JONIZUJUĆA ZRAČENJA IZ PRIRODE

Beograd, 1995.

JUGOSLOVENSKO DRUŠTVO ZA ZAŠTITU OD ZRAČENJA

Monografija:

JONIZUJUĆA ZRAČENJA IZ PRIRODE

Urednik
Mr Milojko Kovačević

Beograd
1995

Monografija: Jonizujuća zračenja iz prirode

Izdavač: Institut za nuklearne nauke "Vinča"
Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine "Zaštita"

Jugoslovensko društvo za zaštitu od zračenja

Za izdavača: Dr Ilija Plećaš

Recezenti: Prof dr Đordje Bek-Uzarov
Dr Ante Kukoč
Dr Gordana Đurić
Dr Jovo Martinović
Dr Dragana Popović
Mr Radmila Smiljanić

Urednik: Mr Milojko Kovačević

Tehnički urednik:
Željko Kostadinović dipl. ing.

Objavljivanje monografije pomogli:
Ministarstvo za zaštitu životne sredine SRJ
Ministarstvo za nauku tehnologiju i razvoj Republike Srbije
Ministarstvo za zaštitu životne sredine Republike Srbije
NIS - Naftagas Novi Sad
PC plus

ISBN 86-80055-75-1

Štampa: Štamparija instituta za nuklearne nauke "Vinča", p.p. 522, 11001 Beograd, tel. (011)45-82-22/500. Tiraž: 300 primeraka. Štampa završena jula 1995. god.

Posvećeno

Prof.dr Petru Markoviću

dugogodišnjem predsedniku Jugoslovenskog društva za zaštitu od zračenja

PREDGOVOR

Zaštita od zračenja se doskora, skoro isključivo, bavila problemima proizvedenih radionuklida. Kako 3/4 godišnje efektivne ekvivalentne doze koju stanovništvo prima potiče iz prirodnih izvora Jugoslovensko društvo za zaštitu od zračenja je smatralo da ovom problemu treba pokloniti adekvatnu pažnju pa je u 1994. godini organizovalo savetovanje sa temom: "Izloženost stanovništva jonizujućem zračenju iz prirode". Da bi se sa ovim problemom upoznao širi krug ljudi odlučeno je da se štampa monografija koja u osnovi sadrži radove saopštene na Savetovanju ali proširene i prilagodjene monografiji.

U jonizujuća zračenja iz prirode ubrajamo kosmičko zračenje i zračenje koje potiče iz zemljine kore. Kod zračenja koje potiče iz zemljine kore dominantnu ulogu imaju tri radioaktivna niza: uranijumov, torijumov i aktinijumov. Zbog prisustva u životnim procesima, značajni su i ^{40}K i ^{3}H.

Monografija objašnjava geološko poreklo, geohemijske procese i migracije prirodnih radionuklida kroz pojedine ekosisteme. Posebno su obradjeni radionuklidi koji se javljaju u našim područjima. Ukazano je na probleme koji mogu da se jave pri eksploataciji ruda, kod velikih površinskih kopova i formiranjem jalovišta. Istaknut je značaj tehnološki povišene radioaktivnosti usled primene veštačkih djubriva i pri ekspopataciji i sagorevanju uglja u termoelektranama.

Kako radioaktivni gas radon najviše doprinosi godišnjoj efektivnoj ekvivalentnoj dozi to je u Monografiji posebno poglavlje posvećeno problemima merenja radona. Dati su rezultati merenja radona na pojedinim lokacijama u Srbiji i ukazano je na značaj atestiranja gradjevinskog materijala na prisustvo radionuklida.

Monografija daje odgovore i na neke aktuelene probleme i pisana je tako da je razumljiva i ljudima kojima zaštita od zračenja nije osnovna deletnost. Nadam se da će ova Monografija pomoći svima koji žele da saznaju nešto više o izvorima jonizujućih zračenja u prirodi ali će takodje biti od koristi i stručnjacima i ekspertima iz ove oblasti.

Urednik

НИС
НАФТНА
ИНДУСТРИЈА
СРБИЈЕ

Zakonom Republike Srbije osnovano je Javno preduzeće za istraživanje, proizvodnju, preradu i promet nafte i prirodnog gasa NIS-NAFTNA INDUSTRIJA SRBIJE. Kapital kojim raspolaže Naftna industrija Srbije je državna svojina Republike Srbije.

Delatnost Naftne industrije Srbije je:

- istraživanje i proizvodnja nafte, prirodnog gasa, podzemnih voda i geotermalne energije,
- transport i promet prirodnog i tečnog gasa,
- proizvodnja derivata,
- inženjering u oblasti naftne industrije,
- trgovina na veliko i malo,
- spoljnotrgovinski promet,
- projektovanje i izgradnja objekata,
- turističke usluge i dr.

U sastavu Naftne industrije Srbije su:

- NIS NAFTAGAS, deo preduzeća za istraživanje i proizvodnju nafte. prirodnog gasa, podzemnih voda i geotermalne energije, Novi Sad, Sutjeska 1.
- NIS GAS, deo preduzeća za transport i promet prirodnog i tečnog gasa, Novi Sad, Radnička 20.
- NIS ENERGOGAS, deo preduzeća za transport i promet prirodnog i tečnog gasa, Beograd Autoput 11.
- NIS RAFINERIJA NAFTE, deo preduzeća za proizvodnju derivata nafte, Novi Sad, Put Šajkaškog odreda 3.
- NIS RAFINERIJA NAFTE, deo preduzeća za proizvodnju ulja, Beograd, Pančevački put 83.
- NIS FABRIKA MAZIVA FAM, deo preduzeća za proizvodnju maziva, Kruševac, Jastrebačka 14.
- NIS JUGOPETROL, deo preduzeća za promet nafte i naftinih derivata, izvoz-uvoz, Beograd, Milentija Popovića 1.
- NIS NAFTAGASPROMET, deo preduzeća za promet nafte i naftimh derivata, izvoz-uvoz, Novi Sad, Bulevar oslobođenja 27.
- NIS INŽENJERING, deo preduzeća za projektovanje i izgradnju investicionih objekata, Novi Sad, Bulevar oslobođenja 37.

SADRŽAJ

Glava I. Radioaktivnost u prirodi, geološko poreklo

1. Prirodni radioaktivni elementi, geološko poreklo i oblici pojavljivanja i migracije 3
2. Geohemijski procesi u prirodi i radionuklidi 41
3. Geohemijski procesi i geohemijske anomalije uranijuma, radijuma i radona u tlu, vodama i vazduhu kao ekološki rizici 57
4. Pregled radioaktivnih minerala Jugoslavije 67
5. Radioaktivnost boksita Zapadne Srbije 83

Glava II. Tehnološki povišena radioaktivnost

6. Ugljevi i mineralna đubriva kao izvor tehnološkog povećanja prirodne radioaktivnosti 95
7. Nivo aktivnosti prirodnih radionuklida na odlagalištu jalovine Kolubarskih ugljenokopa 113
8. Kontrola prirodne radioaktivnosti na deponijama šljake i pepela TENT-A i TENT-B 119
9. Računanje inhalacione doze u okolini termoelektrana 123
10. Obrada i odlaganje radioaktivnog otpadnog materijala koji emanira ^{222}Rn 135

Glava III. Radon

11. Radon, glavni radioaktivni kontaminant čovekove okoline 145
12. Merenje koncentracije radona u stambenim objektima na teritoriji Beograda 191
13. Merenje koncentracije radona u stanovima Prištine, Kosovo polja i okolnih mesta 195
14. Odredjivanje EER kratkoživećih alfa potomaka ^{222}Rn na otvorenom prostoru 201
15. Eksperimentalno odredjivanje faktora elektrostatičkog sakupljanja radonovih kratkoživećih potomaka primenom elektreta 205
16. Osetljivost detektora CR-39 za merenje radona u različitim tipovima difuzionih komora 213
17. Mogućnost primene aktivnih ugljeva za merenje koncentracije radona 221
18. Efikasnost koncentričnog skenovanja površine trag detektora mikroskopom 231

Glava IV. Radioaktivnost gradjevinskih materijala

19. Prirodni radionuklidi u gradjevinskim materijalima sa osvrtom na nivo radona u stambenim prostorijama 241
20. Određivanje sadržaja prirodnih radionuklida u građevinskom materijalu 249
21. Upoređivanje gama-radioaktivnosti nekih građevinskih materijala 257

Glava V. Metode merenja prirodnih radionuklida

22. Specifični problemi merenja prirodnih radionuklida 263
23. Metode merenja koeficijenta emanacije radona 291
24. Odredjivanje aktivnosti krupnih uzoraka primjenom programa EXTSANGLE 299
25. Određivanje prirodnih izotopa urana i torijuma u uzorcima niskih aktivnosti metodom alfa-spektrometrije 305
26 Određivanje aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima zemlje i korekcionih koeficijenata za sumiranje kod ^{214}Bi 315
27 Aero-gamaspektrometrijska detekcija i tipovi geohemijskih radioaktivnih anomalija u Srbiji i susednim oblastima i njihov ekološki značaj 321

Glava VI. Nivoi izloženosti jonizujućem zračenju iz prirode i metode za proračun doza

28. Nivoi izlošenosti jonizujućem zračenju iz prirode i metode za proračun doza 335
29 Izračunavanje konverzionih koeficijenata za bazalne i sekretorne ćelije traheo-bronhijalnog trakta, na osnovu tri grupe relevantnih eksperimentalnih podataka 361
30. Prirodni radionuklidi u hrani 373
31. Jonizujuća zračenja u zatvorenim arhitektonskim prostorima kao ekološki problem 387
32. Analiza i eksperimentalna verifikacija proračunatih ekvivalentnih doza kod pilota 395

Glava VII. Informisanje i normativna delatnost

33. Izloženost zračenju iz prorode-značaj informisanosti u formiranju svesti javnog mnjenja i smanjenju izlaganja 411
34. Razvoj koncepcije smanjenja izlaganja prirodnom zračenju i novi medjunarodni standardi u zaštiti od radona 413

Glava I

Radioaktivnost u prirodi, geološko poreklo

1.

PRIRODNI RADIOAKTIVNI ELEMENTI, GEOLOŠKO POREKLO I OBLICI POJAVLJIVANJA I MIGRACIJE

Ivan A Gržetić i Rade J. Jelenković
Rudarsko-geološki fakultet, Univerzitet u Beogradu
Djušina 7, YU 11000 Beograd

1. UVOD

Fenomen radioktivnosti otkriven je pre oko 100 godina. Oko 1880. Henri Bekerel je ispitivao luminiscenciju uranilsulfata izazvanu ultraljubičastom svetlošću, zatim Vilhelm Rentgen 1895. otkriva rentgensku cev, a 1896. Bekerel saopštava na Akademiji nauka u Parizu da uran i njegove soli emitiju nevidljive zrake koji, ničim izazvani, ostavljaju tragove na fotografskoj ploči. Ova pojava je nazvana prirodna radiokativnost. Od tada, pa do danas, interes naučnika za radioaktivnost, radioaktivne elemente i njihovu primenu naglo raste.

Osnovni podaci o radionuklidima mogu se naći u kartama radionuklida (Lederer et al, 1967; Holden & Walker 1972, Weast, 1988 - Table of Isotops in CRC Handbook of Chemijstry and Physiscs) iz kojih se vidi da se u prirodi nalazi 264 stabilnih i još oko 1450 nestabilnih nuklida.Procesi na koji način su elementi, odnosno nuklidi nastali (Gržetić, 1988) ovde neće biti objašnjavani, niti će se posebno diskutovati o njihovoj rasprostranjenosti u prirodi (Arens, 1965). Radioaktivni raspad prvi su objasnili Bor i Viler još 1939. godine (Bohr and Wheeler, 1939),a svi značajniji podaci o osnovama radioaktivnosti mogu se naći u knjizi Fridlandera i saradnika objavljenoj 1964. godine (Friedlander et al, 1964).

Cilj ovog rada je da se sistematizuju podaci o prirodnoj radiokativnosti, zatim prouči geologija prirodnih radioaktivnih elemenata sa posebnim osvrtom na našu zemlju i ,konačno, objasne procesi migracije pojedinih radionuklida u prirodi.

2. PRIRODNI RADIOAKTIVNI NUKLIDI

Pre nego što se krene sa detaljnim izučavanjem radionuklida u prirodi potrebno je razmotriti pojam nuklida i njihovu podelu. Svi prirodni radionuklidi dele se, na osnovu njihovog vremena poluraspada, na dugoživeće i kratkoživeće. U prirodi senalazi ukupno 63 prirodnih radionulida (tabela 1 i 2). Broj kratkoživećih radionuklida je, medjutim, veoma diskutabilan i zavisi od načina shvatanja pojma kratkog života nuklida. U dugoživeće radionuklide spadaju oni čije vreme poluraspada prevazilazi 100 miliona godina.

Danas se ovom spisku mogu priključiti i radioaktivni nuklidi poreklom iz nuklearnih reaktora i atomskih bombi (fisioni i aktivirani nuklidi), a koje je stvorio čovek. I pored toga, ova druga grupa radionuklida "veštačkog" porekla, ovde neće biti razmatrana. Razlog tome je što veštački radionuklidi nisu nastali na isti način kao prirodni, mada nesumnjivo zagadjuju prirodu i opasniji su od prirodnih radionuklida, što je predmet posebne tematike.

Tabela 1. Dugoživeći radionuklidi u prirodi

Element			Vreme poluraspada	Element			Vreme poluraspada
Z		A		Z		A	
19	K	40	1.25×10^{9} god	62	Sm	147	1.08×10^{11} god
23	V	50	3.9×10^{17} god			148	7×10^{15} god
37	Rb	87	4.9×10^{10} god			149	1×10^{16} god
49	In	115	4.4×10^{14} god	71	Lu	176	3.6×10^{10} god
23	V	50	3.9×10^{17} god	75	Re	187	4.5×10^{10} god
52	Te	123	1.3×10^{13} god	76	Os	186	2×10^{15} god
		130	2.4×10^{21} god	90	Th	232	1.4×10^{10} god
57	La	138	1.06×10^{11} god	92	U	235	7.08×10^{8} god
60	Nd	144	2.1×10^{15} god			238	4.46×10^{9} god

Tabla 2. Kratkoživeći radionuklidi u prirodi

Element			Vreme polurasapada	Element			Vreme poluraspada
Z		A		Z		A	
1	H	3	12.26 god	6	C	14	5730 god.
Elementi poreklom iz prirodnih radioaktivnih nizova							
80	Hg	206	8.5 min.	85	At	215	100 μs
81	Tl	206	4.20 min			218	1.6 s
		207	4.77 min.			219	54 s
		208	3.05 min.	86	Rn	218	35 ms
		210	1.3 min.			219	3.96 s
82	Pb	205	1.51×10^7 god			220	55.6 s
		210	22.3 god			222	3.82 dan
		211	36.1 min.	87	Fr	223	21.8 min.
		212	10.64 h	88	Ra	223	11.43 dan
		214	26.6 min.			224	3.66 dan
83	Bi	210	3×10^6 god			226	1600 god
		211	2.14 min.			228	5.76 god
		213	45.6 min.	89	Ac	227	21.77 god
		214	19.9 min.			228	6.13 h
84	Pb	210	138.4 dan	90	Th	227	18.72 dan
		211	0.52 s			228	1.9 god
		212	0.3 μs			230	7.54×10^4 god
		214	163 μs			231	25.2 h
		215	1.78 ms			234	24.1 dan
		216	0.15 s	91	Pa	231	3.27×10^4 god
		218	3.11 min.			234	6.7 h
				92	U	234	2.45×10^5 god

Svi ovi elementi, navedeni u tabelama 1 i 2, mogu se naći u prirodi, s tim što dobar deo njih, koji spada u kratkoživeće radionuklide, za manje od sekunde ili za par stotina ili hiljada godina potpuno iščeznu, dok K-40, Th-232, Re-187, Lu-176, U-235 i U-238 ostaju prisutni milijardama godina. Jedino se C-14 obnavlja u prirodi kao posledica stalne interakcije kosmičkih termalnih neutrona i azota, tako da i pored kratkog vremena poluraspada njegova koncentracija u prirodi ne opada. Mnogi od ovih elemenata se nalaze u zemljinoj kori u sedimentima, mineralima i stenama i mogu se, rastvoriti u vodi ili pronaći u vazduhu (tabela 3).

