA U BANJAMA SRBIJE.....	130
RADIOAKTIVNOST ZEMLJIŠTA NA TERITORIJI GRADA KRAGUJEVCA.....	134
ПРОСТОРНА И ПРОФИЛНА РАСПОДЕЛА РАДИОНУКЛИДА У ТЛУ НА НЕКИМ ЛОКАЦИЈАМА НА КОСОВУ И МЕТОХИЈИ.....	142
<sup>238</sup> U I TEŠKI METALI U ZEMLJIŠTU NIKŠIĆA, CRNA GORA .....	148
ANALIZA RADIOAKTIVNOSTI MATERIJALA SA VULKANA ETNA SICILIJA.....	155
KONTAMINACIJA VAZDUHA USLED RESUSPENZIJE RADIONUKLIDA IZ ZEMLJIŠTA.....	160
СИСТЕМАТСКО ИСПИТИВАЊЕ САДРЖАЈА РАДИОНУКЛИДА У ГРАЂЕВИНСКОМ МАТЕРИЈАЛУ У ТОКУ 2014.ГОДИНЕ .....	165
RADON MEASUREMENTS AS PART OF SLOVENIAN NATIONAL PROGRAM OF SYSTEMATIC INVESTIGATION OF NATURAL RADIATION IN WORKING AND LIVING ENVIRONMENTS.....	181
PREGLED MERENJA KONCENTRACIJE RADONA INSTITUTA ZA MEDICINU RADA SRBIJE „DR DRAGOMIR KARAJOVIĆ“.....	186
ISTRAŽIVANJE KONCENTRACIJE RADONA I TORONA U PRIVATNIM KUĆAMA NA TERITORIJI GRADA KRUŠEVCA.....	193
SEZONSKE VARIJACIJE KONCENTRACIJA RADONA U RURALNIM DELOVIMA SRBIJE.....	199
MERENJE KONCENTRACIJE RADONA I PROCENA IZLOŽENOSTI U BOGOVINSKOJ PEĆINI .....	207
РЕЗУЛТАТИ НАЦИОНАЛНОГ МЕЂУЛАБОРАТОРИЈСКОГ ПОРЕЂЕЊА У МЕРЕЊУ КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНА У ВАЗДУХУ ЗАТВОРЕНИХ ПРОСТОРИЈА БЕОГРАД-НОВИ САД 2015.ГОДИНЕ.....	212
КОНТРОЛА КВАЛИТЕТА У ОБЛАСТИ ИСПИТИВАЊА РАДОНА У АКРЕДИТОВАНИМ ЛАБОРАТОРИЈАМА.....	222
OPRAVDANOST KORIŠĆENJA EPA KRIVIH ZA KOREKCIJU NA RELATIVNU VLAŽNOST VAZDUHA KOD MERENJA RADONA POMOĆU UGLJENIH FILTERA .....	234
KORELACIJA IZMEĐU RADONA U ZATVORENIM PROSTORIJAMA I SADRŽAJA RADIJUMA U ZEMLJIŠTU NA KOSOVU I METOHIJI.....	241
КОРЕЛАЦИЈА ВАРИЈАЦИЈА ФОНА ГАМА ЗРАЧЕЊА И РАДОНА У НИСКОФОНСКОЈ ПОДЗЕМНОЈ ЛАБОРАТОРИЈИ У БЕОГРАДУ .....	248
KORELACIONA I REGRESIONA ANALIZA VARIJABILNOSTI RADONA PRIMENOM MULTIVARIJANTNIH METODA .....	254

DIFFERENT TECHNIQUES FOR <sup>222</sup> Rn DETERMINATION IN DRINKING WATERS.....	260
ЗАШТИТА ОД ЗРАЧЕЊА У МЕДИЦИНИ .....	267
PERIFERNE DOZE U RADIOTERAPIJI – PRIKAZ AKTIVNOSTI RADNE GRUPE 9 EURADOS-A.....	268
