

**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.

ODREĐIVANJE SPECIFIČNE AKTIVNOSTI TRICIJUMA U UZORCIMA VODE I PADAVINA IZ OKOLINE JP „NUKLEARNI OBJEKTI SRBIJE”

Marija LEKIĆ, Nevena ZDJELAREVIĆ i Nataša LAZAREVIĆ

Javno preduzeće „Nuklearni objekti Srbije”, Beograd, Srbija,

marija.lekic@nuklearniobjekti.rs

SADRŽAJ

Tricijum je radionuklid čije se prisustvo u životnoj sredini u okolini nuklearnih postrojenja, posebno teškovodnih, pažljivo prati. Cilj ovog rada je određivanje specifične aktivnosti tricijuma u vodenim uzorcima pomoću niskofonskog tečnog scintilacionog detektora, Quantulus 1220. Analizirani su uzorci površinskih voda sa nekoliko lokacija u blizini JP “Nuklearni objekti Srbije“ iz potoka Mlake i reke Dunava, i uzorci mesečnih padavina prikupljenih na lokaciji JP „Nuklearni objekti Srbije“ u toku 2016. godine. Dobijeni rezultati ispitivanja površinskih voda i padavina pokazuju dobro slaganje sa prosečnim godišnjim vrednostima koje su ispod dozvoljenih granica.

1. UVOD

Tricijum je radioaktivni izotop vodonika sa periodom poluraspada od 12,32 godine. Raspada se čistim beta raspadom uz oslobađanje β čestice maksimalne energije od 18,6 keV [1]. U prirodi nastaje interakcijama kosmičkog zračenja sa molekulima gornjih slojeva atmosfere [2], reakcijom $^{14}\text{N}(n, T)^{12}\text{C}$, a zatim dospeva na površinu zemlje u obliku padavina. Tricijum koji se danas meri nije u potpunosti kosmičkog porekla. Velika količina ovog izotopa nastala je čovekovim uticajem, odnosno oslobađanjem tricijuma tokom testiranja nuklearnog oružja u periodu od 1952-1968. godine. Procenjuje se da je oko $1,67 \cdot 10^{20}$ Bq ^3H ispušteno u atmosferu prilikom testiranja nuklearnog oružja [3]. Tricijum takođe nastaje u procesima prerade iskorišćenog nuklearnog goriva, kao i u teškovodnim nuklearnim reaktorima putem nuklearnih reakcija. Ova postrojenja oslobađaju tricijum u obližnje površinske vode pa koncentracija tricijuma u njihovoj okolini može biti povećana. Praćenjem prisustva tricijuma u površinskim vodama i padavinama, vrši se monitoring nuklearnih postrojenja kako bi se uočilo ispuštanje i sprečila eventualna kontaminacija okoline. Prirodna koncentracija u kišnicama u centralnoj Evropi pre nuklearnih testova kretala se od 0,5 do 5 tricijumskih jedinica (T.U., Tricijumska jedinica se definiše kao 1 T.U. = 1 atom $^3\text{H}/10^{18}$ atoma H). Čovekov uticaj doveo do povećanja ovih vrednosti sa maksimumom od 5000 T.U. izmerenim 1963. godine [4]. Analiza tricijuma pored javne zaštite ima primenu u hidrogeologiji, određivanju starosti bunara, protoka vode, brzine vodotokova kao i praćenju reka ponornica.

Tricijum kao izotop vodonika gradi hemijske veze sa drugim elementima na isti način kao i vodonik, od kojih je najznačajnija sa kiseonikom kada nastaje tricijumska voda, $^1\text{H}^3\text{HO}$ ili HTO. Jednom kada dospe u atmosferu deponuje se u zemljištu i lako ulazi u sastav biljaka i drugih živih organizama jer migrira sa vodom. Tricijum, pored toga što je slab beta emiter i spada u najmanje opasne radionuklide, može izazvati zdravstvene probleme ukoliko uđe unutar živog organizma jer je hemijski identičan kao i vodonik.

