



ЗБОРНИК РАДОВА



XXX СИМПОЗИЈУМ ДРУШТВА ЗА ЗАШТИТУ ОД ЗРАЧЕЊА СРБИЈЕ И ЦРНЕ ГОРЕ

2. - 4. октобар 2019. године
Хотел “Дивчибаре”, Дивчибаре, Србија

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



ЗБОРНИК РАДОВА

**XXX СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ
Дивчибаре
2- 4. октобар 2019. године**

**Београд
2019. године**

**RADIATION PROTECTION SOCIETY OF
SERBIA AND MONTENEGRO**



PROCEEDINGS

**XXX SYMPOSIUM RPSSM
Divčibare
2nd - 4th October 2019**

**Belgrade
2019**

ЗБОРНИК РАДОВА

XXX СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ

2-4.10.2019.

Издавачи:

Институт за нуклеарне науке „Винча“
Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

За извршног издавача:

Проф. др Снежана Пајовић, научни саветник
в.д. директора Института за нуклеарне науке Винча

Уредници:

Др Михајло Јовић
Др Гордана Пантелић

ISBN 978-86-7306-154-2

©Institut za nuklearne nauke „Vinča“

Техничка обрада:

Михајло Јовић, Гордана Пантелић

Електронско издање:

Институт за нуклеарне науке ”Винча”, Мике Петровића Аласа 12-14, 11351
Винча, Београд, Србија

Тираж:

150 примерака

Година издања:

Септембар 2019.

MERENJE RADONA U VODI – REM 2018 RADON-IN-WATER PT

**Jelena KRNETA NIKOLIĆ, Gordana PANTELIĆ, Ivana VUKANAC,
Milica RAJAČIĆ, Marija JANKOVIĆ, Nataša SARAP, Dragana TODOROVIĆ
i Mirjana RADENKOVIĆ**

*Univerzitet u BEOGRADU, Institut za nuklearne nauke Vinča, Beograd, Srbija,
jnikolic@vinca.rs, pantelic@vinca.rs, vukanac@vinca.rs, milica100@vinca.rs,
marijam@vinca.rs, natasas@vinca.rs, beba@vinca.rs, mirar@vinca.rs*

SADRŽAJ

Godine 2018. Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine je učestvovala u interkomparaciji “REM 2018 radon-in-water proficiency test”. Zadatak je bio izmeriti koncentraciju radona u dostavljenom uzorku vode. Ovaj uzorak je meren gama spektrometrijski na HPGe detektoru. Najpre je merenje izvršeno na uzorku u nativnom obliku, bez otvaranja boce u kojoj je dostavljen. Zatim je sadržaj boce prebačen u Marineli geometriju i ponovo izmeren na istom detektoru. Pri proračunu aktivnosti korišćen je transfer efikasnosti programom EFFTRAN i kalibracija QA/QC uzorkom vode, dostavljenim u okviru interkomparacije IAEA-TEL-2018-03. Poređenjem dobijenih rezultata i referentne vrednosti date u preliminarnom izveštaju organizatora interkomparacije, utvrđeno je da postoji značajna zavisnost rezultata od pristupa merenju i proračunu aktivnosti. U ovom radu su predstavljeni rezultati oba pristupa i analiza i komentar tačnosti i preciznosti rezultata.

1. Uvod

Približno 80% izloženosti populacije jonizujućem zračenju potiče od prirodnih izvora, a od toga, približno 52% potiče od izloženosti radonu [1]. Takođe, u studijama je utvrđeno da izloženost povišenim koncentracijama radona povećava rizik od dobijanja kancera pluća [2]. Zbog toga je međunarodna zajednica izuzetno posvećena ispitivanju koncentracije radona u životnoj i radnoj sredini, vodi i vazduhu. Kao rezultat ove posvećenosti, u okviru dokumenta EURATOM Treaty, u članu 35 je definisano da su države potpisnice u obavezi da organizuju kontinuirani monitoring radioaktivnosti u zemljištu, vazduhu i vodi i osiguraju usklađenost rezultata sa standardima koji su propisani ovim i drugim dokumentima [3]. Shodno ovom zahtevu, zemlje potpisnice su u obavezi da imaju monitoring radona u vodi.

