

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



**ЗБОРНИК
РАДОВА**

**XXIX СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ
Сребрно језеро
27- 29. септембар 2017. године**

**Београд
2017. године**

**SOCIETY FOR RADIATION PROTECTION OF
SERBIA AND MONTENEGRO**



PROCEEDINGS

**XXIX SYMPOSIUM DZZSCG
Srebrno jezero
27- 29. September 2017**

**Belgrade
2017**

ЗБОРНИК РАДОВА

XXIX СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ
27-29.09.2017.

Издавачи:

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

За извршног издавача:

Др Борислав Грубор

Уредници:

Др Јелена Станковић Петровић
Др Гордана Пантелић

ISBN 978-86-7306-144-3

© Institut za nuklearne nauke „Vinča“

Техничка обрада:

Јелена Станковић Петровић, Гордана Пантелић

Штампа:

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

Тираж:

150 примерака

Година издања:

Септембар 2017.

UTICAJ USITNJENOSTI UZORKA I GEOMETRIJE MERENJA NA REZULTATE ISPITIVANJA SADRŽAJA RADIONUKLIDA U UZORKU GRANITA

Vesna ARSIĆ¹, Jovana ILIĆ¹, Suzana BOGOJEVIĆ¹, Irena TANASKOVIĆ¹ i Tatjana MARKOVIĆ²

1) *Institut za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“, Deligradska 29, 11000 Beograd, Srbija, vesna.arsic@institutkarajovic.rs*

2) *Vojnotehnički institut, Ratka Resanovića 1, 11000 Beograd, Srbija*

SADRŽAJ

U radu je prikazano poređenje rezultata ispitivanja sadržaja radionuklida u uzorcima građevinskog materijala merenjem istog uzorka koji je pripremljen za merenje na četiri načina. Najpre je izvršeno poređenje rezultata ispitivanja uzorka koji je grubo usitnjen (ručno razbijanje i usitnjavanje), sa rezultatima fino usitnjenog granita (mašinskim mlevenjem u drobilici). Fino usitnjen granit je, potom, raspoređen u tri posude različite veličine i geometrije: Marineli posuda zapremine 1 l, Marineli posuda zapremine 0,5 l i cilindrična plastična posuda zapremine 0,2 l, sa ciljem da se proverí minimalna količina uzorka neophodna za dobijanje prihvatljivih rezultata ispitivanja.

1. UVOD

Građevinski materijali prirodnog porekla imaju visok sadržaj radionuklida iz serija ^{238}U , ^{235}U i ^{232}Th i njihovih potomaka, takođe, visok sadržaj ^{40}K , a mogu sadržati i radionuklide veštačkog porekla. Zbog toga su granit i drugi tipovi prirodnih građevinskih materijala, značajan faktor povećanja interne i eksterne izloženosti jonizujućem zračenju. S druge strane, ispitivanje radioaktivnosti građevinskog materijala, poslednjih godina, izaziva pažnju javnosti i zbog brojnih kontraverzi vezanih za problem usklađivanja rezultata ispitivanja sa zakonskom regulativom [1]. O predlogu za izmenu postojećeg pravilnika još uvek se diskutuje, a u ovom radu će biti prezentovana neka razmatranja sa aspekta samog izvođenja merenja uzoraka granita. Uvek je korisno ispitati mogućnost uzimanja manje količine uzorka za analizu i time olakšavanja, pa i pojeftinjenja, postupka pripreme. Činjenica je da je za gamaspektrometrijsko merenje veoma važna homogenizacija uzorka. Granit u laboratoriju obično stiže u obliku komada i njegova priprema za merenje nije jednostavna. Mašinsko usitnjavanje, odnosno mlevenje, zahteva upotrebu specijalnih drobilica, koje Laboratorija za ispitivanje radioaktivnosti Instituta za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“ ne poseduje. Cilj ovog rada je bio da se proceni da li stepen usitnjenosti ove vrste uzoraka ima uticaja na rezultate ispitivanja i ukoliko je odgovor potvrđan, kolika je minimalna količina uzorka koja može dati zadovoljavajuće rezultate ispitivanja.