PROCENA IZLAGANJA RADIOLOŠKOG OSOBLJA U DOMOVIMA ZDRAVLJA.....	277
DIJAGNOSTIČKA RADIOGRAFSKA SNIMANJA TRUDNICA- ANALIZA RAZLOGA I SIGURNOSTI.....	283
PRENATALNA IZLAGANJA U DIJAGNOSTIČKOJ RADIOLOGIJI.....	293
PRELIMINARNA ISPITIVANJA NIVOVA DOZE ZA PACIJENTE U INTRAORALNOJ STOMATOLOŠKOJ RADIOLOGIJI U REPUBLICI SRBIJI.....	301
PROCENA DOZE ZA OČNO SOČIVO KARDIOLOGA U INTERVENTIM PROCEDURAMA NA OSNOVU DOZE ZA CELO TELO .....	307
ДОЗИМЕТРИЈА.....	311
PROCJENA PACIJENTNE IZLOŽENOSTI U DIJAGNOSTIČKOJ RADIOLOŠKOJ PRAKSI CRNE GORE .....	312
ДОЗИМЕТРИЈСКЕ ВЕЛИЧИНЕ У ЗАШТИТИ ОД ЗРАЧЕЊА-ШТА МЕРИМО ...	317
РЕЗУЛТАТИ ИНТЕРКОМПАРАЦИЈЕ СЕРВИСА ЗА ЛИЧНУ ДОЗИМЕТРИЈУ.....	323
РЕЗУЛТАТИ ПРВЕ ИНТЕРКОМПАРАЦИЈЕ ПАСИВНИХ ДОЗИМЕТАРА ЗА ОЧНО СОЧИВО.....	328
КОНВЕРЗИОНИ КОЕФИЦИЈЕНТИ КЕРМЕ У ВАЗДУХУ У Н <sub>p</sub> (3) ЗА ОДАБРАНЕ СТАНДАРДНЕ КВАЛИТЕТЕ СНОПА Х-ЗРАЧЕЊА.....	334
DOZNI PROFILI REFERENTNIH SNOPOVA X ZRAČENJA.....	340
ISPITIVANJE KARAKTERISTIKA RENDGEN-APARATA KOJI SE KORISTE U VETERINARSKOJ RADIOLOGIJI U SRBIJI.....	344
БИОЛОШКИ ЕФЕКТИ ЈОНИЗУЈУЋИХ ЗРАЧЕЊА .....	348
ZDRAVSTVENI NADZOR NAD LICIMA PROFESIONALNO IZLOŽENIM IZVORIMA JONIZUJUĆIH ZRAČENJA U MEDICINSKOJ I INDUSTRIJSKOJ PRIMENI.....	349
OCENA RADNE SPOSOBNOSTI PROFESIONALNO IZLOŽENIH LICA JONIZUJUĆIM ZRAČENJIMA OBOLELIH OD KATARAKTE.....	355
FENOMEN PREVREMENE SEGREGACIJE CENTROMERA U LIMFOCITIMA PERIFERNE KRVI KOD LICA PROFESIONALNO IZLOŽENIH MALIM DOZAMA ZRAČENJA.....	361
UČESTALOST MIKRONUKLEUSA U LIMFOCITIMA PERIFERNE KRVI OPŠTE POPULACIJE NA TERITORIJI SRBIJE: REZULTATI CITOGENETIČKE BIOMONITORING STUDIJE.....	369
VALUES OF MICRONUCLEI AND 8-HYDROXY-2'-DEOXYGUANOSINE IN HOSPITAL WORKERS OCCUPATIONALLY EXPOSED TO IONIZING RADIATION.....	377

РАДИОАКТИВНИ ОТПАД И ДЕКОНТАМИНАЦИЈА .....	378
COMPARATIVE STUDY OF JAPANAISE AND SERBIAN BENTONITE IN .....	379
OPTIMIZACIJA HEMIJSKOG SASTAVA RASTVORA ZA SIMULTANU EKSTRAKCIJU JONA $\text{CO}^{2+}$ I $\text{SR}^{2+}$ IZ KONTAMINIRANOG ZEMLJIŠTA.....	387