Tabela 3. Radionuklidi koji se mogu naći u vodi ili vazduhu

Radionuklid	Vreme poluraspada	Nuklearna reakcija, izvor
Prirodni radionuklidi		
U-238	4.47×10^9 godina	Izvor minerali iz sedimenata i stena
U-235	0.71×10^9 godina	Izvor minerali iz sedimenata i stena
Th-232	14.0×10^9 godina	Izvor minerali iz sedimenata i stena
K-40	1.4×10^9 godina	0,0119% od ukupnog K u prirodi
Prirodni radionukleidi koji pripadaju radionizu U-238		
Th-234	24 dana	$^{238}U \Rightarrow {}^{234}Th$
Th-230	75200 godina	$^{238}U \Rightarrow$ u tri koraka do ^{230}Th
Ra-226	1620 godina	Izvor minerali iz sedimenata i stena
Rn-222	3.8 dana	$^{226}Ra \Rightarrow {}^{222}Rn \Rightarrow {}^{218}Po$
Pb-210	21 godina	$^{226}Ra \Rightarrow$ u 6 koraka do ^{210}Pb
Nukleidi nastali kosmičkim reakcijama		
C-14	5730 godina	^{14}N (n,p) ^{14}C, posledica termalnih n
Si-32	300 godina	^{40}Ar (p,x) ^{32}Si, nuklearna spalacija

(x) dopunjeni podaci bazirani na podacima Menahema (Manaham, 1991)

Koncentracije u kojima se ovi nuklidi nalaze u vodi variraju i zavise od koncentracije radionuklida u zemlji kroz koju protiču vodeni tokovi. Pošto visoke koncentracije radionuklida jesu štetne po prirodu i čoveka, danas postoje propisana ograničenja, za koja se veruje da do tih koncentracija radionuklidi nisu štetni. Na primer, maksimalno dozvoljena aktivnost radijuma u vodi (u USA) je 0,185 Bq po dm^3 (Manaham, 1991), odnosno maksimalna dozvoljena količina urana u vodi (u USA) kao UO_2^{2+} (uranil jon) je 5 mg/dm^3 (5ppm) (Fergusson, 1982).

Od svih ovih elemenata samo se radon može pronaći u atmosferi, dok se svi ostali nalaze uglavnom u zemljinoj kori, a fisioni produkti iz nuklearki i atomskih bombi na samoj njenoj površini (Djurić i Popović, 1994).

3. ZNAČAJNIJI PRIRODNI RADIONUKLIDI I NJIHOVE OSOBINE

Nesumljivo je da se određen broj radionuklida pojavljuje na različitim mestima u prirodi. Ta je pojavnost posledica njihovih kristalohemijskih i fizičkohemijskih osobina. Među značajne prirodne radionuklide, dakle one čija je zastupljenost u prirodi veća od ostalih poznatih radionuklida, svrstavaju se izotopi ugljenika C-14, zatim kalijum K-40, torijum (Th-232) i urana U-238 sa svojim produktima kao što su: Ra-226 i Rn-222.

3.1. Kristalohemijske osobine nekih radionuklida

Prema svojim geohemijskih karakteristikama C, K, Th i U pripadaju grupi litofilnih elementa, što znači da u globalu imaju negativniji redoks potencijal od halkofilnih elemenata, da im je jonski radius relativno mali, da se ne pojavljuju u prirodi u obliku sulfida, niti mogu da imaju izražen amfoterni karakter. Neki od važnijih podataka za ove elemente mogu se pronaći u tabeli 4.

Tabela 4. Neke važnije kristalohemijske osobine elemenata i njihovih prirodnih radionukleida

	C	K	Th	U	
Uobičajeno oksidaciono stanje	+4	+1	+4	+4	+6
Koordinacija	4	8	8	8	6
Jonski radijus (nm)	0.77	0.159	0.112	0.108	0.081
Elektronegativnost	2.5	0.8	1.3	1.7	

Posledice ovih kristalohemijskih osobina su da se ti elementi ugrađuju u različite geohemijske sredine, tj, minerale i stene. Iako su kristalohemijske i fizičkohemijske osobine elemenata u globalu te koje definišu osobine i odgovarajućih radionuklida, ipak postoje izvesne razlike od izotopa do izotopa istog elementa koje

su proučene i iskorišćene, na primer, u geotermometriji (Gržetić, 1990b). Kao dobar primer mogu da posluže stabilni izotopi vodonika (tabela 5) pri čemu bi se ove iste osobine mogle ustanoviti i kod radioaktivnih izotopa kao što su tricijum, C-14, Si-32 i drugih, ali na žalost takvih podataka za sada malo ima. Važno je naglasiti da se fizičkohemijske razlike među izotopima težih elemenata znatno smanjuju i postaju beznačajne kao kod olova, torijuma ili urana.

Tabela 5. Neke karakteristične konstante za H_2O, D_2O i $H_2^{18}O$.

	H_2O	D_2O	$H_2^{18}O$
Gustina (20°C, g/cm³)	0.9979	1.1051	1.1106
Temperatura najveće gustine	3.98°C	11.24°C	4.30°C
$t_{topljenja}$ (na 0.1 MPa) u °C	0.00	3.81	0.28
$t_{ključanja}$ (na 0.1 MPa) u °C	100.00	101.42	100.14
Viskoznost na 20°C (Paxsx10^3)	1.002	1.247	1.056
Napon pare na 100°C u MPa	0.101080	0.0959728	----------

3.2. Neke radiohemijske osobine prirodnih radionuklida

Informacije o značajnim osobinama radioaktivnih nuklida obuhvataju vrstu raspada kome podleže radionuklid ili član radioaktivnog niza, zatim vreme poluraspada ($t_{1/2}$) ili konstanta radioaktivnog raspada (α), a u onim slučajevima kada se koriste u geohronologiji (Gržetić, 1990a) korisne su informacije o efektivnom vremenskom intervalu koji govori o tome za koje vremensko razdoblje u prošlosti mogu da se dobiju pouzdani podaci o starosti, a da se ne načine značajne greške, kao i tipični minerali ili stene u kojima se mogu pronaći (tabela 6 a i b). Pored naznačenih izotopnih parova u tabeli 6 a i b, koji se najčešće koriste, retko se koriste i parovi $^{187}_{75}Re/^{187}_{76}Os$, $^{176}_{71}Lu/^{176}_{72}Hf$ i $^{40}_{19}K/^{40}_{20}Ca$, pri čemu je uvek prvi nuklid u paru radioaktivan. Nesumnjivo je da je važno znati kolika se energija oslobađa tokom radioaktivnog raspada i da li je radioaktivni raspad praćen γ zračenjem. Tako na primer raspad ugljenika C-14 nije praćen γ zračenjem (tabela 7), dok svi ostali naznačeni radioraspadi jesu.

4. NEKI GEOHEMIJSKI ASPEKTI PRIRODNIH RADIONUKLIDA

Sredine u prirodi, ne uzimajući u obzir žive organizme, u okviru kojih se koncentrišu pojedini radionuklidi su veoma različite, a način ugradnje ovih nuklida

određuju kristalohemijske osobine nuklida-elemenata. Na primeru petrogenih minerala granitoida će biti objašnjeno kako se pojedini radionuklidi ugrađuju u kristalne rešetke minerala domaćina i kako se iz njih oslobađaju.

Tabela 6A. Radioaktivni nizovi i njihove karakteristike

Sistem	$^{238}U/^{206}Pb$	$^{235}U/^{207}Pb$	$^{232}Th/^{208}Pb$
Vrsta raspada	$8\alpha + 6\beta$	$7\alpha + 4\beta$	$6\alpha + 4\beta$
λ u god^{-1}	$1.55125x10^{-10}$	$9.8485x10^{-10}$	$4.9475x10^{-10}$
$t_{1/2}$ u god.	$4.47x10^{9}$	$0.704x10^{9}$	$1.39x10^{9}$
Efektivni t interval[x] u god.	od 10^{7} do T_o	od 10^{7} do T_o	od 10^{7} do T_o
Tipični minerali i stene	cirkon uraninit monacit	cirkon uraninit monacit	cirkon uraninit monacit

[x] T_o= Starost Zemlje (oko 4.5 milijardi godina)

Tabela 6B. Radioaktivni nizovi i njihove karakteristike

Sistem	$^{87}Rb/^{87}Sr$	$^{40}K/^{40}Ar$	^{14}C
Vrsta raspada	β	Elektronski zahvat	β
λ u god^{-1}	$1.42x10^{-11}$	$0.581x10^{-10}$	$1.21x10^{-4}$
$t_{1/2}$ u god.	$5.0x10^{10}$	$1.3x10^{9}$	5730
Efektivni t interval[x] u god.	od 10^{7} do T_o	od 5000 do T_o	od 0 do 70000
tipični uzorci ili stene	biotit muskovit mikroklin	bionit muskovit hornblenda	drveni ugalj drvo fosilni ostaci

[x] T_o= Starost Zemlje (oko 4.5 milijardi godina)

Tabela 7. Energetski bilansi radioaktivnog raspada prirodnih radionukleida

$^{238}_{92}U \Rightarrow ^{206}_{82}Pb + 8\,^{4}_{2}He + 6\beta^{-} + Q$ (praćeno γ zračenjem) Q=47.4 MeV/atom ili 2.97 J/gU/godini
$^{235}_{92}U \Rightarrow ^{207}_{82}Pb + 7\,^{4}_{2}He + 4\beta^{-} + Q$ Q = 45.2 MeV/atom ili 18.00 J/(g U)/godina (praćeno γ zračenjem)
$^{232}_{92}Th \Rightarrow ^{208}_{82}Pb + 6\,^{4}_{2}He + 6\,\beta^{-} + Q$ Q=39.8 MeV/atom ili 0.84 J/(g U)/godina (praćeno γ zračenjem)
$^{14}_{6}C \Rightarrow ^{14}_{7}N + \beta^{-} + \nu^{-} + Q$ Q=0.156 MeV/atom (NIJE praćeno γ zračenjem)
$^{40}_{19}K \Rightarrow (88.8\%)\,^{40}_{19}K \Rightarrow ^{40}_{20}Ca + \beta^{-} + Q_1$ (praćeno γ zračenjem) $\Rightarrow (11.8\%)\,^{40}_{19}K + \beta^{-} \Rightarrow ^{40}_{18}Ar + \beta^{+} + Q_2$ (praćeno γ zračenjem) Q_1=1.32 MeV/atom; Q_2=1.51 MeV/atom
$^{87}_{37}Rb \Rightarrow ^{87}_{38}Sr + \beta^{-} + \nu + Q$ Q = 0.275 MeV/atom

4.1. Uran u petrogenim mineralima granitoida

Iz grupe petrogenih minerala najveći značaj u pogledu koncentrisanja urana imaju minerali iz grupe feldspata i liskuna. Kako su koncentracije urana u glavnim petrogenim mineralima prilično niske, a ukupne količine tih minerala su velike, s obzirom na njihovu veliku rasprostranjenost, oni predstavljaju izvore iz kojih se mogu izlužiti značajne koncentracije urana. Tako na primer, na osnovu analiza kvarc-feldspatske komponente i biotita u granitoidu Bukulje, lokalnost Cigankulja-Podgroblje i Paun Stena, utvrđene su sledeće koncentracije urana i torijuma: 19,3 ppm U i 78,3 ppm Th u biotitu, 0,8-4,6 ppm U i 0,3-6,5 ppm Th u kvarcu i 0,63 ppm U i 12,9 ppm Th u kvarcu i feldspatu (Jelenković, 1991). To znači da se u tom regionu ukupne koncentracije U i Th u geološkoj sredini mere količinama koje prevazilaze više miliona tona.

U biotitu, muskovitu i mineralima iz grupe feldspata, uran se pre svega nalazi u obliku U^{4+}. Ukoliko su, međutim, pomenuti minerali pod uticajem hidrotermalnih ili meteorskih voda, manje/više bogatih kiseonikom, pretrpeli određene promene, uran u njima može biti prisutan i u U^{6+} obliku. Na osnovu brojnih ispitivanja utvrđeno je da se uran pre nalazi u kristalnim rešetkama ovih minerala, a ređe kao intersticijalan.. Oblici vezivanja urana u mineralima kao što su biotit, muskovit ili feldspati od posebnog su interesa pri razradi fizičkohemijskih modela geneze hidrotermalnih ležišta urana u granitoidnom kompleksu i prikazani su u tabeli 8.

TABELA 8. Način vezivanja urana u kristalnim rešetkama minerala domaćina

Mineral:	Oblik vezivanja urana u mineralu:
Biotit: $K(Mg,Fe)_3\ AlSi_3\ O_{10}\ (OH)_2$:	Uran se u biotit ugrađuje u vidu U^{4+} ili ređe kao UO_2^{2+}:
- na mesto $2Mg^{2+}$ ili $2Fe^{2+}$ ili $Fe^{2+} + Mg^{2+}$ dolazi U^{4+} : $K(Mg,Fe)UAlSi_3\ O_{10}\ (OH)_2$	
- na mesto Mg^{2+} ili Fe^{2+} dolazi UO_2^{2+} : $K(Mg,Fe,UO_2)3AlSi_3\ O_{10}\ (OH)_2$	
Muskovit: $KAl_3Si_3O_{10}(OH)_2$	Uran se u muskovit ugrađuje ređe kao U^{4+} ili češće kao UO_2^{2+}:
- na mesto K^+ i Al^{3+} dolazi U^{4+} : $K^{1+}_{1-x}Al^{3+}_{3-x}U^{4+}_xSi_3O_{10}(OH)_2$	
- u oksidacionoj sredini na mesto K^+ i Al^{3+} dolazi $2UO_2^{2+}$: $K^{1+}_{1-x}Al^{3+}_{3-x}(UO_2^{2+})_{2x}Si_3O_{10}(OH)_2$	
Feldspat: $(KAlSi_3\ O_8)$	Uran se u feldspate ugrađuje u vidu U^{4+} ili UO_2^{2+} :
- na mesto K^+ i Al^{3+} dolazi U^{4+} :	$K^{1+}_{1-x}Al^{3+}_{3-x}U^{4+}_xSi_3O_8$
- na mesto K^+ i Al^{3+} dolazi $2UO_2^{2+}$	$K^{1+}_{1-x}Al^{3+}_{1-x}(UO_2^{2+})_{2x}\ Si_3O_8$

4.2. Uran u akcesornim mineralima granitoida

Značajne koncentracije urana u granitoidima su vezane u sledećim akcesornim mineralima: cirkonu i monacitu, zatim u ortitu, sfenu, ksenotimu, apatitu i drugim mineralima.

Cirkon ($Zr_{1-x}U_xSiO_4$) iz granitoida može da sadrži nekoliko ppm urana i uvek u odnosu na tu koncentraciju skoro upola manju koncentraciju torijuma. Uran se u cirkonu koncentriše na više različitih načina. Jedan od osnovnih oblika je uran u vidu primese u kristalnoj rešetki umesto Zr^{4+}. Drugi način koncentrisanja je izomorfno zamenjivanje itrijuma (koji je uvek prisutan u cirkonima) uranom. Treći način vezivanja urana sa cirkonom je mogućnost obrazovanja izomorfnih smeša koje su vrlo raširene u ortosilikatima tih elemenata.

Monaciti [$CePO_4$ ili $(Ce,La,Nd,U)PO_4$] poreklom iz granitoida sadrže različite koncentracije urana, na primer na Bukulji monacir sadrži 8,8 ppm urana i 6,3 ppm torijuma (Jelenković, 1991), pri čemu je uran u njemu prisutan u vidu U^{4+} komponente, na dva načina: 1) zamenom katjona i anjona, tako što se U^{4+} ugrađuje na mesto Ce^{3+}, a ujedno se SiO_4^{4-} ugrađuje na mesto PO_4^{3-} i 2) zamenom samo katjona tako što se $2U^{4+} + Na^+$ joni ugrađuju na mesto $3Ce^{3+}$jona.

U turmalinu UO_2^{2+} zamenjuje dvovalentne katjone, na primer Ca^{2+} tako da se dobija: $Ca_{1-x}(UO_2)_xLiFe_2Al_6Si_6O_{18}(BO_3)_3(OH)_4$.