U cilju poboljšanja sposobnosti evropskih laboratorija da mere radon u vodi, organizovana je interkomparacija u kojoj je zadatak bio izmeriti koncentraciju radona u vodi uzorkovanoj na javnim česmama (podzemni izvor) u Austriji i Nemačkoj. Mnogo specifičnih problema je vezano kako za uzorkovanje vode u kojoj se nalazi radon, tako i za merenje. Osnovni problem se sastoji u tome što radon lako isparava iz uzorka, te je neophodno da se posuda za uzorkovanje puni tako da voda ima laminaran tok, da se napuni do vrha ne ostavljajući pri tome mehur vazduha i da se u periodu između uzorkovanja i merenja uskladišti na temperaturi koja je niža od temperature prilikom

uzorkovanja, ali iznad 0°C. Takođe, radonovi potomci se lako adsorbuju na zidove suda koji je napravljan od PVC-a ili polistirena, tako da je poželjno da je uzorak smešten u staklenu bocu [4].

Problemi vezani za uzorkovanje su relativno poznati i istraženi. Posebnu problematiku predstavlja merenje takvog uzorka. Većina laboratorija za merenje tečnih uzoraka ima proceduru koja podrazumeve koncentrisanje uparavanjem i/ili prebacivanje u geometriju merenja. U slučaju merenja koncentracije radona u vodi, ova procedura nije primenjiva u potpunosti, već se mora prilagoditi tako da se gubitak radona iz vode minimizuje.

U ovom radu biće opisana procedura merenja radona u vodi u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta za nuklearne nauke Vinča, primenjena za potrebe interkomparacije “REM 2018 radon-in-water proficiency test”. Poređenjem referentne vrednosti koja je data u preliminarnom izveštaju organizatora interkomparacije i rezultata merenja dobijenih u laboratoriji, utvrđeno je da postoji značajna zavisnost rezultata od pristupa merenju i proračunu aktivnosti. U ovom radu će to poređenje biti diskutovano i zaključci vezani za specifičnosti merenja radona u vodi definisani.

2. Materijal i metode

U laboratoriju je dostavljen uzorak vode u staklenoj boci zapremine 1L, zatvoren plastičnim poklopcem sa aluminijumskom folijom na unutrašnjoj strani. Izmerena je masa uzorka sa bocom, provereno je da li postoji mehur vazduha i da li je u toku transporta došlo do curenja uzorka. Nakon što je ustanovljeno da je uzorak u neoštećenom stanju dostavljenu Laboratoriju, pristupilo se merenju.

Merenje je vršeno na HPGe detektoru p-tipa, relativne efikasnosti 20%. Najpre je uzorak izmeren u nativnom stanju, bez prebacivanja u drugu geometriju merenja. Zatim je uzorak vode pažljivo presut iz boce u kojoj je dostavljen, u Marineli geometriju. Marineli posuda je prethodno bila adekvatno pripremljena i oprana, a između presipanja i merenja je prošlo više od 3h, tako da je ravnoteža između radona u uzorku i njegovih potomaka ponovo uspostavljena. Zbog potrebe da se rezultati brzo saopšte, merenje nije ponavljano posle 30 dana. U Marineli geometriju staje manje od 1L uzorka, tako da nije bilo potrebno spirati originalnu ambalažu.

Spektri su analizirani programom GENIE2000, a koncentracija aktivnosti radona je određena preko potomaka ^{214}Pb (energije 295 i 352 keV) i ^{214}Bi (energije 609, 1120 i 1764 keV).

Za merenje izvršeno u originalnoj boci, izvršen je transfer efikasnosti programom EFFTRAN [5] uz korišćenje kalibracije laboratorijskim standardom u geometriji boce od 250 ml kao početne kalibracije. U laboratorijskom standardu je bila smeša sledećih radionuklida: ^{241}Am (640,9 Bq), ^{109}Cd (2943,9 Bq), ^{139}Ce (191,1 Bq), ^{57}Co (160 Bq), ^{60}Co (487,3 Bq), ^{137}Cs (357,1 Bq), ^{203}Hg (358,9 Bq), ^{113}Sn (557 Bq), ^{85}Sr (767,4 Bq) i ^{88}Y (769,8 Bq). Takođe, kao drugi pristup, za merenje u originalnoj ambalaži urađena je i kalibracija efikasnosti QA/QC uzorkom vode dostavljenim u okviru interkomparacije IAEA-TEL-2018-03 u adekvatnoj geometriji. U ovom uzorku su bili elementi ^{210}Pb aktivnosti 47,9 Bq/kg, ^{134}Cs aktivnosti 35,7 Bq/kg i ^{137}Cs aktivnosti 16,1 Bq/kg na dan 01.01.2018. Celokupna količina QA/QC uzorka prebačena je u dobro ispranu bocu iz koje je najpre evakuisan uzorak vode sa radonom. Time je obezbeđeno da se oba uzorka mere u istoj geometriji. Kako količina QA/QC uzorka nije bila dovoljna da popuni bocu

do vrha, boca je dopunjena destilovanom vodom i razblaženje je uzeto u obzir prilikom izračunavanja efikasnosti.