MATHEMATICAL MODELLING OF IMMOBILIZATION OF RADIONUCLIDES $^{137}\text{CS}$ AND $^{60}\text{CO}$ IN CONCRETE MATRIX .....	393
SINTEZA NANOČESTIČNOG FLUOROAPATITA MIKROTALASNOM METODOM KAO POTENCIJALNOG SORBENTA JONA TEŠKIH METALA I RADIONUKLIDA .....	400
REMEDIJACIJA ZEMLJIŠTA KONTAMINIRANOG RADIOAKTIVNIM STRONCIJUMOM METODAMA HEMIJSKE EKSTRAKCIJE I HEMIJSKE STABILIZACIJE .....	405
РЕГУЛАТИВА, ЕДУКАЦИЈА И ЈАВНО ИНФОРМИСАЊЕ .....	413
MOGUĆNOSTI ZA POBOLJŠANJE POSTOJEĆE ZAKONSKE REGULATIVE U OBLASTI ZAŠTITE OD ZRAČENJA U REPUBLICI SRBIJI .....	414
ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITY MONITORING IN SERBIAN REGULATIONS .....	418
POTREBA ZA UVOĐENJEM KONTROLE KVALITETA I OSIGURANJA KVALITETA U BRANITERAPIJI .....	424
МЕТОДЕ ДЕТЕКЦИЈЕ И МЕРНА ИНСТРУМЕНТАЦИЈА.....	428
ОДРЕЂИВАЊЕ НАЈПОГОДНИЈЕ ГЕОМЕТРИЈЕ УЗОРКА ИЗ ЖИВОТНЕ СРЕДИНЕ ЗА $\text{NaI(Tl)}$ ДЕТЕКТОР ОБЛИКА ЈАМЕ .....	429
НЕКЕ PREDNOSTI VELIKOG $\text{NaI}$ ДЕТЕКТОРА ОБЛИКА ЈАМЕ U MERENJU NISKIH AKTIVNOSTI $^7\text{Be}$ U UZORCIMA BIOMONITORA .....	434
ЗАВИСНОСТ ЕФИКАСНОСТИ $\text{NaI(Tl)}$ ДЕТЕКТОРА ОБЛИКА ЈАМЕ ОД ПОЛОЖАЈА ИЗВОРА .....	440
МЕРЕЊЕ ПРИРОДНЕ РАДИОАКТИВНОСТИ $\text{NaI(Tl)}$ ДЕТЕКТОРОМ КАЛИБРИСАНИМ GEANT4 СИМУЛАЦИЈАМА .....	445
ОДРЕЂИВАЊЕ КРИВЕ ЕФИКАСНОСТИ PRENOSNOG <b>HPGe</b> ДЕТЕКТОРА ЗА ТАЧКАСТИ ИЗВОР ЗРАЧЕЊА ЕКСПЕРИМЕНТАЛНО I <b>MCNP-X</b> SIMULACIJOM.....	449
EKSPERIMENTALNA KALIBRACIJA HPGe ДЕТЕКТОРА ЗА МЕРЕНЈЕ UZORAKA IZ ŽIVOTNE SREDINE.....	456
PRIMENA SOFTVERA EFFTRAN U ANALIZI SPECIFIČNIH AKTIVNOSTI UZORAKA UGLJA, ŠLJAKE I PEPELA IZ TERMoeLEKTRANA.....	464
UTICAJ NAČINA PRIPREME, DUŽINE MERENJA I KALIBRACIJE ДЕТЕКТОРА NA ODREĐIVANJE SPECIFIČNE AKTIVNOSTI RADIONUKLIDA U UZORCIMA MINERALNIH ĐUBRIVA .....	470
ANALIZA UTICAJA MATRICE UZORKA NA EFIKASNOST DEТЕКЦИЈЕ HPGe ДЕТЕКТОРА ПОМОЋУ MONTE-KARLO SIMULACIJA .....	475

МОНТЕ КАРЛО СИМУЛАЦИЈА КРЕИРАЊА КОСМОГЕНИХ РАДИОНУКЛИДА У ЛЕСУ .....	481