U apatitu je uran prisutan najčešće u obliku uranil jona: $Ca_{10-x}(UO_2)_x(PO_4)_6(F,Cl,OH)_2$ ili $Ca_{10}(PO_4)_6(F,sCl,OH)_2 + xCa[UO_2PO_4]_2$.

Dominantan faktor koji utiče na oslobađenje urana iz pretrogenih i akcesornih minerala granitoida su kiseli hidrotermalni rastvori. Oni predstavljaju medijum koji pored izluživanja urana utiče i na alterisanje (degradaciju) granitoida - stena u kojima se nalazi uran. Budući da po sastavu hidrotermalni rastvori predstavljaju

mešavinu magmatogenih (toplih podzemnih) i meteorskih (hladnih površinskih) voda bogatih kiseonikom, sposobni su da oksiduju U^{4+} do oblika U^{6+}. Šestovalentni uran je rastvoren u obliku UO_2^{2+} jona koji gradi komplekse koji mogu relativno lako da se transportuju hidrotermalnim rastvorima.

4.3. Alteracije minerala koji sadrže uran-oslobađanje urana

Mehanizami alteracija granitoida mogu biti veoma različiti. To su hemijski i fizičkohemijski procesi, a u globalu sastoje se od procesa kisele hidrolize petrogenih minerala koji su praćeni nizom drugih pratećih procesa i pojava. Termodinamički to su spontani procesi i praćeni su uvek promenom zapremine sistema. U tekstu se daje samo primer procesa oslobađanja urana iz glavnih petrogenih minerala nekog granitoidnog kompleksa. Pošto su ovi procesi spontani lako se mogu i fizičkohemijski objasniti, kinetički ili na neki drugi način.

Uran iz ortoklasa ($KAlSi_3O_8$) se oslobađa na dva načina, transformaciom ortoklasa u kaolin u prisustvu jakih kiselih rasvora ili transformaciom ortoklasa u sericit u prisustvu slabo kiselih rastvora:

1) $4K^{1+}_{1-x}Al^{3+}_{3-x}U^{4+}_{x}Si_3O_8 + 18H_2O + 4H^+ =>$
ortoklas
$=> \underset{\text{kaolin}}{Al_4Si_4O_{10}(OH)_8} + 8H_4SiO_4 + 4K^+ + xU^{4+}$

2) $3K^{1+}_{1-x}Al^{3+}_{3-x}(UO_2^{2+})_{2x}Si_3O_8 + 12H_2O + 2H^+ =>$
ortoklas
$=> \underset{\text{sericit}}{KAl_3Si_3O_{10}(OH)_2} + 6H_4SiO_4 + 2K^+ + 2xUO_2^{2+}.$

Iz biotita ($K(Mg,Fe)_3AlSi_3O_{10}(OH)_2$) uran se može osloboditi na dva načina:

3) $6K(Mg,Fe)UAlSi_3O_{10}(OH)_2 + 3OH^+ => \underset{\text{sericit}}{(Mg,Fe)_6Si_4O_{10}(OH)_8} +$
biotit
$+11SiO_2 + 17H_2O + 3Al_2SiO_5 + 6K^+ + 6U^{4+}$

4) $2K(Mg,Fe,(UO_2))_3AlSi_3O_{10}(OH)_2 + H_2O + 2H^+ =>$
biotit
$\underset{\text{sericit}}{(Mg,Fe)_6Si_4O_{10}(OH)_8} + SiO_2 + Al_2SiO_5 + 2K^+ + 6UO_2^{2+}$

Pored ovih primera postoji i dugi niz drugih, ali zbog prostora neće biti ovde obrađivani.

4.4. Tipične koncentracije radioaktivnih elemenata u nekim mineralima i stenama

Tipične koncentracije radioaktivnih elemenata i njihovih produkata u mineralima domaćinima i stenama dati su u tabelama od 10 do 12. Ovi podaci su prvenstveno određivani i sistematizovani zbog svog značaja za geohronologiju (Gržetić, 1990a, Faure, 1977). Vrlo je važno napomenuti da se naznačene koncentracije odnose

na ukupni sadržaj svakog pojedinačnog elementa u prirodi, a da se samo jedan deo od ukupnog sadržaja tih elemenata odnosi na radionuklide, s tim što je taj deo uvek proporcionalan prirodnoj raspodeli stabilnih i radioaktivnih nuklida svakog pojedinačnog elementa (tabela 9).

Tabela 9. Prirodna rasprostranjenost pojedinih radionuklida

Elemenat Z	Rasprostranjenost stabilnih nuklida u %	Rasprostranjenost radioaktivnih nuklida u % i vreme poluraspada		
Uran 92		U-234: U-235: U-238:	0.0057% 0.7204% 99.2739%	2.54×10^5 god 7.04×10^8 god 4.46×10^9 god
Torijum 90		Th-232:	100%	1.4×10^{10} god
Renijum 75	Re-185: 37.40%	Re-187	62.6%	4.5×10^{10} god
Lutecijum 71	Lu-175: 97.40%	Lu-176:	2.59%	3.6×10^{10} god
Rubidijum 37	Rb- 85: 72.1654%	Rb-87:	27.8346%	4.9×10^{10} god
Kalijum 19	K- 39: 93.08% K-41: 6.91%	K-40:	0.0119%	1.25×10^9 god

Tabela 10. Tipične koncentracije radioaktivnih elemenata i njihovih produkata u pojedinim mineralima i stenama u ppm (Brownlow, 1978)

Stena mineral	U	Th	Pb	Rb	Sr	K
Hlorit	0.014	0.04	1.2	2.8	11	860
Bazalt	0.8	2.7	4.5	30.0	470	8500
Granit	4.4	16.0	20.0	170.0	290	33000
Škriljci	3.8	12.0	20.0	140.0	300	28000
Biotit	20.0	25.0	25.0	1000.0	20	70000
Muskovit	20.0	25.0	25.0	700	80	70000
K-feldspat	1.5	5.0	25.0	500.0	100	90000
Plagioklasi	2.5	1.5	0.0	30.0	500	6000
Amfibol	15.0	25.0	7.0	10.0	150	3000
Piroksen	20.0	13.0	7.0	10.0	150	5000
Cirkon	25000	2000	100.0	---	---	---

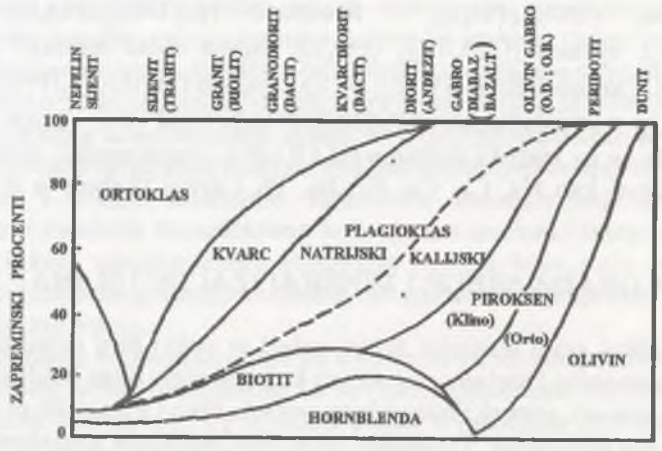
Tabela 11. Srednje koncentracije U, Th i Pb u magmatskim i sedimentnim stenama u ppm (Turekian & Wedepohl, 1961)

Vrsta stena	U	Th	Pb	Th/U
Granit sa niskim Ca	3.0	17.0	19.0	5.7
granit sa visokim Ca	3.0	8.5	15.0	2.8
sijenit	3.0	13.0	12.0	4.3
bazaltne stene	1.0	4.0	6.0	4.0
ultramafiti	0.001	0.004	1.0	4.0
glineni škriljci	3.7	12.0	20.0	3.3
peščari	0.45	1.7	7.0	3.8
karbonati	2.2	1.7	9.0	0.77
dubokorske gline	1.3	7.0	80.0	5.4

Tabela 12. Srednje koncentracije Ru, K, Sr i Ca u magmatskim i sedimentnim stenama u ppm (Turekian & Wedepohl, 1961)

Vrsta stena	Ru	K	Sr	Ca
ultrabazične stene	0.2	40	1	25000
bazalti	30	8300	465	76000
graniti sa visokim Ca	110	25200	440	25300
graniti sa niskim Ca	170	42000	100	5100
sijeniti	110	48000	200	18000
glinoviti škriljci	140	26600	300	22100
peščari	60	10700	20	39100
karbonati	3	2700	610	302300
dubokomorski karbonati	10	2900	2000	312400
dubokorske gline	110	25000	180	29000

Radioaktivni nuklidi se najčešće ugrađuju u minerale i stene koje u sebi sadrže visok procenat zemnoalkalnih i alkalnih metala. To se lako može potvrditi analizom tabela 10, 11 i 12 i sl.1 i konstatovati da su graniti i granitoidne stene najbogatije uranom i torijumim, s tim što se ovi elementi mogu naći i u sedimentnim stenama.



Slika 1. Procentna zastupljenost pojedinih minerala u različitim magmatskim stenama

4.5. Poznatiji minerali urana i torijuma

Pored ugradnje urana u kristalne rešetke minerala domaćina postoje i samostalni minerali urana i torijuma, više od 160 (tabela 13). Koncentracije ovih minerala u prirodi veoma su niske.

Tabela 13. Poznatiji minerali urana i torijuma

Uraninit	UO_2
Karnotit	$(K,Na,Ca,Cu,Pb)_2(UO_2VO_4)_2$
Torbernit	$Ca(UO_2PO_4)_2x8\ H_2O$
Autunit	$Ca(UO_2PO_4)_2x10\ H_2O$
Uranocircit	$Ba(UO_2PO_4)_2x8\ H_2O$
Tujamundit	$Ca(UO_2VO_4)_2x4\ H_2O$
Uranofan	$Ca(UO_2SiO_4)_2(H_3O)_2x\ 8\ H_2O$
Branerit	$(U,Ca,Fe,Y,Th)(Ti,Fe)_2O_6$
Poznatiji minerali torijuma	
Torit	$ThSiO_2$
Monacit	$(CeTh)PO_4$

Sa druge strane važno je napomenuti da se pojedini od njih, autunit na primer, u prirodi javljaju u više različitih oblika: H-autunit $[H_2(UO_2)_2(PO_4)_2]$, Na-autunit $[Na_2\ (UO_2)_2(PO_4)_2]$, K-autunit $[K_2(UO_2)_2(PO_4)_2]$, Sr-autunit $[Sr(UO_2)_2(PO_4)_2]$, autunit $[Ca(UO_2)_2\ (PO_4)_2]$. Njima slični minerali su: basetit $[Fe(UO_2)_2(PO_4)_2]$, uranocircit $[Ba(UO_2)_2(PO_4)_2]$, salecit $[Mg(UO_2)_2(PO_4)_2]$, torbernit $[Cu(UO_2)_2(PO_4)_2]$ i prževalskit $[Pb(UO_2)_2(PO_4)_2]$. Svi oni imaju zajedničku karakteristiku da su za matriks načinjen od UO_2PO_4 grupa vezani jednovalentni i dvovalentni katjoni kao Na, Ca, Cu, Fe, Ba, Pb i drugi (Soboleva & Pudovkina, 1957).

5. GEOLOŠKA GRAĐA SRBIJE I MINERALIZACIJE URANA

U geološkoj građi teritorije Srbije nalazi se veliki broj stenskih kompleksa (magmatske, sedimentne i metamorfne stene) koji pokazuju bitne međusobne razlike, kako u pogledu starosti, geneze i mineralnog sastava, tako i u pogledu petrohemijskih i geohemijskih karakteristika. Pomenute tvorevine pokazuju naglašene razlike i u pogledu stepena prirodne radioaktivnosti. Ona je izazvana prisustvom prirodnih radioaktivnih elemenata u ovim geološkim jedinicama, u prvom redu urana (u vidu sopstvenih minerala ili primese u mineralima drugih elemenata), torijuma, kalijuma i radijuma. Najznačajnija je svakako prirodna radioaktivnost izazvana prisustvom uranske mineralizacije.

Mogućnost koncentrisanja urana u raznovrsnim geološkim sredinama Srbije u osnovi je određena specifičnim geohemijskim karakteristikama ovog elemenata, odnosno složenim putevima migracije urana u endo, egzo i metamorfogenim uslovima. Iz ovih razloga, u prirodi postoje brojni i veoma različiti genetski tipovi ležišta urana koji ga, u osnovi, odvajaju od drugih ležišta metaličnih mineralnih sirovina.

Posmatrano sa stanovišta geologije i vremena nastanka, proces koncentrisanja urana na teritoriji Srbije (što je u zajednici sa mnogim drugim faktorima i dovelo do stvaranja njegovih povišenih koncentracija u vidu rasejanih mineralizacija, pojava i ležišta), analogno većini drugih oblasti Zemljine kore, nije bio vezan za striktno određene periode u njenom razvoju. Odigravao se u periodu od prekambrije do kvartara. Započeo je u proterozoiku, analogno drugim uranonosnim oblastima u svetu (Ristić, 1984), pri čemu je mineralizacija urana vezana za intenzivne procese granitizacije i nastanak feldspatsko-liskunskih gnajseva, zatim crnih grafitičnih škriljaca kaledonske etape geološkog razvoja i dr., zaključno sa alpskom etapom (Jelenković, 1991). Erodovanjem gnajseva i drugih stena koje su nastale u procesu granitizacije uran je transportovan ka sedimentacionim prostorima i taložen u klastičnim sedimentima od kojih su kasnije tokom metamorfizma nastali grafitični škriljci, gnasevi i druge stene.

Prema Ristiću i dr. (1984) prvo koncentrisanje urana u stenskim kompleksima Srbije odigralo se u proterozoiku, eri koja je trajala u periodu od pre 1,6-2,6 milijardi godina. Ono je bilo vezano za intenzivne metamorfne procese, kao i intruzivnu i granitizacionu aktivnost, pri čemu su nastali pegmatiti sa uraninitom kod Prokuplja, pegmatiti sa kolumbitom na Kukavici kod Vranja, pegmatiti sa uraninitom na Staroj Planini, zatim kod Gornjana, pegmatiti sa uranonosnim epidotom kod Donjeg

Milanovca, uraninit, uranotorijanit i torijanit na Staroj Planini i Aldinoj reci i dr. Naredno koncentrisanje urana u stenskim kompleksima Srbije bilo je vezano za nastanak crnih grafitičnih škriljaca tokom kaledonske etape geološkog razvoja u stenama kambrijumske, ordovicijumske i silurske starosti (u periodu pre 570-380 miliona godina) na području Bukulje, Jastrebca, Stare Planine i drugih oblasti. Sve do hercinske orogeneze koja po starosti odgovara karbonu (pre 280-240 miliona godina), nije bilo značajnijeg koncentrisanja urana. U ovom periodu uran je koncentrisan u crnim bituminoznim škriljcimai šarenim kontinentalnim peščarima zapadne Srbije, na Staroj Planini i drugim oblastima. Intenzivno koncentrisanje urana i njegova preraspodela u stenskim kompleksima koji ulaze u geološki sastav teritorije Srbije odigralo se tokom alpijske etape geološkog razvoja koja traje sve do kvartara (približno 70-2 miliona godina). U okviru nje nastao je najveći broj pojava i ležišta urana na teritoriji Srbije.

Osim dugog vremenskog perioda u kome su formirane povišene koncentracije urana na teritoriji Srbije nastajale su i u širokom dijapazonu temperature, pritiska i fizičkohemijskih uslova, tako da se danas nalaze u različitim geološkim sredinama i oblicima pojavljivanja. Međutim, najčešće su vezana za određene tipove stena, tj. uočljiva je tzv. litološka kontrola njihovog pojavljivanja. Pored magmatskog i strukturnog, sa aspekta prostorne lokalizacije ležišta urana litološki faktor je dominantan.