Za merenje u Marineli geometriji, detektor je kalibrisan komercijalnim standardom u Marineli geometriji proizvođača Checz Metrological Institute, Prod. No. 08111v-1.647056, ukupne aktivnosti 80,63 kBq na dan 22.12.2017. Za korekciju kalibracije je iskorišćen identičan QA/QC uzorak vode kao i onaj korišćen za kalibraciju u slučaju merenja u originalnoj ambalaži, pažljivo prebačen u Marineli geometriju.

Aktivnost u uzorku je određena poznatom formulom:

$$A = \frac{NC_C}{mtP_\gamma \varepsilon} \quad (1)$$

gde je N broj impulsa u fotopiku na određenoj energiji, C_C je korekcionni faktor za koincidentno sumiranje, m je masa uzorka, t je vreme merenja (u ovom slučaju 60000s), P_γ je verovatnoća prelaza i ε je efikasnost detekcije na određenoj energiji.

S obzirom na to da mereni uzorak sadrži elemente koji podležu kaskadnom raspadu jezgra, bilo je potrebno naći korekzione faktore za koincidentno sumiranje [7]. Pošto je u pitanju Marineli geometrija, za računanje ovih faktora korišćen je program MEFFTRAN. Za transfer efikasnosti potreban prilikom merenja uzorka u originalnoj ambalaži, korišćen je program EFFTRAN. Kao polazna kalibraciona kriva za transfer efikasnosti, upotrebljena je kriva dobijena laboratorijskim standardom u geometriji plastične boce od 250 ml. Merna nesigurnost svih faktora dobijenih primenom programa EFFTRAN i MEFFTRAN nisu prelazili 3%. Faktori određeni ovim programima dati su u tabeli 1.

Tabela 1. Korekcionni faktori za koincidentno sumiranje dobijeni programom MEFFTRAN i korekcionni faktori za transfer efikasnosti dobijeni programom EFFTRAN.

Energija (keV)	Korekcionni faktori za koincidentno sumiranje		Korekcionni faktori za transfer efikasnosti
	Marineli geometrija	Originalna geometrija	
295	1,000	1,002	0,3237
352	1,001	1,000	0,3304
609	1,072	1,048	0,3505
1120	1,090	1,044	0,3719
1764	1,000	1,002	0,3866

Kombinovana relativna merna nesigurnost rezultata određena je na osnovu izraza [6]:

$$u(A) = \sqrt{(u(\varepsilon))^2 + (u(C_C))^2 + (u(m))^2 + (u(N))^2} \quad (2)$$

gde je $u(\varepsilon)$ relativna merna nesigurnost efikasnosti, data u Jednačini (3) i Jednačini (4), $u(C_C)$ je relativna merna nesigurnost korekcionnih faktora za koincidentno sumiranje dobijenih programom EFFTRAN i MEFFTRAN, $u(m)$ je relativna merna nesigurnost merenja mase uzorka i $u(N)$ je statistička merna nesigurnost broja impulsa u fotopiku. Merne nesigurnosti vremena merenja i verovatnoće prelaza su zanemarljive.

Kombinovana relativna merna nesigurnost efikasnosti određena je na osnovu izraza [6]:

$$u(\varepsilon) = \sqrt{(u(A_{ref}))^2 + (u(N_{ref}))^2 + (u(C_C))^2} \quad (3)$$

gde je $u(A_{ref})$ relativna merna nesigurnost aktivnosti komercijalnog standarda definisana u sertifikatu, $u(N_{ref})$ statistička merna nesigurnost broja impulsa u fotopiku pri merenju komercijalnog standarda i $u(C_C)$ je relativna merna nesigurnost korekcionih faktora za koincidentno sumiranje.