Prema propisima Evropske Komisije gornja granica koncentracije tricijuma u vodi je 100 Bq/l [5]. Veće vrednosti bi mogle da ukažu na ispuštanje tricijuma u okolinu iz

nuklearnih postrojenja ili na ilegalno testiranje nuklearnog oružja pa su potrebne dalje analize kako bi se utvrdilo eventualno prisustvo drugih radionuklida u vodi. Distribucija tricijuma u padavinama, rečnim vodama, vazduhu i atmosferskim vodenim parama, posmatra se na području Beograda još od 1976. godine [6].

Na lokaciji Javnog preduzeća “Nuklearni objekti Srbije“ u Vinči (u blizini Dunava, 7 km jugoistočno od Beograda) nalazi se istraživački reaktor RA koji je stavljen van pogona 1986. godine. Uprkos prestanku rada i dalje je potencijalni izvor tricijuma. Teška voda koja je korišćena kao moderator je drenirana i odložena u rezervoare 1987. godine [6]. Zbog rada sistema za ventilaciju u hali reaktora može doći do ispuštanja tricijuma u obliku vodene pare. Kroz ventilacioni dimnjak reaktora RA može doći do potencijalnog ispuštanja tricijuma u atmosferu, što može dovesti do povećanih aktivnosti tricijuma u padavinama u okolini JP NOS. Praćenjem prisustva tricijuma u površinskim vodama i padavinama vrši se monitoring u okolini Javnog preduzeća “Nuklearni objekti Srbije“, kako bi se procenila distribucija tricijuma i vršila procena uticaja nuklearnih objekata na okolinu.

Za detekciju tricijuma koriste se gasni proporcionalni brojači i tečni scintilacioni detektori. Pogodnija metoda za merenje vodenih uzoraka je tečna scintilaciona spektrometrija (LSC) zbog merenja niskih aktivnosti jer ima nižu granicu detekcije kao i zbog lakše pripreme uzoraka za imerenje, direktnog mešanja uzoraka sa tečnim scintilacionim koktelom i veće efikasnosti brojanja.

U ovom radu analizirani su uzorci površinskih voda iz potoka Mlake i reke Dunava sa nekoliko lokacija u blizini Javnog preduzeća “Nuklearni objekti Srbije“ (JP NOS), i uzorci mesečnih padavina prikupljenih na lokaciji JP NOS u toku 2016. godine. Svi uzorci su mereni pomoću niskofonskog tečnog scintilacionog detektora, Quantulus 1220.