Povišene koncentracije urana u prirodi su najčešće vezane za piroklastite ili efuzive intermedijarnog, kiselog i alkalnog vulkanizma, kao i njihove intruzivne ekvivalente (granitoidne komplekse i dr.). Veoma često povišene koncentracije urana su u prirodi vezane i za različite terigene sedimente (peščare i dr.) sa prisustvom organske materije ili druge sedimentne tvorevine, kao i kristalaste škriljce. Posebno je važno naglasiti da je uran pod uticajem spoljnjih, egzogenih agenasa (voda, kiseonik i dr.), podložan procesima remobilizacije. Naime, u zavisnosti od geoloških karakteristika sredine u kojoj se nalazi, on može biti rastvaran i transportovan sa mesta na kojima se primarno nalazio, a zatim ponovo deponovan u novoj geološkoj sredini u kojoj postoje odgovarajući uslovi za njegovo obaranje (redukcione geohemijske barijere).

5.1. Uranonosnost područja Srbije

U proteklih 48 godina, teritorija Srbije je sistematski izučavana u pogledu uranonosnosti. U ovom periodu su prikupljeni obimni podaci o njegovoj distribuciji u različitim stenskim kompleksima i otkrivena brojna ležišta i pojave urana. Sistematskim regionalnim i detaljnim geloškim istraživanjima prekriveno je oko 50% potencijalno uranonosne teritorije Srbije i otkriveno je više stotina zona anomalno povišene radioaktivnosti. Na osnovu ovih radova, sprovedenih od strane istraživača "Geoinstitut"-a iz Beograda i drugih, sve geološke jedinice koje ulaze u sastav teritorije Srbije su prema stepenu perspektivnosti u pogledu urana podeljene u tri grupe (Antonović, 1978, Janković i dr. 1990):

- kristalasti masivi kao ostaci prealpijske podloge i proboji granitoidnih masiva unutar njih,
- terigeni sedimentni baseni različite starosti (tercijarni, permotrijaski, permski

i permokarbonski), i

- kisele, intermedijarne i alkalne vulkanske stene i njihovi piroklastiti, zatim vulkanski aparati i priobalni sedimentni baseni čiji se sedimenti mešaju sa piroklastitima.

Regionalnim avioradiometrijskim ispitivanjima nivoa prirodne radioaktivnosti izabranih geoloških formacija sa područja Srbije ustanovljena je sledeća slika fonskih vrednosti gama radioaktivnosti: kristalasti škriljci (216-1296 fA/kg), najčešće 720-1152 fA/kg, granitoidi 576-1440 fA/kg, karbonski sedimenti 576 fA/kg, permski crveni peščari 360-1080 fA/kg, jurski sedimenti 288-1000 fA/kg, krečnjaci 288 fA/kg, kredni fliš 576 fA/kg, tercijarni sedimenti 576-1650 fA/kg, daciti 1080 fA/kg, dijabazi 144-288 fA/kg. Ustanovljeno je da one uglavnom odgovaraju klarkovim sadržajima glavnih radioaktivnih elemenata (U, Th, K) (Janković i dr., 1990). Odnosno, po uranonosnim područjima i stenskim kompleksima, prirodna radioaktivnost je sledeća:

1. SI Srbija - masivi Gornjana, Brnjice, Neresnice, Homoljske planine: granitporfiri (do 1440 fA/kg), gornjanski granit (do 1440 fA/kg), neresnički i brnjički graniti (288-792 fA/kg), permski peščari (216-1080 fA/kg),

2. Šumadija - graniti (1440 fA/kg), škriljci (1440 fA/kg)

3. Cer-Iverak - tercijarni sedimenti (720-1650 fA/kg), škriljci (720-1296 fA/kg), gnajsevi (1008-1156 fA/kg), graniti (720-1440 fA/kg)

4. Centralna Srbija - sliv Južne, Zapadne i Velike Morave: kristalin prekambrijske starosti (216-1000 fA/kg), paleozojski škriljci (288-1000 fA/kg), karbonski (576 fA/kg) i permski sedimenti (360-1080 fA/kg), tercijarni sedimenti (576 fA/kg) i graniti (720 fA/kg).

5. Južna Srbija - Jablanica, Pusta reka, Skopska Crna Gora: gnajsevi (576-792 fA/kg), migmatiti (720-1000 fA/kg), gnajsgraniti (1224 fA/kg).

6. JI Srbija - Vlasina, Besna Kobila, Bosiljgrad: kristalasti škriljci (do 1152 fA/kg), daciti (do 1080 fA/kg), granodioriti (576-720 fA/kg), tercijarni sedimenti (288-648 fA/kg).

Detaljnijim aeroradiometrijskim ispitivanjima stenskih kompleksa istočne, jugoistočne i južne Srbije, na primer, a koji su svrstani u I rang prioriteta po stepenu perspektivnosti na uran (kristalasti škriljci proterozojske i paleozojske starosti, metasedimenti paleozojske starosti, terigeni sedimenti perma, trijasa i tercijara, granitoidi i vulkaniti različite starosti), indicirano je ukupno 279 anomalija radioaktivnosti. Od ukupnog broja anomalija 146 vodi poreklo od urana, 30 od U-Th mineralizacije, a 103 od torijuma (Janković, 1990).

U pogledu uranonosnosti, odnosno intenziteta prirodne radioaktivnosti, detaljno su izučene i površinske i podzemne vode koje su prostorno vezane za određene stenke komplekse. Tako na primer, konstatovano je da se fonski sadržaji urana u površinskim i podzemnim vodama na području Srbije kreću u sledećim intervalima (u g/dm^3 vode): za granitoidne stene od 0,98 za Neresnički granit do 3,51 za Gornjanski granitoidni kompleks (Istočna Srbija); za gabrove od 8,75 do 1,37; za kristalaste škriljce od 0,93-2,69; za crvene peščare permske starosti od 0,60-1,51; za kredne sedimente od 0,48-2,07; za krečnjake 0,95; za tercijarne sedimente od 1,13-2,88; za dacito-andezite i njihove piroklastite od 0,94 do 5,83 (tufovi Lepenice); za neogene sedimente od 1,1 do 2,71, i, izuzetno, u Belanovičkom basenu 10,0 g/dm^3 vode (Janković, Filipović i dr., 1990).

Ne upuštajući se u detaljniji prikaz intenziteta radioaktivnosti geoloških tvorevina koje ulaze u sastav teritorije Srbije, u najkraćem prikazaćemo genetske tipove pojava i ležišta urana prema petrogenim kompleksima u kojima se nalaze, kao i rudna polja i rejone sa ležištima i pojavama urana (Antonović, 1973; 1977; 1985; Cukućan, 1984/85; Filipović, 1980; Janković, 1965; 1990; Klajn, 1978; 1980; Višić, 1971) (sl. 2).

5.2. Mineralizacija urana u granitoidnim i vulkanogenim kompleksima

Na teritoriji Srbije se nalazi veći broj granitoidnih kompleksa različitog petrohemijskog sastava, metalogenetske specijalizacije i starosti. Otuda, svi magmatski kompleksi nisu i istog značaja sa stanovišta uranonosnosti. U njima se uran nalazi u vidu sopstvenih minerala koji su nastali u procesu kristalizacije magme, zatim u akcesornim mineralima granitoidnih kompleksa, kao primesa u petrogenim mineralima granitoida i u obliku minerala koji su nastali kao posledica hidrotermalne aktivnosti (pehblenda i dr.). Karakteristično je da su u većini granitoidnih kompleksa utvrđeni i minerali urana (uraninit, uranotorijanit i uranotorit) koji su nastali u magmatskom stadijumu.

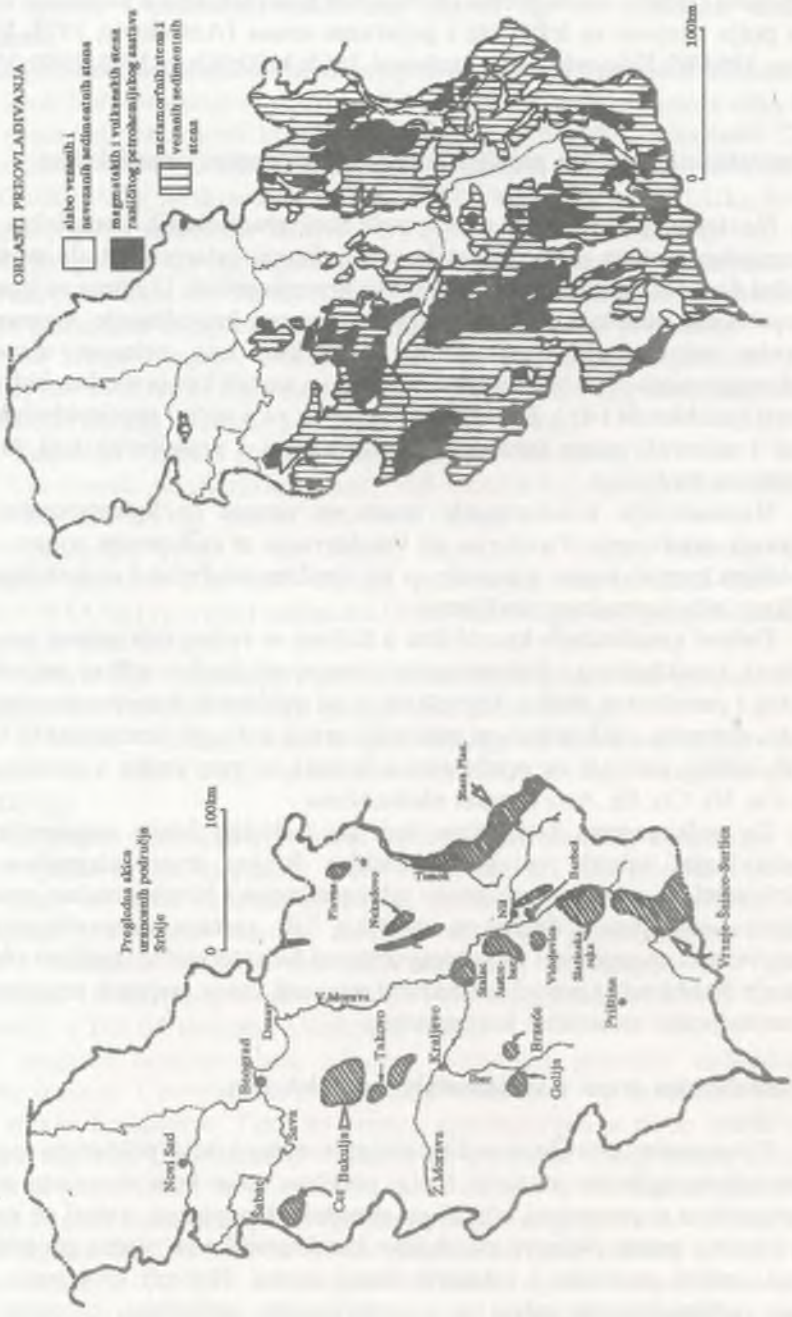
Najznačajnije koncentracije urana su vezane za hidrotermalni stadijum obrazovanja orudnjenja. Prostorno su lokalizovane u razlomnim zonama u samim granitoidnim kompleksima a nastale su na visokim, srednjim i niskotemperaturnim područjima hidrotermalnog stadijuma.

Delovi granitoidnih kompleksa u kojima se rudna tela nalaze intenzivno su polomljeni, kataklazirani i hidrotermalno izmenjeni. Rudna tela su najčešće žičnog, sočivastog i gnezdastog oblika. Izgrađena su od pehblende kao dominantnog rudnog minerala, autunita - sekundarnog minerala urana i drugih komponenti. Osim čisto uranskih ležišta, poznata su orudnjenja u kojima se uran javlja u asocijaciji sa Mo, Mo-Fe-Cu, Ni, Co, Bi, As i drugim elementima.

Za vulkanogene komplekse koji na teritoriji Srbije zauzimaju značajno rasprostranjenje, takođe su karakteristične brojne zone anomalno povišene radioaktivnosti. U mnogim intenzivno tektoniziranim i hidrotermalno promenjenim vulkanitima andezitskog, dacitskog, riolitskig i dr. sastava, mineralizacija urana je pretežno vezana za srednje i niskotemperaturni hidrotermalni stadijum obrazovanja orudnjenja. Pehblenda i mnogi sekundarni minerali urana (autunit, uranova čađ i dr.) su najzastupljenije mineralne komponente.

5.3. Mineralizacija urana u sedimentnim kompleksima

U terigenim, klastičnim sedimentnim stenama Srbije (peščarima sa povišenom koncentracijom ugljevite materije i dr.), posebno onim koje se nalaze u basenima lokalizovanim u neposrednoj blizini granitoidnih kompleksa, nalazi se najveći broj pojava i ležišta urana. Njihove zajedničke karakteristike su slična geološka sredina stvaranja, uslovi postanka i primarni izvori urana. Najveći broj zona anomalno povišene radioaktivnosti nalazi se u srednjezrnim peščarima, tj. onim delovima stenskih kompleksa u kojima postoji smena oksidacionih i redukcionih sredina. Najčešći izvor urana su tektonizirani granitoidni i vulkanogeni kompleksi koji se nalaze



Slika 2. Teritorija Srbije sa izdvojenim uranonosnim zonama, rejonima i poljima

u blizini sedimentnih basena i čiji mehanički i hemijski dezintegrisani materijal ulazi u sastav sedimentnih tvorevina. Ležišta urana su kako epigenetskog, tako i singenetskog karaktera. Karakteristično je da su povišene koncentracije urana koje se nalaze u ovakvim geološkim sredinama podložne naknadnim ispiranjima pod uticajem površinskih i podzemnih voda, odnosno izluživanju sa mesta primarnog nastanka. Ti procesi u krajnjem slučaju vode ili ka rasejavanju ili koncentrisanju urana.

5.4. Mineralizacija urana u metamorfnim kompleksima

Dosadašnjim istraživanjima ležišta nuklearnih mineralnih sirovina na teritoriji Srbije, posmatrano sa ekonomskog aspekta, ustanovljeno je da metamorfni kompleksi u poređenju sa granitoidnim i sedimentnim stenama, sadrže manje značajne koncentracije urana. Sa geološkog stanovišta, međutim, oni su kao geološka sredina i mogući primarni izvor ove komponente vrlo interesantni budući da se u njima nalaze različiti genetski tipovi orudnjenja i mineralizacije urana. Orudnjenja su uglavnom vezana za hidrotermalni stadijum obrazovanja orudnjenja, različita pegmatitska tela kao i kontaktno-metasomatske procese u egzokontaktnim delovima pojedinih granitoidnih kompleksa.

5.5. Pojave i ležišta urana na teritoriji Srbije

Na području Srbije se nalazi relativno veliki broj pojava i manji broj ekonomski interesantnih ležišta urana. Ona su lokalizovana u specifičnim metalogenetskim sredinama - rudnim poljima i zonama i pokazuju velike međusobne razlike. Zbirno posmatrano, to su:

1. Rudni rejon Stare planine, sa sledećim izdvojenim uranonosnim područjima (zonama, poljima, ležištima i mineralizacijama urana):

1.1. Rudno polje granitoidnog kompleksa Janje. U okviru ovog uranonosnog područja nalazi se veliki broj pojava i ležišta urana čiji je nastanak vezan za obaranje urana iz gasno-tečnih hidrotermalnih rastvora u razlomnim zonama i pratećim pukotinsko- preslinskim sistemima granitoidnog kompleksa. Orudnjenja su lateralno-sekrecionog tipa. Posmatrano sa ekonomskog stanovišta najznačajnija su ležišta Mezdreja, Gabrovnica i Srneći Do.

1.2. Uranonosna zona "Inovska serija". Prostorno je vezana za staropaleozojski kompleks Stare Planine, odnosno proslojke grafitičnih škriljaca u seriji arkoznih peščara i konglomereta (pojave Inovska reka, Tumba i dr.)

1.3. Pojave i mineralizacije urana prostorno vezane za intruzije granitporfira na prostoru tzv. staropaleozojske "Crvovrške serije" (okolina sela Aldinac).

1.4. Jugoistočni deo Stare Planine (Dojkinci-Lokve-Jelovica) sa mineralizacijom urana u peščarima, dijagenetsko-epigenetskog tipa.

2. Uranonosna zona Lepenski Vir - Porečka reka u okviru koje je detaljnim istraživanjima izdvojena mineralizacija urana u:

2.1. Seriji tufova i sivih peščara permske starosti. Specifičnost ovog uranonosnog područja čini prisustvo ostataka organske materije u peščarima. Orudnjenja se nalaze na području Lepenskog vira.