GAMASPEKTROMETRIJSKO ODREĐIVANJE RADIONUKLIDA U UZORKU AEROSOLA ZA POTREBE MEĐULABORATORIJSKOG POREĐENJA.....	487
MEĐUNARODNA INTERKOMPARACIJA ANALIZE SPEKTRA GAMA ZRAČENJA.....	492
УПОРЕЂЕЊЕ АКТИВНОСТИ УЗОРАКА ИЗ ЖИВОТНЕ СРЕДИНЕ МЕРЕНИХ <b>HPGe</b> И <b>NaI(Tl)</b> ДЕТЕКТОРИМА.....	497
VERIFIKACIJA METODE GAMA SPEKTROMETRIJE.....	502
ANALIZA MOGUĆNOSTI SPEKTROMETRIJE NEUTRONA PADC DETEKTOROM.....	511
PROCENA PRISUSTVA NEUTRONA U NISKOFONSKIM Ge-SPEKTROMETRIJSKIM SISTEMIMA BAZIRANA NA DETEKCIJI GAMA PIKA ENERGIJE OD 595.5 keV.....	518
DVOSTRUKE KOINCIDENCIJE GAMA ZRAKA IZ RASPADA <sup>152</sup> Eu – POČETNA ISTRAŽIVANJA NA SPEKTROMETRU PRIPJAT .....	526
ODREĐIVANJE ENERGETSKOG ODZIVA MTS-N ( <b>LIF:Mg,Ti</b> ) TERMOLUMINESCENTNIH DETEKTORA MONTE KARLO SIMULACIJOM U X I GAMA POLJU ZRAČENJA .....	532
DIGITALNI MERAČ RADIOAKTIVNOG ZRAČENJA DMRZ-M15.....	537
ISPITIVANJE ENERGETSKE ZAVISNOSTI ENERGETSKI NEKOMPENZOVANIH I KOMPENZOVANIH GAJGER MILEROVIH CEVI .....	543
ГЛЕДАЊЕ У КУГЛУ-25 ГОДИНА ПОСЛЕ .....	548
DETERMINATION OF BIOGENIC FRACTION IN USED CAR TYRES AND IN LIQUID FUELS BY <sup>14</sup> C METHOD .....	555
WIRELESS SENSOR NETWORK USING CLOUD COMPUTING FOR RADIATION AND POLLUTION MONITORING: PROPOSAL FOR INNOVATIVE PILOT PROJECT.....	563
INTERKOMPARACIJE KAO VAŽAN ELEMENT OSIGURANJA KVALITETA U METROLOGIJI JONIZUJUĆEG ZRAČENJA.....	572
ОДРЕЂИВАЊЕ ТЕМПЕРАТУРСКОГ ПРОФИЛА АТМОСФЕРЕ МЕРЕЊЕМ ИНТЕНЗИТЕТА КОСМИЧКОГ ЗРАЧЕЊА НА ПОВРШИНИ ЗЕМЉЕ.....	577
AUTOMATSKA OBRADA PODATAKA KOSMIKE I EVALUACIJA KONCENTRACIJE RADONA NA INTERNET (WEB) SERVERU .....	584
KORIŠĆENJE MOBILNOG TELEFONA ZA TESTIRANJE I OPTIMIZACIJU LABORATORIJSKIH MERENJA FOTOMULTIPLIKATORIMA .....	589
THE ORIGINAL SOFTWARE FOR MONITORING MEASUREMENT DATA FROM THE INSTRUMENT VICTOREEN 451P VIA INTERNET.....	594
DIFRAKCIONE SLIKE NA KONUSNIM I SFERNIM OBJEKTIMA .....	602
НЕЈОНИЗУЈУЋА ЗРАЧЕЊА .....	608
KARAKTERIZACIJA IZVORA UV ZRAČENJA.....	609

ИНДЕКС АУТОРА.....	614
САДРЖАЈ.....	618