Kombinovana relativna merna nesigurnost efikasnosti dobijene korišćenjem programa EFFTRAN, određena je na osnovu sledeće jednačine [6]:

$$u(\varepsilon) = \sqrt{(u(\varepsilon_{ref}))^2 + (u(C))^2 + (u_D)^2 + (u_S)^2} \quad (4)$$

gde je $u(\varepsilon_{ref})$ relativna merna nesigurnost referentne efikasnosti (dato u Jednačini (2)), $u(C)$ je merna nesigurnost transfer faktora izračunatih programom kao statistička nesigurnost Monte Karlo integracije ($\approx 1,2\%$), u_D je merna nesigurnost vezana za definisanje geometrije detektora i u_S je merna nesigurnost vezana za karakterizaciju uzorka.

Kako se može videti iz Jednačina (1-3), parametri koji doprinose mernoj nesigurnosti su kombinovani kao nezavisne varijable.

3. Rezultati i diskusija

Rezultati merenja podeljeni prema geometriji merenja i prema primenjenoj kalibraciji, dati su u tabeli 2.

Tabela 2. Aktivnost u Bq/kg za odabrane energije radonovih potomaka, dobijeni korišćenjem različitih geometrija i različitih kalibracija.

Energija (keV)	Aktivnost (Bq/kg)		
	Marineli geometrija, kalibracija QA/QC uzorkom	Originalna geometrija	
		Kalibracija dobijena EFFTRAN-om	Kalibracija QA/QC uzorkom
295	143,9 ± 9,6	324 ± 22	188 ± 12
352	138,6 ± 8,8	324 ± 21	201 ± 13
609	136,3 ± 8,7	319 ± 20	238 ± 16
1120	146 ± 12	320 ± 26	326 ± 27
1764	142 ± 12	333 ± 27	429 ± 35

Kao što se vidi iz tabele 2, u slučaju Marineli geometrije se dobijaju značajno niži rezultati u odnosu na one dobijene merenjem neperturbovanog uzorka u originalnoj geometriji, za istu kalibracionu krivu. To pokazuje da je prilikom prenošenja uzorka iz originalne u Marineli geometriju došlo do značajnog gubitka radona. S' obzirom na to da je u pitanju gas rastvoren u tečnosti, najverovatnije je zbog perturbacije uzorka radon ispario iz rastvora. Takođe, radon ima sposobnost adsorpcije na zidove suda što je naročito izraženo ako je sud od plastike (PVC ili polistiren). Ova osobina radona dovodi do toga da uzorak u Marineli geometriji nema homogenu raspodelu radona i potomaka po zapremini, čime se u principu menja geometrija merenja i kalibracija rastvorom u

istoj geometriji koji jeste homogen, više nije adekvatna. Druga stvar koja se uočava je da kalibracija QA/QC uzorkom daje rezultate koji ukazuju na odsustvo radioaktivne ravnoteže između potomaka radona. Ovo ipak ne odlikava realno stanje, već je posledica kalibracije rastvorom u kojem nije bilo elemenata sa energijom bliskom energijama ^{214}Pb . To, i činjenica da je za fitovanje kalibracione krive upotrebljena linearna zavisnost (zbog male širine opsega pokrivenog energijama elemenata u QA/QC uzorku), dovodi do pojave prividne neravnoteže između ^{214}Pb i ^{214}Bi . U ovom slučaju je za rezultat u razmatranje uzeta srednja vrednost aktivnosti po energijama ^{214}Bi , koja iznosi (331 ± 21) Bq/kg.

U slučaju merenja neperturbovanog uzorka u originalnoj geometriji i korišćenja programa EFFTRAN za transfer efikasnosti, dobijaju se rezultati koji se slažu po svim energijama i slažu se takođe sa rezultatom dobijenim za ^{214}Bi sa kalibracijom QA/QC uzorkom. Srednja vrednost aktivnosti po svim energijama je (324 ± 23) Bq/kg.

Stoga je kao krajnji rezultat prijavljena vrednost od (330 ± 20) Bq/kg, što predstavlja srednju vrednost rezultata dobijenih uz pomoć transfera efikasnosti i rezultata dobijenih za ^{214}Bi sa kalibracijom QA/QC uzorkom. Kako je referentna vrednost koju je dao organizator interkomparacije (320 ± 16) Bq/kg [8], vidimo da je ovaj rezultat prihvatljiv i po kriterijumu tačnosti i po kriterijumu preciznosti.