2.2. Mineralizacija urana u depresijama paleoreljefa granitoida Plavne, u osnovi sedimenatnog pokrivača jurske starosti.

3. Uranonosna zona (formacija) crvenih permskih peščara. U unutrašnjem delu Karpato-balkanida u crvenim peščarima permske starosti uočeno je prisustvo većeg broja rudnih pojava i mineralizacija urana epigenetskog karaktera. Orudnjenja su vezana za:

3.1. Kompleks tzv. "šarenih stena" u formaciji crvenih permskih peščara (pojava Stolovac i dr.)

3.2. Izbeljene alevrolite u formaciji crvenih permskih peščara (mineralizacije Čestobrosica, Mečja rupa, Ludi vir i dr.).

4. Kučajsko-beljanički uranonosni rejon - Mineralizacije, pojave i ležišta urana su vezane za razlome i povoljne litološke sredine (ugljevito-glinoviti škriljci, vulkanogeni i vulkanogeno-sedimentni kompleksi ordovicijsko-silurske starosti) na prostoru Beljanica - Kučaj, odnosno Nekudovo-Resavica.

5. Uranonosni rejon Bukulje (Šumadija):

5.1. Mineralizacije, rudne pojave i ležišta urana u granitoidnom kompleksu Bukulje. Ležišta Paun Stena i Cigankulja, pojava Milanov potok i dr., vezana su za široke intenzivno hidrotermalno promenjene brečoidno-glinovite razlomne zone, različite prostorne orijentacije. Orudnjenja pripadaju tipu srednje do niskotemperaturnih hidrotermalnih ležišta lateralno- sekrecionog tipa. Pored ležišta urana u granitoidnom kompleksu Janje, predstavljaju ekonomski najinteresantnije objekte na teritoriji Srbije.

5.2. Pojave i ležišta urana u sedimentima belanovačkog basena u južnom obodnom delu granitoidnog kompleksa Bukulje. Orudnjenja urana (ležišta Kamenac-Preturica, Srednje Brdo, pojave Bobovik, Gaj, Kamenac i dr.) su infiltracionog tipa i vezane su za peščare miocenske starosti. Minerali urana su deponovani na redukcionim geohemijskim barijerama, tj. zonama smene oksidacione sa redukcionom sredinom u pomenutoj sedimentnoj seriji.

5.3. Ekonomski manje značajne pojave i mineralizacije urana u sedimentnim tvorevinama aranđelovačkog neogenog basena na severu od intruzivnog granitoidnog kompleksa Bukulje.

5.4. Pojave i mineralizacije urana vezane za vulkanogeni kompleks Medvednjak. Orudnjenja (Poslovčica, Ivančevac i dr.) su infiltracionog tipa, a lokalizovana su u manjim uranonosnim razlomima.

6. Mineralizacija urana u rudnom polju Avala-Kosmaj-Babe. Malog je ekonomskog značaja. Vezana je za Pb-Zn mineralizaciju (Stenička Bara, Parlog i dr. - orudnjenje urana je vezano za razlomne zone u vulkanskim brečama).

7.Mineralizacija urana u rudnom polju Rudnik. Malog je ekonomskog značaja. Najznačajnije su pojave Ridžinac i Strane lokalizovane na kontaktu silifikovanih vulkanita i krednih sedimenata, kao i u rasednim zonama u vulkanitima dacitsko-andezitskog sastava.

8. Uranonosni rejon Cer - Iverak u kome su izdvojeni:

8.1. Obodni delovi granitoidnog kompleksa Cer sa visokotemperaturnom pegmatitsko-hidrotermalnom mineralizacijom urana i drugih minerala.

8.2. Rudno polje Iverak u neogenom sedimentnom basenu Korenita-Jadar (na jugu od granitoidnog kompleksa Cera). Brojne mineralizacije, rudne pojave urana

(Ravni potok i dr.), kao i ležište urana Ribarice, su lokalizovane i seriji peščara. Pripadaju grupi orudnjenja infiltracionog tipa.

9. Vranjsko-pčinjski uranonosni rejon. U okviru pomenutog rudnog rejona nalazi se veći broj mineralizacija i pojava urana, vezanih kako za neogene sedimente Vranjskog i Pčinjskog basena, tako i za vulkanite, tufove, tufozne peščare i dr. geološke jedinice. Među njima se izdvajaju:

9.1. Mineralizacije i pojave urana infiltracionog tipa u paleogenim (Koćurska reka, Šaince, Mezdreja, Petni do, Buštrenje i dr.) i neogenim sedimentima Vranjsko-pčinjskog basena (Žbevac, Vranjska banja i dr.)

9.2. Mineralizacije i pojave urana hidrotermalnog tipa vezane za razlomne zone u vulkanitima Vranjske Banje.

9.3 Pojave urana u oblasti Surdulice. Vezane su za proslojke tufova i tufoznih peščara, kalcedonsko-opalske mase u piroklastitima, mugle ugljevitih glinaca u vulkanogeno-sedimentnim brečama i argilizirane tufite.

10. Zaplanjsko-barbeški rejon

10.1. Mineralizacije i pojave urana infiltracionog tipa u brečokonglomeratima i peščarima zaplanjskog tercijarnog basena (D.Prisjan, G.Dragovlje, Gadžin Han, Krastavče i dr.), i

10.2. Pojave urana u seriji peščara u sedimentima barbeškog neogenog basena.

11. Rejon Golije sa rudnom pojavom Muhovo. Vezana je za strukture vulkanskih aparata, odnosno zone razlamanja i prateće pukotinsko-prslinske sisteme. Hidrotermalnog je tipa.

12. Rejon Takovo-Borač sa većim brojem izdvojenih mineralizacija i pojava urana u severozapadnom delu boračko-kotleničke vulkanogene oblasti (Trijeska, Veliki Vrh, Crni Vrh), zatim u sericitsko-grafitičnim škriljcima (Mandre) i na području Takova u vulkanogeno-sedimentnom kompleksu stena (pojave Jasike, Spasovina i dr.).

13. Rejon Kukavice - pojave urana u granitima (Slatinska reka). Hidrotermalnog je tipa.

14. Rejon Stalaćskih visova - Poslonjskih planina.- Mineralizacija urana je vezana za zone rasedanja u kristalastim škriljcima (Grbak).

15. Rejon Besna Kobila - Bosiljgrad, sa pojavama urana u razlomnim zonama u grafitičnim kristalastim škriljcima.

5.6. Ekonomski značaj i tipovi ležišta urana na teritoriji Srbije

Prema ekonomskim i morfostrukturnim tipovima kao i uslovima postanka, među izdvojenim pojavama i ležištima urana na teritoriji Srbije, najznačajnija su žična hidrotermalna i infiltraciono sedimentna ležišta urana.

Najveća, samim tim i najznačajnija su orudnjenja prvog tipa. Nalaze se u strukturama razlamanja u različitim litološkim sredinama (granitoidima, vulkanitima i kristalastim škriljcima), pri čemu je debljina razloma od 0,2 do mekoliko metara, najčešće od 0,5 do 2 m. Okolne stene orudnjenja su intenzivno hidrotermalno promenjene pri čemu kaolinizacija, hloritizacija i siifikacija dominiraju. Dimenzije rudnih žica su od nekoliko do 300 m (u proseku). Sadržaj urana je promenljiv i kreće se u rasponu od 50-100 ppm do preko 1000 ppm (najčešće oko 300 ppm). U poređenju sa svetskim ležištima urana ovoga tipa, sadržaji urana i ukupna količina rude u našim

ležištima su relativno niski.

Drugi tip orudnjenja urana je takođe u velikoj meri zastupljen na teritoriji Srbije. Ograničen je na sedimentacione basene, najčešće tercijarne i permske starosti. Iako u pojedinim slučajevima sadrže i lokalno visoke koncentracije urana (preko 2.500 ppm), rezerve pripadaju grupi vanbilansnih budući da sadrže malu količinu rudnih rezervi.

Sadržaj urana u ležištima ovoga tipa je neravnomerno raspodeljen. Nalazi se u funkciji oksidaciono-redukcionih karakteristika, klimatskih prilika i karakteristika sedimentnih stena u kojima se nalazi orudnjenje i dr. Oblik i razmere rudnih tela se određuju prema graničnom sadržaju urana u mineralizaovanoj masi i obično se nalaze u intervalu od 100-300 ppm, što je posmatrano sa aspekta svetskih ležišta urana, relativno niska vrednost.

Interesantno je napomenuti da: a) siromašna ruda sadrži oko 0,03% U (300 ppm = 300 g U na 1 t rude), b) bogata ruda sadrži više od 0,15% U (1500 ppm = 1500 g na 1 t rude) i c)veoma bogata ruda sadrži 2 do 3% U (Šinkolobve, Katanga - Zair). U optimalnom slučaju ako se uran eksploatiše iz uranonosnih granita (specifična težina granita = 2,65 t/m^3) onda treba preraditi za 1 kg (0,001 t) prirodnog urana 3,33 t siromašne rude ili 0,66 t bogate rude (4722 t rude za 1 kg čistog $^{235}_{92}U$).

6. FIZIČKOHEMIJSKI FAKTORI PROCESA MOBILIZACIJE, TRANSPORTA I DEPOZICIJE URANA KAO KONTAMINACIONIH PROCESA

Uran u granitoide dospeva zajedno sa magmom, tokom procesa intruzije granitne magme u površinske slojeve zemlje. Obično uslovi pod kojima se magma hladila ne dopuštaju da se fugasnost koseonika do te mere poveća da bi se uran mogao oksidovati do U^{6+}. Svaki eventualni višak kiseonika u magmi bi se utrošio na oksidaciji sumpora koji je uvek prisutan u magmi, s obzirom da je afitet S^{2-} (npr. iz pirita) veći nego afinitet U^{4+} prema kiseoniku. To uostalom potvrdjuju sledeće jednačine oksidacije:

5) $H_2S + 4H_2O = SO_4^{2-} + 10H^+ + 8e$ $\quad E° = +0,303$ V

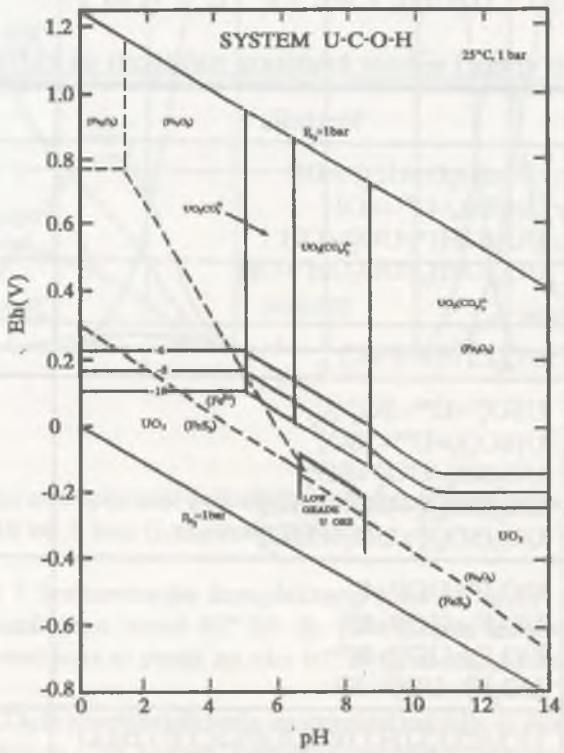
6) $U^{4+} + 2H_2O = UO_2^{2+} + 4H^+ + 2e^-$ $\quad E° = +0,327$ V

Ove jednačine ukazuju na činjenicu da se u prisustvu kiseonika prvi oksuduje sulfid, a tek nakon toga urano jon. Iz tih se razloga uran u granitoidima najčešće pojavljuje u obliku pehblende [UO_2-U_3O_8] u kojima četvorovalentni uran preovljadjuje.

6.1. Oksidacija urana i kompleksi urana rastvoreni u vodi

Dominatan faktor koji utiče na mobilizaciju urana je priliv blago kiselih vodenih rastvora koji alterišu i ispiraju primarnu granitnu stenu, a koji su ujedno i oksidacioni, jer donose kiseonik koji potpomaže oksidaciju U^{+4} do U^{+6}. Šestovalentni uran (U^{+6}) je rastvoran u obliku UO_2^{2+} jona (uranil jon) koji gradi komplekse koji mogu relativno lako da se transportuju hidrotermalnim rastvorima.

Uticaj redoks potencijala (Eh) i kiselosti (pH) sredine na ponašanje urana prikazano je na slici 3 iz koje se jasno vidi da je uranil jon slododan i rastvoran u širokom dijapazonu Eh-pH vrednosti. Takodje se vidi da je uran fiksiran (nerastvoran) samo u redukcionim sredinama u obliku pehblende ili uraninita pod Eh-pH uslovima pod kojima su stabilni i sulfidi (npr. pirit).



Slika 3.Eh-pH dijagram za sistem U-C-O-H, (Langmuir, 1978)

Iz sl.3 se takodje vidi da UO_2^{2+} jon gradi karbonatne komplekse u oksidacionoj, blago kiseloj i alkalnoj sredini, a koji su izuzetno rastvorni.

Generalno izučavanje kompleksa urana prikazano je u tabeli 14 i na sl.4 iz koje se lako uočava da za različite pH vrednosti uranil jon gradi različite komplekse u prisustvu brojnih kompleksirajućih jona. Na osnovu eksperimentalnih podataka pronadjeno je da se uran u rastvorima pojavljuje u obliku svojih kompleksa sa karbonatnim anjonom, hidroksilnom grupom, fosfatnim anjonima, fluoridnim anjonom, arsenatnim anjonom, sulfatnim anjonom i delom sa silikatnim anjonom. Pored ovih poznati su i kompleksi sa organskim anjonima huminskih kiselina i drugima.

Tokom alteracije primarnih stena uran se oksiduje zbog priliva kiseonika (porast fugasnosti kiseonika) koji dolazi sa površinskim vodama descedentno niz pukotine. Ovi rastvori su ujedno i blago kiseli jer u sebi sadrže CO_2 koji sa vodom

daje ugljenu kiselinu (H_2CO_3). U prisustvu kiseonika prvo se oksiduje sumpor od sulfida do sulfata, zatim U^{4+} do UO_2^{2+}, a tek pri višem redoks potencijalu uvek u vodi prisutan Fe^{2+} jon do Fe^{3+} jona (sl.3).

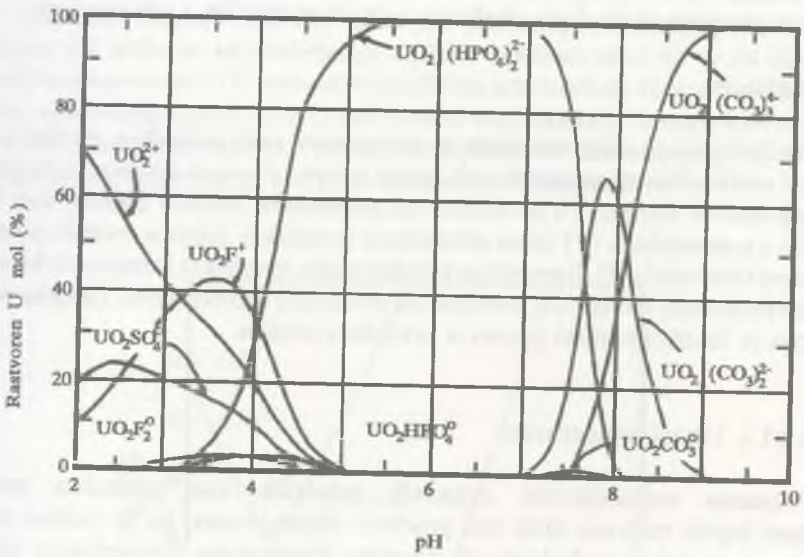
7) 3) $U^{4+} + 2H_2O = UO_2^{2+} + 4H^+ + 2e^-$ $E° = +0,327$ V

8) 4) $Fe^{2+} + 3H_2O = Fe(OH)_3 + 3H^+ + e^-$ $E° = +1,06$ V

Tabela 14. Kompleksi urana i njihove konstante stabilnosti na 25 °C

Anjon	Reakcija	K_{25}
OH^-	$U^{4+}+2H_2O=UO_2^{2+}+4H^+$ $U(OH)_4=U^{4+}+4OH^-$ $UO_2(OH)^+=UO_2^{2+}+OH^-$ $UO_2(OH)_2=UO_2OH^+ + OH^-$	$6x10^{-5}$ 3 $1x10^{-4}$ 5 $1.6x10^{-10}$ $1.3x10^{-12}$
Cl^-	$UO_2Cl^+=UO_2^{2+}+Cl^-$	$2.0x10^0$
SO_4^{2-}	$USO_4^{2+}=U^{4+}=SO_4^{2-}$ $U(SO_4)_2=U^{4+}+2SO_4^{2-}$ $UO_2SO_4=UO_2^{2+}+SO_4^{2-}$ $UO_2(SO_4)_2^{2-}=UO_2^{2+}+2SO_4^{2-}$ $UO_2(SO_4)_3^{4-}=UO_2^{2+}+3SO_4^{2-}$	$5.8x10^{-4}$ $3.8x10^{-6}$ $2.0x10^{-2}$ $2.8x10^{-3}$ $4.0x10^{-4}$
F^-	$UO_2F^+=UO_2^{2+}+F^-$ $UO_2F_2=UO_2^{2+}+2F^-$ $UO_2F_3^-=UO_2^{2+}+3F^-$ $UO_2F_4^{2-}=UO_2^{2+}+3F^-$	$2.6x10^{-5}$ $1.2x10^{-8}$ $3.4x10^{-11}$ $1.4x10^{-12}$
CO_3^{2-}	$UO_2(CO_3)_2(H_2O)_2^{2-}=UO_2^{2+}+2CO_3^{2-}+2H_2O$ $UO_2(CO_3)_3^{4-}=UO_2^{2+}+3CO_3^{2-}$	$2x10^{-15}$ $5x10^{-19}$
PO_4^{3-}	$UO_2(HPO_4)_2^{2-}=UO_2^{2+}+2PO_4^{3-}+2H^+$	$1.8x10^{-18}$
SiO_4^{4-}	$UO_2SiO(OH)_3^+=UO_2^{2+}+H_3SiO_4^-$	?