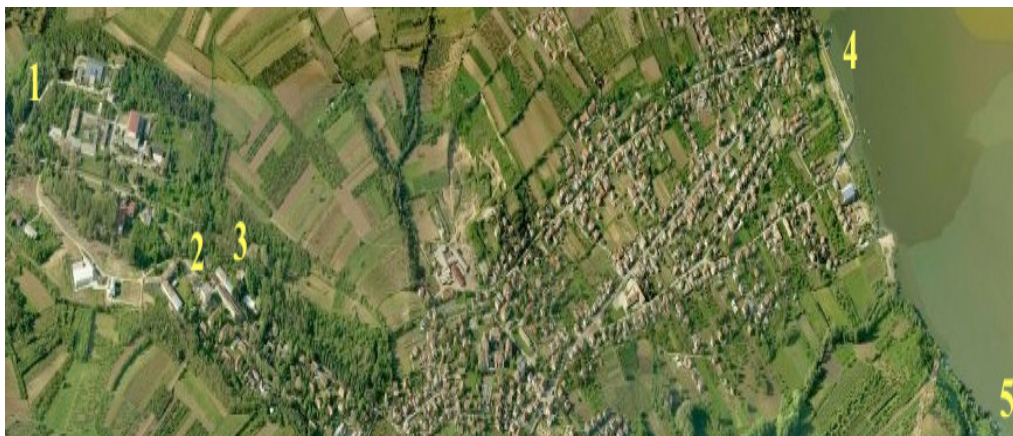
2. EKSPERIMENTALNI DEO

Laboratorija u okviru Odeljenja za ispitivanje radioaktivnosti i zaštitu životne sredine, JP NOS iz Beograda, opremljena je ultra-niskofonskim tečnim scintilacionim detektorom *Quantulus 1220*, proizvođača *Perkin Elmer*. Detektor sadrži dva fotomultiplikatora i ima mogućnost registrovanja koincidentnih događaja, odnosno razlikovanja fona od pravih događaja i sumiranja istovremenih događaja što omogućava detekciju niskoenergetskih radionuklida. Uređaj poseduje sopstveni sistem redukcije pozadinskog zračenja, koji se sastoji od aktivne i pasivne zaštite. Aktivnu zaštitu čini tečni scintilator na bazi mineralnog ulja, dok je pasivna zaštita napravljena od olova, bakra i kadmijuma. Sistem poseduje PSA (*Pulse Shape Analysis*) – analizator oblika impulsa i PAC (*Pulse Amplitude Comparator*) – komparator amplituda impulsa. Quantulus ima ugrađen eksterni standard (gama izvor, ^{152}Eu) [7] koji služi za određivanje efikasnosti merenja sistema sa odgovarajućim kalibracionim krivama kao i za određivanje efekta prigušenja (quenching), SQP(E) parametar.

Uzorci površinskih voda uzimani su sa tri različite lokacije duž potoka Malka, i sa dve lokacije na reci Dunav u blizini JP NOS, dok su uzorci mesečnih padavina prikupljeni na lokaciji JP NOS u toku 2016. godine, u periodu od šest meseci.

Potok Malka izvire izvan granice nuklearnih objekata i protiče jednim svojim delom kroz lokaciju JP NOS a dalje se uliva u reku Bolećicu, koja se potom uliva u reku Dunav. Prva tačka uzorkovanja na potoku Mlaka je mesto pre bilo kakvog uticaja nuklearnih objekata na okolinu, dok su druge dve tačke uzorkovanja na lokaciji JP

NOS. Četvrta i peta tačka uzorkovanja su na reci Dunav, 1 km udaljene uzvodno i nizvodno od ušća Bolečice u Dunav (Slika 1). Prve tri lokacije su izabrane zbog uticaja nuklearnih objekata na okolinu, dok su druge dve izabrane i zbog mogućeg uticaja nuklearnih elektrana iz susednih zemalja (NE Pakš, Mađarska i NE Krško, Slovenija). Padavine su prikupljane u periodu od marta do avgusta 2016. godine u kišomeru postavljenom u centru lokacije JP NOS.



Slika 1. Lokacije uzorkovanja površinskih voda

Svi uzorci su pripremljeni prema proceduri opisanoj u standardnoj test metodi međunarodnog standarda ASTM D4107–08 [8]. Uzorci su prvo filtrirani kroz Whatman filter papir, a zatim destilovani. U ovoj test metodi uzorci su tretirani natrijum–hidroksidom i kalijum–permanganatom. Alkalni tretman sprečava ostale radionuclide, kao što su jod i ugljenik, da pređu u destilat zajedno sa tricijumom. Tretiranje permanganatom omogućava osidaciju organskih tragova iz vode koji mogu da izazovu kvenčing (quenching) odnosno prigušenje, pojavu kod koje dolazi do smanjenja efikasnosti usled prisustva nečistoća i obojenih materija u uzorku (sprečavanju transfer energije i mogu apsorbovati emitovane fotone).