2. MATERIJAL I METODE

Ispitivan je uzorak granita Balmoral Rosso, karakteristične crvene boje. U laboratoriju je stigao veći komad ovog granita, od koga su pripremljena 4 uzorka, čije su karakteristike prikazane u tabeli 1. Najpre je komad granita ručno razbijen na sitnije komade i od njega je jedan deo odvojen i presut u Marineli posudu zapremine 1 l. Preostali granit

je mašinski usitnjen (samleven) i od njega su napravljena još tri uzorka koja su spakovana u tri posude: Marineli posuda od polietilena, zapremine 1 l, Marineli posuda zapremine 0,5 l i cilindrična posuda zapremine 0,2 l. Usitnjavanje je izvršeno drobilicom za kamen i mermer firme Condux-Werk (Hanau), Typ LV 15 M, u Vojnotehničkom institutu, na granulaciju do 0,8 mm. Uzorci su obeleženi, posude su zatvorene i dodatno obezbeđene pomoću izolir trake. Period odležavanja uzoraka u zatvorenim posudama pre merenja na HPGe detektoru, radi dostizanja sekularne radioaktivne ravnoteže između ^{226}Ra i njegovih potomaka, iznosio je četiri nedelje.

Tabela 1. Pregled spremljenih uzoraka granita Balmoral Rosso i mase referentnih materijala korišćenih za kalibraciju efikasnosti

Br uzorka	Posuda	Način usitnjavanja	Masa uzorka (g)	Masa standarda (g)	Vreme merenja (s)
1	Marineli, zapremine 1 l	Grubo, manuelno	1300	1221	10 000
2	Marineli, zapremine 1 l	Fino, mašinski	1350	1221	10 000
3	Marineli, zapremine 0,5 l	Fino, mašinski	500	443,25	10 000
4	Cilindrična posuda, zapremine 0,2 l	Fino, mašinski	300	200	10 000

Gamaspektrometrijsko ispitivanje građevinskog materijala izvodi se po standardizovanoj metodi prema „Technical Report Series No.295“ [2]. Ovom metodom je određena koncentracija prirodnih i veštačkih radionuklida, koji emituju gama zračenje u energetskom opsegu od 60 keV do 2 MeV. U radu su prikazani rezultati za radionuklide koji su predmet usklađivanja sa zakonskom regulativom: ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K .

Uzorci su mereni na poluprovodničkom HPGe detektoru proizvođača ORTEC, relativne efikasnosti 25% i rezolucije 1,95 keV na liniji ^{60}Co od 1332,5 keV. Za obradu spektara korišćen je softver GammaVision 32. Energetska kalibracija detektora i kalibracija efikasnosti je izvršena sertifikovanim referentnim materijalima:

- za Marineli geometriju zapremine 1 l korištena je mešavina radionuklida, homogeno raspoređena u istoj geometriji, mase 1221 g (gustine $1,22 \text{ g/cm}^3$) Češkog metrološkog instituta Cert.No. 931-OL-095/01.
- za Marineli geometriju zapremine 0,5 l korištena je mešavina radionuklida, homogeno raspoređena u posudi zapremine 0,45 l, mase 443,25 g (gustine $0,985 \text{ g/cm}^3$, matriks) Češkog metrološkog instituta Cert.No. 931-OL-422/12.
- za geometriju cilindrične posude zapremine 0,2 l korišten je sertifikovani referentni materijal - smeša radionuklida Amersham Cert.No. QCY48 (gustine 1 g/cm^3 , matriks voda). Navedena geometrija ispunjena je destilovanom vodom do visine 3,1cm. Standard za kalibraciju dobijen je dodavanjem 1 ml radnog rastvora QCY48 u 2M rastvor HCl. Detalji pripreme su opisani u referenci [4]. Ukupna masa standarda je 5,3331g, a masa kalibracionog rastvora 200 g.

3. REZULTATI I DISKUSIJA

Za proveru tačnosti korišteni su rezultati ispitivanja radiaktivnosti za ovaj tip granita (Barmoral Rosso) uzeti iz literature [4, 5]. Literaturni podaci prikazani su u tabeli 2. Radi poređenja, uključeni su i višegodišnji rezultati Laboratorije za ispitivanje radioaktivnosti koji se odnose na granit Barmoral Rosso, uzeti iz baze podataka, prikazani kao srednja vrednost sa standardnom devijacijom. Svi ovi uzorci su pripremani ručnim usitnjavanjem. Ova dva izvora podataka se međusobno dobro slažu, a takođe su unutar opsega vrednosti za prirodne stene datih u [4]. Barmoral Rosso spada u red prirodnih građevinskih materijala sa visokom koncentracijom aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K koje su u vrhu tipičnih vrednosti prikazanih u tabeli 2 i pogodan je da bude kontrolni uzorak laboratorije.