Rastvorljivost urana u zavisnosti od pH i koncentracije pojedinih anjona u rastvoru razradili su Langmuir (1978) i Romberg (1984). Kompleksi U^{4+} sa fluorom dominiraju u pH intervalu od 3 do 4, dok kompleksi sa OH-grupom pri pH vrednostima većim od 4. Rastvorljivost urana u obliku četvorovalentnog jona kao uraninit je izuzetno mala i iznosi manje od 10^{-13} M (oko 10^{-11} g/dm^3 vode, tj. 10^{-11} g/kg ili 10^{-5} ppb). Prirodna pehblenda, odnosno uraninit, su uvek delom oksidovani i pored UO_2 sadrže male ili nešto veće koncentracije UO_3, tako da se u prirodi nalaze minerali složenog hemijskog sastava koji se može opisati sistemom UO_2-U_3O_8, (uraninit). Ratvorljivost šestovalentnog jona koji je u prirodi uvek prisutan kao uranil jon (UO_2^{2+}) mnogostruko je veća od četvorovalentnog jona,



Slika 4. Relativna zastupljenost pojedinih kompleksa uranl jona u funkciji od pH na 25°C i na pritisku od 1 bar, (Langmuir 1978)

pa tako pri pH 7 koncentracija kompleksnog jona UO_2OH^+ iznosi $7.9x10^{-6}$ M, a rastvorljivost uranil jona iznosi 10^{-8} M. Sa povećanjem kiselosti sredine na pH 4 koncentracija uranil jona se penje na oko 10^{-2} M tj, na oko 5g urana po dm^3 vodenog rastvora.

Uticaj CO_2 iz površinskih voda na uraninit takodje je značajan, jer se uraninit rastvara pod dejstvom CO_3^{2-} anjona. Parcijalni pritisak CO_2 u vazduhu (10 bara) utiče na rastvaranje CO_2 u površinskim vodama, pri čemu se stvara karbonatni anjon (CO_3^{2-}). Ukupnu koncentraciju CO_3^{2-} čini anjon nastao rastvaranjem CO_2 iz vazduha i deo koji nastaje usled rastvaranja karbonata iz zemlje, pa totalna koncentracija CO_3^{2-} odgovara parcijalnom pritisku $CO_2(P_{CO2})$ od 10 bara. Stvaranje karbonatnih kompleksa urana povećava rastvorljivost UO_2^{2+} jona u vodi i do 10.000 puta (Krauskopff, 1967).

Skoro svi minerali koji sadrže uranil jone počinju da se rastvaraju u prisustvu karbonata iznad pH 8,5 (sl.4) pri čemu nastaju $UO2(CO_3)_2^{2-}$, $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ i $(UO_2)_3(OH)_5^+$ kompleksi. Treba naglasiti da porast tempeature utiče na razlaganje ovog kompleksa i na degasifikaciju rastvora (oslobadjanje CO_2) što povlači za sobom smanjenje rastvorljivosti uranil jona u sistemu.

Zakišeljavanje sredine, ispod pH 5, takodje ima za posledicu rastvaranje minerala urana pri čemu nastaju slobodni UO_2^{2+} joni, drugi katjoni i kiseline koje stabilizuju kiseli rastvor (sl.3).

6.2. Fiksacija urana bez promene i sa promenom oksidacionog stanja

Fiksacija urana, tj. taloženje urana iz rastvora se može opisati sa dva osnovna mehanizma: precipitacijom, koja obuhvata i oksidoredukciju, i adsorpcijom.

6.2.1. Precipitacija

Precipitacija se odigrava kada se uranonosni rastvor nađe u sredini u kojoj je proizvod rastvorljivosti uranovih soli manji od onog koji je važio u doba kada je uranonosni rastvor nastao. To se dešava sa promenom fizičkih faktora kao što su pritisak (P) i temperatura (T) ili sa promenom hemijskih faktora: redoks potencijal (Eh), kiselost rastvora (pH) ili promena koncentracija hemijskih komponeti koje utiču na hemisku ravnotežu u rastvoru, odnosno na proizvod rastvorljivosti. Drugim rečima, precipitacija je fizičkohemijski proces u prirodnoj sredini.

6.2.1.1. Uticaj temperature

Promena rastvorljivosti uranovih minerala kao posledica promene temperature toplih rastvora neće biti posebno objašnjavana, jer je suština procesa jednostavna i ne zahteva dodatna ili posebna objašnjenja. Precipitacija urana iz ključalih rastvora ili tokom procesa sekundarnog ključanja vrlo je složen proces koji se tokom genetskih procesa stvaranja uranovih ležišta izuzetno retko dogadja, pa se iz tih razloga ovde neće posebno objašnjavati. U procesu migracije urana kroz površinske delove zemljine kore ovakve pojave nisu moguće.

6.2.1.2. Uticaj pritiska

Uticaj pritiska je manje značajan, ali u slučaju promene parcijalnog pritiska CO u rastvoru, promena rastvorljivosti soli uranil jona znatno se menja. Tako na primer autunit [Ca(UO) (PO) x10H O] nastaje u reakciji:

9) $Ca^{2+} + 2H_3PO_4 + 2UO_2^{2+} + 10\ H_2O = Ca(UO_2)_2(PO_4)_2x10H_2O + 6H^+$

U slučaju da se u rastvoru poveća koncentracija CO_2 dešavaju se sledeće reakcije:

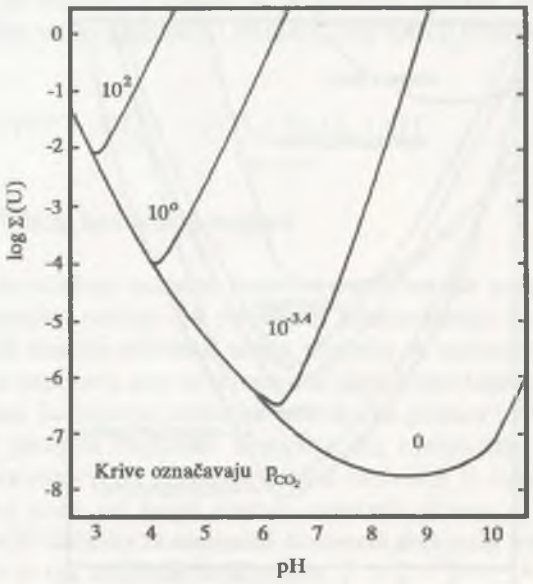
10) $H_2O + CO_2 => H_2CO_3 => H^+ + HCO_3^- => 2H^+ + CO_3^{2-}$

11) $2CO_3^{2-} + UO_2^{2+} + 2H_2O => UO_2(CO_3)(H_2O)_2^{2-}$

Tom prilikom se odvijaju dve kompetitivne reakcije: precipitacija uranil jona u obliku autunita i stvaranje rastvornog karbonatnog kompleksa uranil jona. Što je parcijalni pritisak CO_2 veći, stvaraće se više ugljene kiseline koja će disosovati do karbonatnog jona, on će reagovati sa uranil jonom gradeći kompleksno jedinjenje. Time se smanjuje koncentracija slobodnog uranil jona u rastvoru i ravnoteža izmedju uranil jona i autunita biće poremećena. Zato će se reakcija 9 odvijati u povratnom smeru

sve dok se ne uspostavi nova ravnoteža izmedju autunita, slobodnog uranil jona i rastvornog karbonatnog kompleksa uranol jona. Parcijalni pritisak CO_2, dakle, neposredno utiče na hemijsku ravnotežu.

Hemijski faktori takodje utiču na proces precipitacija uranil jona. Sa promenom pH utiče se na disocijaciju ugljene kiseline, tako da će za različite pH vrednosti koncentracija CO_3^{2-} anjona biti različita, a to znači da će se ravnoteža izmedju autunita, slobodnog uranil jona i rastvornog karbonatnog kompleksa uranil jona menjati baš zato što se reakcija 3 menja usled promene koncentracije CO_3^{2-} u reakciji 10 kao posledice promene pH. Ovo je izvanredno prikazano na sl. 5.

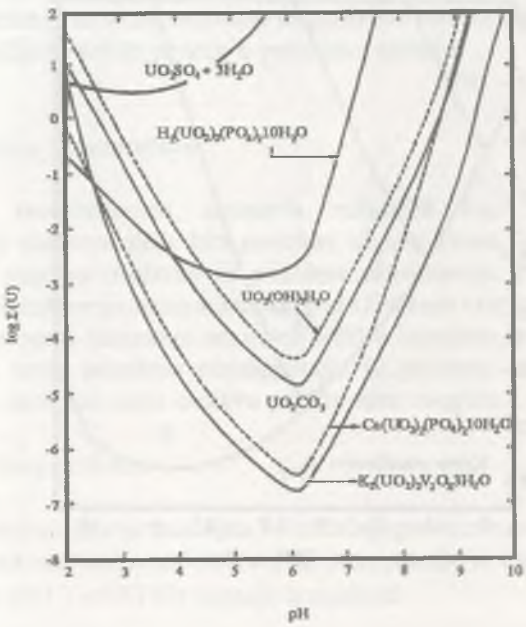


Slika 5. Promena ukupne koncentracije urana (log S U) u vodenom rastvoru koji se nalazi u ravnoteži sa autunitom. (ΣPO = 10 mola, ΣCa = 10 mola). Promena parcijanog pritiska CO_2 označena je brojevima na slici.(Muto et al. 1965).

6.2.1.3. Uticaj promene pH rastvora

Muto i saradnici (1965) su ispitivali ponašanje pojedinih uranovih minerala sa promenom pH rastvora. Tako na primer, ako je koncentracija urana u rastvoru oko 100 μg/dm^3 ($10^{-6.38}$ M) na pH 7 i ako se poveća kiselost rastvora na pH 6 dolazi do precipitacije uranovih soli. Rastvor postaje presićen na pH 6 u odnosu na pH 7 i tom prilikom se talože karnotit i autunit (sl.6). Ako se, medjutim, pH rastvora smanji sa 7 na 6,3 ili 6,4, onda se taloži samo karnotit. Ispitivanja su pokazala da je

najveći broj minerala uranil jona stabilan na pH vrednostima oko 6, tj, tada su ta jedinjenja najmanje rastrvorljiva i u blizini te pH vrednosti se talože. Objašnjenje za tu pojavu nalazi se u sledećim argumentima. Pri nižim pH vrednostima zbog disocijacionih konstanti, na primer fosforne ili vanadijumove kiseline, preovladjuju $H_2PO_4^-$ ili $H_3V_2O_8^-$ anjoni koji ne grade soli sa uranom; tek na pH 6 dominiraju PO_4^{3-} i $V_2O_8^{4-}$ anjoni od kojih nastaju autunit ili karnotit. Pri pH vrednostima višim pH 6 dolazi do precipitacije Ca^{2+}, Mg^{2+}, Pb^{2+} i drugih kao karbonata, pa se ni tada ne stiču svi uslovi da nastanu poznati minerali uranil jona iz grupe autunita, karnotota ili drugi.



Slika 6. Ukupna aktinost urana (log ΣU) u vodenom rastvoru koji je u ravnoteži sa poznatim mineralima urana, a sa promenom pH vrenosti; (K $=10^{-3}$), (Ca $=10^{-3}$), $\Sigma P=10^{-7}$, $\Sigma V=10^{-7}$, $\Sigma SO_4^{2-}=10^{-2}$, P_{CO2} =10 bara. (Muto et al. 1965).

6.2.1.4. Uticaj Redoks potencijala

Proces obaranja urana redukcijom od neprocenjivog je znažaja za prirodu i čoveka jer isključuje uran iz vodenih tokova, a samim tim obustavlja proces širenja kontaminacije ovim radioaktivnim elementom.

Redukcija mobilnog urana (U^{6+}) do nerastvornog urana (U^{4+}) kao što su pehblenda, odnosno uraninit, odvija se onda kada opadne fugasnost kiseonika u rastvoru tako da se ova reakcija odvija na teret oksidacije gvoždja ili sumpora:

12) 5) $UO_2^{2+} + 2Fe^{2+} + 3H_2O = UO_2^0 + 2FeO(OH) + 3H^+$

13) 6) $2Fe^{2+} + 1/2\ O_2 + H_2O = FeO(OH) + H^+$

14) 7) $4UO_2^{2+} + S^{2-} + 4H_2O = 2UO_2^0 + SO_4^2 + 8H^+$

U slučajevima kada je hidrotemalni rastvor obogaćen sa kiseonikom, usled mešanja sa površinskim vodama, doći će do oksidacije dvovalentnog do trovalentnog gvoždja (reakcija 13), ali ako je Fe^{2+} prisutno u višku u odnosu na kiseonik, istrošiće se kiseonik i tada, kao oksidacioni agens, služi uranil jon koji prevodi dvovalentno gvoždje do trovalentnog, ili sulfid do sulfata (reakcije 12 i 14), a sam se pritom taloži kao pehblenda ili uraninit. Poznato je iz geološke prakse da se u prirodi prilikom oksidacije gvoždja može nagraditi i hematit koji sadrži uraninit (reakcija 15; Rich et al. 1977).

15) 8) $UO_2^{2+} + 2Fe^{2+} + 3H_2O = UO_2^0 + Fe_2O_3 + 6H^+$

6.2.1.5. Uticaj hemijskog sastava

Uticaj hemijskog sastava vodenog rastvora na ponašanje urana može se objasniti na nekoliko načina. Sa porastom koncentracije hemijskih komponenti u rastvoru od kojih nastaju minerali urana ubrzava se proces precipitacije, ali se zato taj proces znatno usporava ako se u rastvoru nalaze one komponente koje, na primer, grade kompleksna jedinjenja sa uranil jonom (na primer CO_3^{2-} anjon), i time uranil jon angažuju u procesu nastanka kompleksnih rastvornih jedinjenja ili jona. To smanjuje njegovu efektivnu koncentraciju u rastvoru, tj, smanjuje se koncentracija slobodnog uranil jona od koga nastaju minerali urana. U osnovi, koncentracija značajnih anjona ili katjona za nastanak uranovih minerala izuzetno mnogo zavisi od pH rastvora, što je već detaljno objašnjeno.