Nakon destilacije uzorci su mešani sa scintilacionim koktelom, *UltimaGold LLT* u odnosu 8 ml uzorka sa 12 ml koktela i odmeravani u polietilenskim bočicama od 20 ml. Kao “background” uzorak za određivanje fona, korišćena je destilovana voda iz dubokog bunara sa niskim sadržajem tricijuma. Za izračunavanje efikasnosti pod istim uslovima meri se i standardni rastvor tricijuma – rastvor poznate koncentracije aktivnosti od 15,9 Bq/ml, koji je pripremljen od destilovane vode niskog sadržaja tricijuma i tricijumskog izvora poznate aktivnosti 127 Bq (*Tritiated Water Internal Standard – Perkin Elmer*). Način pripreme standarda i “backgrounda” je isti kao i priprema uzoraka. U svakom setu merenja, mere se zajedno “background” i standard sa uzorcima kako bi svi bili mereni u istim uslovima.

Efikasnost detekcije (ε) izračunava se preko izraza:

$$\varepsilon = \frac{R_{DWTS} - R_b}{A_{DWTS}} \quad (1)$$

gde su: A_{DWTS} – poznata aktivnost standarda tricijuma [Bq], R_{DWTS} – brzina odbroja standarda tricijuma [s^{-1}], R_b – brzina odbroja fona [s^{-1}].

Specifična aktivnosti tricijuma uzorka izračunava se pomoću formule:

$$A = \frac{R_a - R_b}{\varepsilon \cdot F \cdot V \cdot e^{-\lambda t}} \quad (2)$$

gde su: R_a – brzina odbroja uzorka [s^{-1}], F – korekcionni (recovery) faktor koji definiše koliko se tricijuma gubi destilacijom (u konkretnim merenjima iznosi 0,9), V – zapremina uzorka [l], λ – konstanta raspada tricijuma, t – vreme proteklo od uzorkovanja do merenja.

Granica detekcije, odnosno minimalna detektibilna aktivnost (MDA) izračunata je prema formuli:

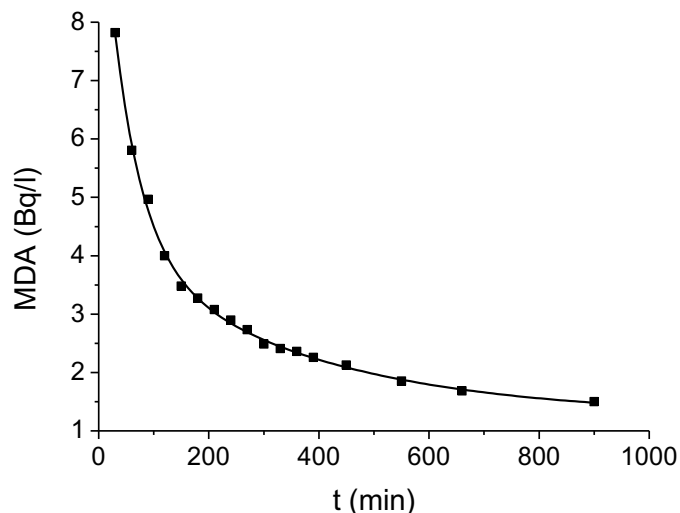
$$MDA = \frac{2.71 + 3.29 \sqrt{R_b \cdot t_a \cdot \left(1 + \frac{t_a}{t_b}\right)}}{\varepsilon \cdot t_a \cdot F \cdot V \cdot e^{-\lambda t}} \quad (3)$$

gde su: t_a – vreme merenja uzorka [s] i t_b – vreme merenja backgrounda [s].

3. REZULTATI I DISKUSIJA

U ovom radu izmerena je specifična aktivnost tricijuma 5 uzoraka površinskih voda i 6 uzoraka padavina. Svi uzorci su destilovani u tri serije i izračunata je srednja vrednost specifične aktivnosti tricijuma. Nakon destilacije i mešanja sa koktelom svi uzorci, “background” i standard, ostavljeni su da odstoje 9h na tamnom mestu pre merenja.