Tabela 2. Sadržaj radionuklida u uzorku granita Barmoral Rosso iz literature

Vrsta granita	Poreklo	Aktivnost (Bq/kg)			Referenca
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
Barmoral Rosso	Finska	180 ± 29	362 ± 46	1698 ± 162	Baza IMRS
		170 ± 1	354 ± 3	1592 ± 39	Pavlidou et al. [4]
Tipične i maksimalne vrednosti koncentracija radionuklida u prirodnim stenama					
Prirodne stene	Tipične vrednosti	60	60	640	Radiation protection 112
	Maksimalne	500	310	4000	

Rezultati merenja grubo usitnjenog uzorka 1 prikazani su u tabeli 3. U istoj tabeli prikazano je relativno odstupanje od literaturnih podataka za ovu vrstu granita (vrednosti iz reference [4] postavljene su kao tačne vrednosti). Odstupanja su za sva tri ispitivana radionuklida ispod 10% (osim za K-40) od ciljane vrednosti, što potvrđuje tačnost dobijenih rezultata ispitivanja (stabilnost mernog sistema i valjanost korišćene kalibracije efikasnosti).

Tabela 3. Sadržaj radionuklida u granitu koji je grubo usitnjen (uzorak br 1), meren u posudi Marineli geometrije zapremine 1 l i relativno odstupanje u odnosu na literaturne podatke

Radionuklid	Srednja vrednost aktivnosti (Bq/kg)	Relativno odstupanje u odnosu na rezultate	
		Baza IMRS	Referenca [4]
^{226}Ra	$163,6 \pm 3,5$	9,1%	3,8%
^{232}Th	$357,8 \pm 5,9$	1,2%	1,1%
^{40}K	1458 ± 37	14,1%	8,4%

U tabeli 4 dat je prikaz rezultata ispitivanja za svaki od načina pripreme, odnosno, za sva četiri izmerena uzorka. Uzorci su mereni više puta (od 2 do 6 puta), a rezultat je prikazan kao srednja vrednost tih merenja sa mernom nesigurnošću srednje vrednosti, koja je računata po formuli:

$$\sigma_A = \sqrt{\frac{1}{\sum \frac{1}{\sigma_i^2}}}$$

Tabela 4. Rezultati ispitivanja uzorka granita Balmoral Rosso merenog u razlicitim posudama, sa razlicitim nivoom usitnjenosti

Broj uzorka	Posuda, usitnjenost	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
1	Marineli zapremine 1 l, krupno usitnjen	163,6 ± 2,4	357,8 ± 3,3	1458 ± 21
2	Marineli zapremine 1 l, mleven	167,3 ± 2,9	380,3 ± 0,9	1609 ± 35
3	Marineli zapremine 0,5 l, mleven	155,7 ± 6,5	377,0 ± 6,7	1577 ± 23
4	Cilindrična posuda zapremine 200 ml, mleven	123,0 ± 3,2	316,2 ± 4,2	1311 ± 91

Najpre je izvršeno poređenje rezultata između krupno i fino usitnjenog građevinskog materijala i njihovo međusobno relativno odstupanje je prikazano u tabeli 5. Ovi rezultati se vrlo dobro slažu, odstupanja su između 1 i 5%.

Tabela 5. Relativno međusobno odstupanje rezultata ispitivanja dobijenih merenjem u posudi Marineli 1 l, za različito pripremljene uzorke

Relativno odstupanje	
Radionuklid	Marineli 1 l, grubo usitnjen i Marineli 1 l, mleven
²²⁶ Ra	1%
²³² Th	3%
⁴⁰ K	5%

U tabeli 6, prikazana su relativna odstupanja između rezultata ispitivanja dobijenih merenjem u posudama različite zapremine i geometrije. Marineli posuda zapremine 1 l i Marineli posuda zapremine 0,5 l pokazuju vrlo dobro slaganje rezultata ispitivanja. Maksimalno odstupanje dobijeno je za koncentraciju aktivnosti ²²⁶Ra i iznosi 3.6%. Za preostala dva relevantna radionuklida odstupanje je ispod 1%, odnosno iznosi 0.4% za ²³²Th i 1% za ⁴⁰K.