4. Zaključak

U okviru interkomparacije REM 2018 radon-in-water proficiency test, uzorak vode sa radonom meren je u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta za nuklearne nauke Vinča. Poređenjem referentne vrednosti koja je data u preliminarnom izveštaju organizatora interkomparacije i rezultata merenja dobijenih u Laboratoriji, utvrđeno je da postoji značajna zavisnost rezultata od pristupa merenju i proračunu aktivnosti. U slučaju merenja uzorka u Marineli geometriji, dobijena vrednost aktivnosti je značajno niža od referentne vrednosti. Korekcije kalibracije korišćenjem QAQC uzorka vode dostavljenog u okviru interkomparacije IAEA-TEL-2018-03, dovele su do poboljšanja rezultata ali istovremeno i do pojave prividne neravnoteže između radonovih potomaka. U slučaju merenja neperturbovanog uzorka u originalnoj geometriji i korišćenja programa EFFTRAN za transfer efikasnosti, dobijaju se rezultati koji se slažu po svim energijama i takođe se slažu sa referentnom vrednošću. Sve ovo govori u prilog tome da je u specifičnoj situaciji merenja radona u vodi nepovoljno prebacivati uzorak iz originalne ambalaže u Marineli geometriju, jer perturbacija uzorka dovodi do gubitka radona iz rastvora. Takođe, može se zaključiti da kalibracija standardom sa silikonskom smolom nije adekvatna u ovoj situaciji. Najpovoljniji rezultat se dobija merenjem neperturbovanog uzorka uz korišćenje transfera efikasnosti.

5. Zahvalnica

Ovaj rad je finansiran u okviru Projekta III43009 Ministarstva za prosvetu, nauku i tehnološki razvoj Republike Srbije.

6. Literatura

- [1] UNSCEAR 2008 Sources and effects of ionizing radiation, Report to the General Assembly, with scientific annexes, United Nations Scientific Committee, 2008.

- [2] WHO Handbook on Indoor Radon: A Public Health Perspective. Geneva: World Health Organization, 2009.
- [3] The EURATOM Treaty, Consolidated Version, European Union, 2016.
- [4] V. Jobbágy, H. Stroh, G. Marissens, M. Hult, Comprehensive study on the technical aspects of sampling, transporting and measuring radon – in - water, *J Environ. Radioact.* 197, 2019, 30–38.
- [5] T. Vidmar, EFFTRAN – A Monte Carlo Efficiency Transfer Code For gamma-ray spectrometry, *Nucl. Instr. Meth. A* 550, 2005, 603-608.
- [6] IAEA-TECDOC-1401, Quantification of Uncertainty in Gamma-Spectrometric Analysis of Environmental Samples, IAEA, Vienna 2004.
- [7] M.Garcia-Talavera, J.P. Laedermann, M.Decombaz, B. Quintana, M. J. Daza, Coincidence summing corrections for the natural decay series in gamma-ray spectrometry. *Journ. Radiat. Isot.* 54, 2001, 769-776.
- [8] EUROPEAN COMMISSION DIRECTORATE-GENERAL, JOINT RESEARCH CENTRE Directorate G - Nuclear Safety and Security Standards for Nuclear Safety, Security and Safeguards, Preliminary evaluation of the REM 2018 radon-in-water proficiency test.

MEASUREMENT OF RADON IN WATER – REM 2018 RADON-IN-WATER PT

**Jelena KRNETA NIKOLIĆ, Gordana PANTELIĆ, Ivana VUKANAC,
Milica RAJAČIĆ, Marija JANKOVIĆ, Nataša SARAP, Dragana TODOROVIĆ
and Mirjana RADENKOVIĆ**

*University of Belgrade, Institute of Nuclear Sciences Vinča, Belgrade, Serbia,
jnikolic@vinca.rs, pantelic@vinca.rs, vukanac@vinca.rs, milica100@vinca.rs,
marijam@vinca.rs, natasas@vinca.rs, beba@vinca.rs, mirar@vinca.rs*

ABSTRACT

In 2018, Laboratory for Environment and Radiation Protection took part in the proficiency test “REM 2018 radon-in-water proficiency test”. The task of this proficiency test was to determine the concentration of radon in the water sample. This sample was measured by gamma spectrometry on HPGe detector. Firstly, the measurement was performed on the native sample, without opening the bottle in which the sample was delivered. After that, the sample was placed into Marinelli beaker and measured again on the same detector. To calculate the activity concentration of radon in the sample, the calibration was performed using QA/QC sample from the IAEA-TEL-2018-03 proficiency test and the efficiency transfer was performed using EFFTRAN software. Comparison of the obtained results with the reference value, provided in the preliminary report of the proficiency test, showed that there is a significant influence of the measurement geometry and the calculation approach. In this paper, the results of both approaches to the measurement and calculation will be presented and the trueness and precision of the results will be analyzed and commented.