U našim merenjima prozor tricijuma je podešen na kanale od 1–260. Na slici 2. prikazana je zavisnost granice detekcije (MDA) od vremena brojanja. Za ukupno vreme merenja od 300 min, dobijena je MDA vrednost od 2,4 Bq/l. Efikasnost detekcije u konkretnim merenjima iznosi $(36 \pm 1)\%$.



Slika 2. Zavisnost granice detekcije od vremena brojanja

Rezultati merenja 5 uzoraka površinskih voda iz potoka Malke i reke Dunav (prema lokacijama obeleženim na slici 1) prikazani su u tabeli 1, dok su rezultati merenja uzoraka mesečnih padavina (od marta do avgusta 2016. godine) sakupljenih u centru lokacije JP NOS, prikazani u tabeli 2.

Tabela 1. Specifične aktivnosti tricijuma u izmerenim uzorcima vode iz potoka Mlake i reke Dunav

Broj	Lokacija	Koncentracija aktivnosti ^3H [Bq/l]
1.	Mlaka, tačka 1	< MDA
2.	Mlaka, tačka 2	$12,2 \pm 0,8$
3.	Mlaka, tačka 3	$14,8 \pm 0,8$
4.	Dunav, tačka 1	$11,8 \pm 0,8$
5.	Dunav, tačka 2	$12,2 \pm 0,8$

Vrednosti specifične aktivnosti tricijuma u površinskim vodama Mlake i Dunava kreću se u intervalu od MDA do $14,8 \text{ Bq/l}$. U prvoj tački uzorkovanja, na potoku Mlaka (koja je van uticaja nuklearnih objekata), specifična aktivnost tricijuma je ispod MDA vrednosti, dok su vrednosti za ostala četiri uzorka površinskih voda povećane što može biti posledica blizine reaktora RA. Svi dobijeni rezultati merenja su u skladu sa godišnjim koncentracijama aktivnosti ^3H prikazanim u [9] i [10]. Prema pravilniku o granicama radioaktivne kontaminacije lica, radne i životne sredine i načinu sprovođenja dekontaminacije iz 2011. godine, granična vrednost sadržaja ^3H u vodi za piće je $1,0 \times 10^5 \text{ Bq/m}^3$ [11]. Izmerene koncentracije tricijuma ne prelaze propisane granice.

Tabela 2. Specifične aktivnosti tricijuma u izmerenim uzorcima kišnica sakupljenih na centru lokacije tokom 6 meseci

Broj	Mesec (2016. godina)	Koncentracija aktivnosti ^3H [Bq/l]
1.	Mart	$3,1 \pm 0,7$
2.	April	$4,0 \pm 0,8$
3.	Maj	$5,2 \pm 0,7$
4.	Jun	$5,9 \pm 0,7$
5.	Jul	$3,0 \pm 0,7$
6.	Avgust	< MDA

Specifične aktivnosti ^3H u uzorcima padavina kreću se u intervalu od granice detekcije do $5,9 \text{ [Bq/l]}$. U radovima se navodi da se godišnje prosečne koncentracije aktivnosti ^3H u padavinama kreću u rasponu od $2,2$ do $35,4 \text{ [Bq/l]}$ [6], sa izrazitim maksimumom u letnjim mesecima, od maja do jula, koji odgovaraju uticaju intenzivnog mešanja u troposferi tokom proleća. Naši rezultati su pokazali dobro slaganje sa ovim iskazom. Rezultati specifične aktivnosti ^3H u padavinama na lokaciji JP NOS su dva puta veći u odnosu na rezultate u uzorcima padavina iz referentne meteorološke stanice Beograda na Zelenom Brdu ($2,63 \pm 0,24 \text{ Bq/l}$) [9] koja je udaljena 7 km od JP NOS, što može biti posledica ispuštanja tricijuma u obliku HTO u atmosferu.