Muto i saradnici (1965) su izučavali efikasnost pojedinih dvovalentnih katjona u procesu fiksacije i precipitacije urana u obliku autuńita. Pomenuti autori su ustanovili da se rastvorljivost autunita povećava u zavisnosti od dvovalentnog katjona na sledeći način: Cu < Ba << Pb < Ca = Sr << Mg < Fe. Najnerastvorniji je Cu-autunit, a najrastvorniji Fe-autunit. Sekundarni minerali šestovalentnog urana kao što su autuniti [$Ca(UO_2)_2(PO_4)_2$; $Fe(UO_2)_2(PO_4)_2$; $Na_2(UO_2)_2(PO_4)_2$ i dr.], ili uranofan [$Ca(UO_2)_2(SiO_3OH)_2$] vrlo su raznovrsni i detaljno su ispitani (Soboleva & Pudovkina, 1957).

Ovde je interesantno napomenuti da na stabilnost autunita, tj, rastvorljivost urana u prirodi utiče i prisustvo fosfata. Tipična koncentracija fosfata (PO_4^{3-}) u površinskim vodama iznosi oko 10^{-6} M, tj. 0,1 mg/dm (0,1 ppm) (White et al, 1963), a to su koncentracije oko 10 puta veće od onih koje su dovoljne da se otpočne proces taloženja urana.

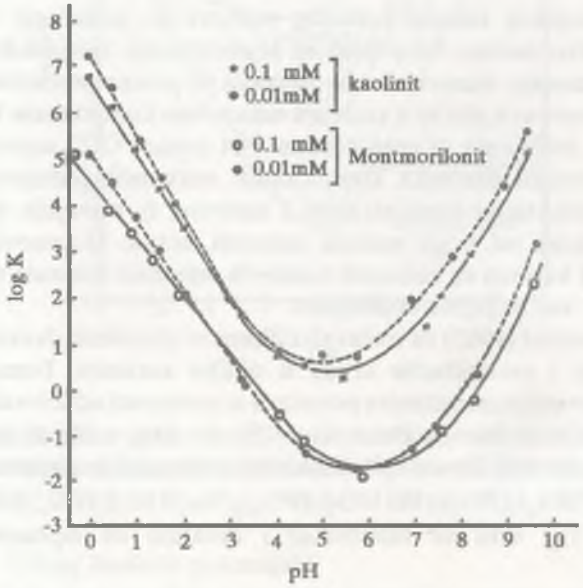
6.2.2. Adsorpcija

Adsorpcija se odvija u prisustvu specifičnih adsorbenata kao što su minerali glina, limonit, karbonatni sedimentni materijal ili organske materije-huminske kiseline ili kaustobioliti sa kojima uranonosni rastvor dolazi u kontakt.

6.2.2.1. Adsorpcija glinama

Muto i sradnici (1965) su ispitivali adsorpciju urana na glinama koje su često prisutne u prirodi: na montmorilonitu [$Na_x(AlMg_{x/2})Si_4O_{10}(OH)_2xnH_2O$], na halojzitu [$Al_4Si_4O_{10}(OH)_4x4H_2O$] i na kaolinu [$Al_4Si_4O_{10}(OH)_4$]. Njihovi rezultati su pokazali da je fiksacija urana najefikasnija u pH intervalu od 6,1 do 6,2, baš kao za slučaj precipitacije (sl.7). Pretpostavlja se da se adsorpcija odvija prema jonoizmenjivačkoj reakciji:

16) 2 H-glina + UO_2OH^+ => UO_2-glina + H^+ + H_2O



Slika 7. Promena ravnotežne konstante za rastvor koji sadrži uran i gline kao jonoizmenjivača sa promenom pH (Muto et al, 1965).

Budući da montmorilonit poseduje veći jonoizmenjivački kapacitet od kaolina, (oko 3 puta), to je sasvim razumljivo zašto se podaci na sl.7 razlikuju. Montmorilonit može da veže oko 10.000 miliekvivalenata urana na gram mase gline, što znači da će kaolin vezati samo trećinu od te količine.

6.2.2.2. Adsorpcija na limonit

Mehanizam adsorpcije uranil jona na limonit je veoma interesantan i delom je objašnjen u poglavlju o uticaju redoks potencijala na uran. Prvo Kajitani (1960, 1961), a zatim Muto i saradnici (1965) nalaze da se uranil jon najefikasnije vezuje za limonit,pri pH 7. U vodenim rastvorima, pri tim pH vrednostima uranil jon gradi komplekse sa karbonatnim jonom [$(UO_2(CO_3)_2^{2-}$]. Takođe pretpostavlja se da je pri tim pH vrednostima koloidni rastvor Fe^{3+} pozitivno nelektrisan, pa zato privlači i vezuje negativne karbonatne komplekse uranil jona i sa sobom ih taloži. Kako pri tim pH vrednostima karbonatni kompleks urana ne može da ima pozitivno nelektrisanje, taloženje sa feri-hidroksidom pri pH 7 je najefikasnije, to pretpostavka o naelektrisanju voluminoznog koloida Fe jona mora da je istinita. S prolaskom vremena talog hidroksida stari i prelazi u limonit.

6.2.2.3. Adsorpcija na organske materije

Poznato je da su huminske kiseline vrlo efikasni adsorbenti mnogih teških i toksičnih metala, pa i urana. Tako je još 1958., Szalay (Szalay, 1958) načinio eksperiment adsorpcije uranil jona na huminske kiseline i pokazao da one mogu da adsorbuju uran već pri pH 2,3, a maksimum adsorpcije je postigao na pH oko 5 do 6 (oko 10.000 miliekvivalenata uarnil jona na 1g mase huminske kiseline).

6.2.2.4. Adsorpcija na karbonatni sedimentni matriks

Karbonatni matriks je definisan kao sedimentni matrijal koji je cementiran karbonatom, a ne kao čist karbonat tipa dolomita ili krečnjaka. Ispitivanja su pokazala da se adsorpcija urana u prirodi na karbonatni matriks u osnovi svodi na reakciju uranovih jona sa glinama ili huminskim kiselinama koje su u sedimentima cementirane karbonatom. Procesi reakcije uranovih jona sa glinama i huminskim kiselinama već su obradjivani, pa se ovde neće davati nikakva dodatna objašnjenja.

Nastanak mineralizacije urana u peščarima je tesno povezan sa procesom fiksacije. Tom prilikom najčešće nastaju pehblenda i minerali iz grupe autunita. Oblik runih tela (izdužena sočiva), između ostalog, može da predstavlja i posledicu visokih koncentracija zemnoalkalnih metala(Ca^{2+}) u sedimentima. Oni u zajednici sa drugim faktorima utiču na komplekse urana sa fosfatnim anjonom da se istalože u vidu autunita.

7. UTICAJ VODE NA URANOVU RUDU I HALDE SIROMAŠNE I SAMLEVENE RUDE

Sama činjenica da se uran iz rude dobija hidrometalurškim postupkom, tj. iz samlevene rude izlučivanje urana se vrši običnom vodom ili slabo alkalnim rastvorima Na_2CO_3, nedvosmisleno govori u prilog konstataciji da se uran vrlo lako izlužuje ne samo iz rude i to u obliku rastvornog UO_2^{2+} jona. Iz prethodnog poglavlja se vidi da se uranil jon teško može fiksirati (zaustaviti i istaložiti) već se u prirodi neobično brzo i lako transportuje kao UO_2^{2+} jon ili kao kompleksni jon. Vodenim tokovima izluženi uran gravitira ka sedimentnim basenima. Na tom putu može da se zaustavi samo u poroznom sedimentnom materijalu koji sadrži dosta gline, ali ne u neograničenim količinama.

7.1. Zagađivanje okoline - kontaminacija uranom

Izuzetno dobar primer koji ilustruje proces kontaminacije prirode uranom su napušteni rudnici urana na Staroj Planini (Gržetić & Jelenković, 1994).

Od momenta otvaranja rudnika urana na Staroj Planini započeo je proces zagadjivanja životne sredine - ugrožavanje prirode i čoveka koji još uvek traje. Osnovni faktori koji su omogućili ove procese su priliv blago kisele vode, kao posledice rastvorenog ugljen-dioksida u vodi, i oksidacionih osobina ove vode, usled rastvorenog kiseonika, što je imalo za posledicu oksidaciju i rastvaranje nerastvornog četvorovalentnog urana do šestovalentnog uranil jona. Na osnovu ranije iznetih podataka sasvim je jasno da uran ima takve fizičkohemijske i geohemijske osobine da se u obliku uranil jona lako rastvara, lako transportuje vodom i teško fiksira - obara ili taloži kao šestovalentan jon. Kako na površini zemlje, svuda gde ime kiseonika, ne postoje redukcione sredine to je nemoguće očekivati da će se uran istaloži tokom procesa reducije, jer se za takve procese nisu stekli uslovi u regionu granitoida Stare Planine. Proces fiksacije urana treba očekivati u regionima rečnih slivova bogatih sedimentima, prvenstveno glinama, koje mogu u ne tako velikim dubinama da obezbede redukcione uslove usled raspadanja organskih materija koje su se zatekle u sedimentnom i glinovitom matriksu. Pored toga jonoizmenjivačke karakteristike glina takodje pomažu da se nivo koncentracija urana u vodama smanji. Geomorfološke i hidrogeološke karakteristike tamošnjeg terena imaju za posledicu da sve površinske i podzemne vode gravitiraju Trgoviškom Timoku pri čemu sa sobom nose rastvoreni uran i njegove fisione produkte. Srećom oko Trgoviškog Tomoka se nalaze dovoljne količine sedimentovanog materijala, mada koncentracija urana i fisionih produkata urana još nije odredjivana u sedimentima iz neposredne blizine vodenih tokova regiona Stare Planine.

Sadržaj urana u površinskim vodama u svetu obradili su Rogers and Adams, (1970), koji ukazuju da se koncentracije urana nalaze na ppb nivou i kreću se od 0,1 ppb (mg/kg vode) u rečnim vodama i potocima do nekoliko desetina ppb-a.

Fix (1956) konstatuje da je koncentracija urana u američkim brzim rekama i potocima oko 0,1 ppb, ali da se sadržaj urana penje na vredosti od 1 do 10 ppb u površinskim vodama, odnosno na vrednosti od 1 do 120 ppb u podzemnim vodama, u onim oblastima u kojima je uran detektovan u granicama iznad uobičajenih vrednosti.

Sadržaj urana u rudničkim vodama može da dostigne vrednosti od 15 do 400 ppb (Fix, 1956), a mestimično i desetostruko više. Vrlo veraovatno da se ova koncentracija urana dostiže samo u rudničkim vodama napuštenih rudnika Stare Planine koje su lokalno akumuliraju.

8. ZAKLJUČAK

Izučavanje prirodne radioaktivnosti obuhvata široki niz naučih disciplina od fundamentalne nauke koja objašnjava fenomenologiju radioaktivnog raspada, zatim merenja aktivnosti radioaktivnih elemenata, potom grupe geoloških disciplina kao što su geohemija, prospekcija i kartiranje, i konačno, fizičke hemije koja objašnjava mobilizaciju i širenje radionuklida u prirodi. Upotreba prirodnih radionuklida i njihovih produkata pre svega se sagledava u proizvodnji energije, primeni u savremenim tehnologijama, potom u naučnim disciplinama za određivanje starosti - geohronologiji, u biomedicinskim naukama i za nuklearno oružje. U bilo kom slučaju, u korisne svrhe ili protiv prirode i čoveka, ova problematika ne sme, i objektivno ne može biti, predmet jednog čoveka ili grupe ljudi koji su jednostrano obrazovani, već je stvar multidisciplinarnog tima koji se sastoji od ljudi koji su osvedočeni eksperti, svako u svojoj oblast. Tada primena i posledice primene radinuklida kao i zaštita od njih ima punog smisla, garantuje ispravne postupke i očekivani uspeh.

9. LITERATURA

Antonović A., 1973: Geološki odnosi u jednom delu Stare Planine (Janja,Balta Berilovac, Ilovo), Radovi Geoinstituta, 8, 1-12, Beograd

Antonović A., 1977: Neki aspekti geologije, petrologije i rudonosnosti vulkanita Jugoslavije.- Rad. Geoinstituta, 11, 1-24, Beograd

Antonović A., 1985: Sintetski elaborat o dosadašnjim istraživanjima na području Cera i Iverka; FSND Geoinstituta, br. 2757

Ahrens L. H. 1965: Distribution of elements in our planet, McGraw Hill, N.Y. 110pp.

Bohr N and Wheeler J. A., 1939: The mechanism of nuclear fission, Phys.Rev, Vol.56. 426-450.

Brownlow A. H.,1978: Gochemistry, Prentice Hall, N.Y. 498pp.

Cukućan M., 1984/85: Regionalna istraživanja urana u SR Srbiji; FSND Geoinstituta Beograd, br 2735 i 2896

Đurić G. i Popović D., 1994: Radioaktivni zagadjivači biljaka, (1994), Ecologica, Vol.1, br.2, 19-23.

Faure G., 1977: Principles of isotope geology, Wiley and Sons, N.Y, 464pp.

Fergusson J. E., 1982: Inorganic chemistry and the Earth, Pergamon Pres, N.Y, 400pp.

Fix P.G., 1956: Hidrochemical exploration for uranium, U.S.Geol.Sur. Prof.Paper, No.300, 667-671.

Filipović V., 1980: Rudna ležišta i mineralizacije urana kao preduslovi za stvaranje ležišta urana.- Izučavanje geologije nuklearnih sirovina SR Srbije, FSND Geoinstituta, Beograd

Friedlander G., Kennedy J. W. and Miller J. M., 1964: Nuclear and radiochemistry, John Wiley, N.Y., 585pp.

Gržetić I., 1988: Poreklo gvoždja na Zemlji, Hemijski pregled, Vol.29, 19-24.

Gržetić I., 1990a: Radioaktivni izotopi kao geološki časovnici, Hemijski pregled, Vol.31, 55-63.

Gržetić I., 1990b: Stabilni izotopi kao geotermometri, Hemijski pregled, Vol.31, 90-97.

Gržetić I., 1992: Geologija u službi zaštite životne sredine, Hemijski pregled, Vol.33, 38-46.

Gržetić I. i Jelenković R., 1994: Uranska mineralizacija Stare Planine (Kalna) i procesi kontaminacije, Ecologica , Vol.1, br.3, 23-34.

Holden N E and Walker F W, (1972), Chart of nucleids, (11th ed.) Educational Relations, General Electric Co., Schenectady, N.Y. 12345.

Janković S., 1965: Ležišta urana u Jugoslaviji.- DIT, RGM, 5, 877-885, Beograd

Janković S., 1990: Rudna ležišta Srbije: regionalni geotektonski položaj, sredine stvaranja i tipovi ležišta, RGF, 760 str.

Janković S. i dr., 1990: Studija: Kriterijumi metalogenetske i geološko-ekonomske ocene pojedinih etapa osvajanja ležišta urana u Srbiji; Rudarsko-geološki fakultet Beograd i Geoinstitut - Beograd, 750 str.

Jelenković R., 1991: Mineralizacija urana Šumadije: genetski i morfostrukturni tipovi; Katedra Ekonomske geologije, pos.izd. 2, RGF, Beograd, 187 str.

Kajitani K., 1960: Enrichment of Uranium from Dilute Solutions (I), Adsorption by Ferric Oxide Precipitate (1), Rept. Govern. Ind. Res. Inst. Nagoya, Vol.9. 338-340.

Kajitani K., 1960: Enrichment of Uranium from Dilute Solutions (III), Adsorption by Ferric Oxide Precipitate (2), Rept. Govern. Ind. Res. Inst. Nagoya, Vol.10. 441-463.

Klajn Dj., 1978: Mogućnost nalaska i metodologija otkrivanja skrivenih ležišta urana u rejonu Gornjeg Milanovca.- Zb. rad. IX Kongr.geol.Jugosl., 666-671

Klajn Dj., 1980: Hidrotermalna mineralizacija Mandre i njena moguća veza sa skrivenim stratiformnim ležištem urana.- Rad. Geoinstituta, 14, 31-43, Beograd

Krauskopff K.B, 1967: Inrtoduction to Geochemistry, McGraw Hull, New York, pp 667.

Langmuir D., 1978: Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposites, Gechem. Cosmoche.Acta, Vol.42, 547-569.

Lederer C. M., Hollander J. M. and Perlman I., 1967: Table of Isotops, (6th ed.), John Wiley, N.Y., 531pp.

Manaham S. E., Environmental Chemistry, 5th ed, Lewis Publishers,Chelsey, USA. 583pp.