Rezultati merenja u cilindričnoj posudi zapremine 0,2 l, značajno odstupaju od rezultata koji su uzeti kao tačni [4], pa i od rezultata dobijenih merenjem u Marineli posudi zapremine 1 l i Marineli posudi zapremine 0,5 l. Odstupanja su od 9% (za ²³²Th) do 15% (za ²²⁶Ra). Iako je bilo za očekivati da će ova geometrija merenja dati slabiji rezultat zbog velike razlike u masi standarda i uzorka (33%), odstupanja su toliko značajna da zahtevaju korekciju kalibracije efikasnosti detektora. Fino samleven granit može se spakovati u cilindričnu posudu zapremine 0,2 l, ali se merenjem na opisani način ne može obezbediti poverenje u dobijene rezultate ispitivanja [6].

Tabela 6. Relativna međusobna odstupanja rezultata ispitivanja dobijenih merenjem u posudama različite geometrije

Relativno odstupanje			
Radionuklid	Marineli 1 l i Marineli 0,5 l	Cilindrična 200 ml i Marinili 1 l	Cilindrična 200 ml i Marinili 0,5 l
²²⁶ Ra	3,6%	15%	12%
²³² Th	0,4%	9%	9%
⁴⁰ K	1,0%	10%	9%

4. ZAKLJUČAK

Merenja uzorka granita su pokazala da stepen usitnjenosti ne utiče značajno na rezultat ispitivanja. Krupno usitnjen građevinski materijal je dovoljno dobro homogenizovan i daje zadovoljavajuće rezultate ispitivanja u Marineli posudi zapremine 1 l. Pokazano je da nije neophodno dodatno usitnjavanje i homogenizacija. Na tačnost rezultata mnogo više utiču geometrija merenja i kalibracija efikasnosti detektora za izabrani matriks. Zbog najveće razlike u masi uzorka i masi referentnog materijala, kalibracija efikasnosti detektora za građevinski materijal u cilindričnoj posudi zapremine 0,2 l nije adekvatna i rezultati su neprihvatljivi. Do nove kalibracije (korišćenjem referentnog materijala odgovarajućeg matriksa i mase ili učešćem u međulaboratorijskom poređenju) ili korekcije postojeće, cilindričnu posudu zapremine 0,2 l ne treba koristiti za merenje građevinskog materijala.

5. LITERATURA

- [1] 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 и 97/13, od 18.11.2011. и 6.11.2013.
- [2] Technical Report Series No.295, IAEA, Vienna, 1989.
- [3] M. Eeremić-Savković, V. Vuletić, Lj.Javorina, I. Tanasković, G. Pantelić. Kalibracija efikasnosti germanijumskih detektora za potrebe merenja uzoraka iz životne sredine. Zbornik radova XXVII simpozijuma društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore; oktobar 2013, Vrnjačka Banja, Srbija, 422-425.
- [4] S. Pavlidou, A. Koroneos, C. Papastefanou, G. Christofides, S. Stoulos, M.Vavelides. Title of the article. *Bulletin of the Geological Societz of Greece, vol XXXVI* 2004, 113–120.
- [5] European Commission (1999) Radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials. Radiation Protection 112. EC, Luxembourg
- [6] SRPS ISO/IEC 17025 Opšti zahtevi za kompetentnost laboratorija za ispitivanje i laboratorija za etaloniranje, 2006.

**INFLUENCE OF SAMPLE FRAGMENTATION AND
MEASUREMENTS GEOMETRY ON DETERMINATION OF
SPECIFIC ACTIVITY OF RADIONUCLIDES IN SAMPLE OF
GRANITE**

**Vesna ARSIĆ¹, Jovana ILIĆ¹, Suzana BOGOJEVIĆ¹, Irena TANASKOVIĆ¹ i
Tatjana MARKOVIĆ²**

1) *Institut za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“, Deligradska 29, 11000
Beograd, Srbija, vesna.arsic@institutkarajovic.rs*

2) *Military Tehnical Institute, Ratka Resanovića 1, 11000 Beograd, Srbija*

ABSTRACT

Laboratory for the radioactivity measurement performed analysis of the content of the radionuclides in the sample of the building material – Granite Balmoral Rosso. The sample (control), was measured in three different size containers (in order to verify the possibility of using a small amount of the sample if the test results are acceptable). In this paper, comparison of examination results obtained from the sample which is roughly triturated (manual technique of breaking) and finely grounded (grinding in mill), was demonstrated.