4. ZAKLJUČAK

Izmerene specifične aktivnosti tricijuma kreću se intervalu od granice detekcije do $14,8 \text{ Bq/l}$ u površinskim vodama Dunava i Mlake u blizini lokacije JP NOS, i u intervalu od granice detekcije do $5,9 \text{ Bq/l}$ u uzorcima mesečnih padavina sakupljenih u centru

lokacije JP NOS, što je u skladu sa godišnjim vrednostima koncentracije aktivnosti tricijuma.

Iako su navedene koncentracije daleko ispod gornje granice za sadržaj tricijuma u vodi, nepohodno je kontinualno praćenje nivoa tricijuma u površinskim vodama i padavinama u cilju otkrivanja mogućeg povećanja koncentracije tricijuma u životnoj sredini usled uticaja rada nuklearnih objekata iz susednih zemalja.

5. LITERATURA

- [1] L.L. Lucas, M.P Unterweger, Comprehensive review and critical evaluation of the half-life of tritium, *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* 105, 2000, 541–549.
- [2] M.J. Madruga, M.M. Sequeria, A.R. Gomes, Determination of Tritium in Waters by Liquid Scintillation Counting, LSC 2008, *Advances in Liquid Scintillation Spectrometry*. J. Eikenberg, Jaggi M., H. Beer, H. Baehrle (Eds.), 2008., 353–359.
- [3] UNSCEAR, Sources and Effects of Ionizing Radiation, *United Nations Publications*, Vienna, Austria, 1977.
- [4] D.G. Jacobs, Sources of tritium and its behaviour upon release to the environment, Report No. TDI–24635, U.S. Atomic Energy Commission, Washington, 1968.
- [5] European Drinking Water Directive 98/83/EC of 3 November 1998 on the Quality of Water Intended for Human Consumption. European Commission, Official Journal Legislation 330, 1998.
- [6] N. Miljevic, V. Sipka, A. Zunjic, D. Golobocanin, Tritium around the Vinca Institute of Nuclear Sciences, *Journal of Environmental Radioactivity*. 48, 2000, 303-315.
- [7] Wallac 1220 Quantulus, Instrument Manual, Perkin Elmer, 2005.
- [8] ASTM International, Standard Test Method for Tritium in Drinking Water, D410-08.
- [9] J. Nikolov, N. Todorović, M. Jankovic, M. Vostinar, I. Bikit., Different Method for Tritium Determination in Surface Water by LSC, *Applied Radiation and Isotopes*. 71, 2013, 51-56.
- [10] C. Varlam, I. Stefanescu, I. Vagner, I. Fcaurescu, Tritium Level Along Romanian Danube River Sector, *Proceedings of Third European IRPA Congress*, 2010.
- [11] Pravilnik o granicama radioaktivne kontaminacije lica, radne i životne sredine i načinu sprovođenja dekontaminacije. Sl. Glasnik br. 38/2011, 2011.

**TRITIUM DETERMINATION IN SURFACE WATER AND
PRECIPITATION SAMPLES IN THE ENVIRONMENT OF THE PC
„NUCLEAR FACILITIES OF SERBIA”**

Marija LEKIĆ, Nevena ZDJELAREVIĆ and Nataša LAZAREVIĆ
Public Company „Nuclear Facilities of Serbia”, Belgrade, Serbia,
marija.lekic@nuklearniobjekti.rs

ABSTRACT

Tritium is a radionuclide whose presence in the environment around nuclear facilities has to be carefully monitored. The main aim of this paper was to determine tritium concentrations in water samples using low background liquid scintillation detector, Quantulus 1220. Surface water samples taken from Mlaka stream and Danube River on different locations near PC "Nuclear Facilities of Serbia", and monthly precipitation samples collected during 2016 on PC "Nuclear facilities of Serbia" site, were analyzed. The results obtained for surface water and precipitation samples showed good compliance with average annual values that are below the upper limit for tritium in water.