Muto T., Hirono S. and Kurata H., 1965: Some aspects of fixation of uranium from natural waters, Min.Geol, Tokio, Vol.15(74), 287-298, and in: Nuclear Scienece of Japan - Translataions (1968), No.91 - Chemistry.

Rich R.A., Holland H.D. and Peterson U., 1977: Hydrothermal uranium deposites, In: Developments in Ecconomic Geology, Vol.6, Elsevier, Amsterdam.

Ristić M., Sikošek B.1984: Metalogenija urana stenskih masa Jugoslavije.- Zb.sav.: rezultati dosadašnjih i pravci daljih istraživanja nuklearnih mineralnih sirovina, Beograd, str. 299-322

Rogers J.J.W. and Adams J.A.S., 1970: Uranium, In: Handbook of Geochemistry, II-2, Chapter 92B-0.

Romberg S.B., 1984: Transport and deposition of uranium in hydrothermal systems at temperatures up to 300 C: geological implications, In B.DeVido et al. (eds): Uranium geochemistry, mineralogy, geology, exploration and resorses, The Institution of Mining and Mettalurgy, London, 12-17.

Uranium geochemistry, mineralogy, geology, exploration and resorses, The Institution of Mining and Mettalurgy, London, 12-17.

Soboleva M. B. i Pudovkina A., 1957: Minerali Urana, Gosudarstvennoe haučno-tehničeskoe izdatelstvo literaturi geologii i ohrane nedr, Moskva, 408pp.

Szalay A., 1958: The significance of humus in the geochemical enrichment of uranium, Proc. II Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, Vol.2, 182-186.

Turekian K.K. and Wedepohl K.H., 1961: Distribution of the elements in some major units of the Earthžs crust, Geol.Soc.Am.Bull. Vol.72, 175-196.

Višić S., 1971: Uranonosna područja šumadije.- Rad. Geoinstituta, knj. 7., 35-52, Beograd

Weast R C (ed.), 1988: Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press, Boca Raton, Florida.

White D. E., Hem J. D. and Waring G. A., 1963: Chemical composition of sub-surface waters, Data of Geochemistry, 6td ed, U S Geol.Surv. Prof.Paper No.440-F.

PRIRODNI RADIOAKTIVNI ELEMENTI, GEOLOŠKO POREKLO I OBLICI POJAVLJIVANJA I MIGRACIJE

Ivan A Gržetić i Rade J Jelenković

Rezime

Ovaj rad ima sveobuhvatan pristup problemu prirodne radioktivnosti. Posebno se objašnjava ponašanje prirodnih radionuklida u geološkim sredinama, njihove kristalohemijske i geohemijske karakteristike i puteve njihovog oslobadjanja iz različitih stena i minerala tokom alteracionih procesa. Izuzetna pažnja je posvećena uranom obogaćenim granitnim, vulkanogenim, sedimentnim i metamorfnim geološkom kompleksima. Ujedno su i nabraojane lokacije i predeli u Srbiji, koji imaju povišen sadržaj urana i njemu bliskih radionuklida. Na kraju se opširno diskutuju procesi fiksacije urana, sa ili bez promene oksidacionog stanja, tokom procesa precipitacije ili adsorpcije, kao i neki od procesa zagadjivanja životne sredine ovim metalom.

Ključne reči: prirodna radioaktivnost; geologija urana;migracija urana u prirodnim sredinama

NATURAL RADIOACTIVE ELEMENTS, THEIR GEOLOGICAL ORIGIN, WAY OF APPEARANCE AND MIGRATION

Ivan A Gržetić and Rade J Jelenković

Abstract

This paper has a comprehensive approach to the problem of natural radioactivity. It explains the behavior of natural radionuclides in geological environments, their crystallochemical and geochemical characteristics and the paths of their liberation from various rocks and minerals during alteration processes. Special attention was dedicated to the uranium enriched granitoide, vulcanogeneous, metamorphous and sediment geological complexes. The list of more important locations and areas in Serbia, enriched with uranium and accompanying radionuclides, is given as well. At the end, the processes of uranium fiksation, with or without change of its oxidation state, during the process of precipitation or adsorption, with explanation of some environmental contamination processes, were discussed in details.

Key words: natural radioactivity;geology of uranium;migration of uranium in natural environments.

2.

GEOHEMIJSKI PROCESI U PRIRODI I RADIONUKLIDI

Adam Dangić
Rudarsko-geološki fakultet, Univerzitet u Beogradu,
Djušina 7, 11000, Beograd

1. UVOD

Jonizujuće zračenje predstavlja jedan od najopasnijih zdravstvenih rizika u životnoj sredini. Radioaktivni zraci razaraju žive ćelije te radioaktivni elementi i izotopi čak i u malim količinama mogu da izazovu zdravstvene probleme kod stanovništva, životinja i živog sveta uopšte. U savremenoj životnoj sredini su zastupljeni radionuklidi prirodnog i antropogenog (proizvedenog) porekla [1-8].

Životna sredina predstavlja samo deo prirodnih geohemijskih sredina odnosno spoljnih geosfera u kojima se kroz geohemijske procese neprekidno odvija ciklično kretanje hemijskih elemenata i izotopa. U prirodnim sredinama koje predstavljaju i životnu sredinu zastupljeni su različiti radionuklidi prirodnog porekla uglavnom u veoma niskim sadržajima. Ipak, u zavisnosti od geohemijskih ciklusa odgovarajućih elemenata ovi radionuklidi lokalno mogu da se koncentrišu u nekom delu životne sredine do nivoa koji predstavljaju rizik za zdravlje stanovništva i živog sveta. S druge strane, razvoj nuklearnih tehnologija u poslednjih nekoliko decenija doveli su do obrazovanja brojnih antropogenih (proizvedenih) radionuklida od kojih neki različitim procesima (nuklearne eksplozije, incidenti u atomskim centralama i dr.) dospevaju u životnu sredinu. Ulaskom u životnu sredinu i ovi radionuklidi se uključuju u geohemijske cikluse odgovarajućih hemijskih elementa. Posebno opasne zdravstvene rizike u životnoj sredini predstavljaju deponije radioaktivnog otpada. Radionuklidi

iz ovih deponija ako ulaze u prirodne sisteme podvrgavaju se takođe geohemijskoj sudbini odgovarajućih hemijskih elemenata.

Pojavljivanje brojnih radionuklida u prirodi i mogućnosti da se lokalno koncentrišu do nivoa opasnih za zdravlje stanovništva i živog sveta uopšte nameću potrebu odgovarajućih sistematskih istraživanja u cilju zaštite stanovništva i živog sveta od jonizujućeg zračenja. Postavljeni cilj može uspešno da se reši samo kroz sveobuhvatna istraživanja koja treba da omoguće identifikaciju radionuklida, njihovih izvora, porekla, načina pojavljivanja, procesa geohemijske migracije (rasejavanja i koncentrisanja) u životnoj sredini, kao i efekata njihovog zračenja na živu materiju. Na osnovu toga bilo bi moguće i postavljanje monitoringa radionuklida u životnoj sredini.

2. JONIZUJUĆE ZRAČENJE I RADIONUKLIDI U ŽIVOTNOJ SREDINI: IZVORI, POREKLO I DELOVANJE NA STANOVNIŠTVO

U životnoj sredini zastupljena su jonizujuća zračenja različitog porekla i karakteristika. Generalno uzev, jonizujuća zračenja mogu da se svrstaju prema mestu generisanja u dve velike grupe:

- zračenja zemaljskog porekla, i
- zračenja kosmičkog porekla.

S druge strane, izvori jonizacionih zračenja mogu da se svrstaju prema svojoj genezi i pojavljivanju u životnoj sredini na sledeće grupe:

I. Prirodni izvori
   - prirodni zemaljski radionuklidi
   - kosmogeni radionuklidi
   - kosmičko zračenje

II. Antropogeni izvori
   - radioaktivne padavine
   - medicinski
   - tehnogeni

III. Radioaktivni otpad

Zračenja svih grupa deluju na stanovništvo na dva načina: spolja ili eksterno (zračenje na organizam) i iznutra ili interno (zračenje u organizmu).

2.1 Kosmičko zračenje

Jonizujuće zračenja koje dospevaju na Zemlju iz dubine kosmičkog prostora i sa Sunca su velikih energija (0,01-10 GeV). Ovi zraci deluju na životnu sredinu dvojako: direktno i indirektno, izazivajući sekundarno zračenje i obrazovanje kosmogenih radionuklida [1, 3, 5, 6].

Fluks kosmičkog zračenja koji dopire na površinu Zemlje ravnomerno se menja sa promenom geografske širine i nadmorske visine - raste od ekvatora ka polovima kao i sa povećanjem nadmorske visine. Kako se kosmičko zračenje na površini Zemlje odlikuje uglavnom uniformnom raspodelom i relativno malim intenzitetima, njegov udeo u ukupnom ozračavanju stanovništva je manje značajan u odnosu na druge izvore.

2.1.1 Kosmogeni radionuklidi

U interakcijama kosmičkog zračenja sa zemaljskim česticama u atmosferi i/ili na površini Zemlje kroz odgovarajuće nuklearne reakcije, kao napr.

$$^{14}_{7}N + n + {}^{9}H + {}^{12}_{6}C \qquad (1)$$

i sl. obrazuju su u malim količinama različiti radionuklidi:^{3}H, ^{7}Be, ^{10}Be, ^{14}C, ^{26}Al, ^{32}Si, ^{36}Cl, ^{39}Ar, ^{53}Mn, ^{59}Ni, ^{81}Kr, sa vremenima poluraspada u opsegu 10^2 -10^6 godina.

Ovi radionuklidi se uključuju u geohemijske cikluse odgovarajućih elemenata pridružujući se njihovim prirodnim izotopima i sledeći njihovu geohemijsku sudbinu. Shodno tome, Kr-81 pretežno ostaje u atmosferi, Be-10 pretežno ulazi u litosferu, H-3 i C-14 ulaze u sve prirodne sredine - atmosferu, hidrosferu, litosferu i biosferu, itd. Međutim, zbog svojih malih i apsolutnih i relativnih izotopskih zastupljenosti, ovi radionuklidi kroz geohemijske procese ne postižu značajnije koncentracije ni u jednom delu geohemijskog ciklusa datih elemenata. Ipak, geohemija neki od njih je dobro proučena jer se široko koriste za izotopsku geohronologiju najmlađih geoloških i/ili arheoloških događaja i objekata (tritijum, radioberilium, radiokarbon...).

Kosmogeni radionuklidi zbog svojih malih koncentracija, relativno kratkih vremena poluraspada i niskih intenziteta zračenja imaju mali značaj u ukupnom ozračavanju stanovništva.

2.2 Prirodni zemaljski (primarni) radionuklidi

Prirodni zemaljski radionuklidi su najčešći i najznačajniji izvori jonizujućeg zračenja u životnoj sredini, kako u pogledu ukupnog ozračavanja stanovništva tako i u pogledu lokalnih visokih doza zračenja. Predstavljeni su većim brojem radioakoaktivnih izotopa različitih elemenata čije je vreme poluraspada (10^5 -10^{16}) dovoljno dugo u odnosu na starost Zemlje (4,6x10^9 godina):^{40}K, ^{50}V, ^{87}Rb, ^{115}In, ^{129}Te, ^{138}La, ^{142}Ce, ^{144}Nd, ^{147}Sm, ^{152}Gd, ^{176}Lu, ^{174}Hf, ^{187}Re, ^{190}Pt, zatim ^{232}Th, ^{234}U, ^{235}U i ^{238}U i članovi njihovih serija radioaktivnog raspada (čitav niz radioaktivnih potomaka različitih vremena poluraspada). Ovi radionuklidi se značajno međusobno razlikuju kako po svojim fizičkim tako i po geohemijskim osobinama. Zastupljene su razlike u vremenima poluraspada i tipovima radioaktivnog raspada (α,β i γ-emiteri), intenzitetima zračenja, apsolutnoj obilnosti u litosferi (i drugim geosferama), relativnoj izotopskoj obilnosti, načinu pojavljivanja, migraciji i geohemijskim ciklusima, i sl., što je delom ilustrovano na tabelama 1 i 2. U zavisnosti od ovih osobenosti, radionuklidi se međusobno značajno razlikuju i u pogledu potencijalnih rizika za zdravlje odnosno ozračavanje stanovništva. Geohemijski procesi mogu da regionalno ili lokalno značajno koncentrišu neke od ovih radionuklida, dovodeći čak i do obrazovanja njihovih mineralizacija i/ili rudnih ležišta, kao napr. u slučaju U i Th. S druge strane, većina radionuklida ostaje, zahvaljući specifičnim geohemijskim karakteristikama odgovarajućeg elementa, uglavnom rasejana u litosferi, kao napr. Rb. Značajne razlike u geohemiji ovih elemenata se pojavljuju ne samo u litosferi već i u drugim sredinama -hidrosferi, atmosferi i biosferi [1, 3, 4, 9, 10].

Izvori kontaminacije životne sredine prirodnim (zemaljskim radionuklidima mogu da budu prirodni ili geološko-geohemijski sistemi (rude, stene, podzemne vode, i sl.) i antropogeni (postrojenja za obogaćenje rude, metalurgija, deponije jalovine i sl.).

Najobilniji prirodni radionuklid u litosferi (Zemljinoj kori) je Rb-87, a slede ga po obilnosti Th-232, K-40 i U-238 (Tabela 2). Međutim, najveće rizike za zdravlje ljudi predstavljaju U-238, i njegovi potomci Ra-226 i Rn-222, sa poluživotima 1600 godina i 3,824 dana, respektivno.

Tabela 1. Neki prirodni primarni zemaljski radionuklidi

Radionuklid	Tip dezintegracije	Vremepoluras-pada (god.)	Izotopska obilnost (%)	Stabilni produkt
^{40}K	β, EC[2]	$1.27x10^{9}$	0.018	^{40}Ca, ^{40}Ar
^{50}V	β, EC	$6x10^{15}$	0.24	^{50}Cr, ^{50}Ti
^{97}Rb	β, EC	$4.89x10^{10}$	27.85	^{87}Sr
^{115}In		$5x10^{14}$	95.72	^{115}Sn
^{142}Ce	α	$5x10^{16}$	11.07	^{198}Ba
^{292}Th	serija	$1.39x10^{10}$	100	^{208}Pb
^{294}U	serija	$2.44x10^{5}$	0.0055	^{206}Pb
^{295}U	serija	$7.04x10^{8}$	0.72	^{207}Pb
^{298}U	serija	$4.47x10^{9}$	99.28	^{206}Pb

[1] - Prema [4, 1].
[2] - EC= elektronski zahvat.

Tabela 2. Obilnost važnijih radionuklida u litosferi.

Radionuklid	Izotopska obilnost	Obilnost u litosferi(μg/g)	
		element	radionuklid
^{40}K	0.018 K	$2.82x10^{4}$	5.1
^{87}Rb	27.85 Rb	90	25.1
^{292}Th	100 Th	11	11
^{294}U	0.006 U	3.5	$2x10^{-4}$
^{295}U	0.72 U	3.5	$3x10^{-2}$
^{298}U	99.274 U	3.5	3.5

3. GEOHEMIJSKI PROCESI RADIONUKLIDA U ŽIVOTNOJ SREDINI

3.1. Geohemijski procesi i životna sredina

Hemijski elementi u prirodi učestvuju u neprekidnom cikličnom (kružnom) kretanju materije kroz litosferu i spoljne geosfere, hidrosferu, atmosferu i biosferu, ostvarujući svoje geohemijske cikluse. Ciklično kretanje materije se odvija zahvaljujući geohemijskim procesima, koji u različitim delovima ciklusa koncentrišu ili rasejavaju hemijske elemente.

Životna sredina predstavlja samo mali deo prirodnih geohemijskih sredina, zapravo proteže se kroz granične delove geosfera na/oko površine zemlje. Stoga se i kroz delove životne sredine: tle (stene i rude na površini zemlje, zemljišta), vodu, vazduh i vegetaciju protežu odgovarajući delovi geohemijskih ciklusa elemenata. Geohemijskim procesima, radionuklidi se koncentrišu i rasejavaju u različitim delovima životne sredine, u zavisnosti od svojih geohemijskih osobenosti. Dakle, mogućnost koncentrisanja radionuklida u prirodi predstavlja rizik za stanovništvo i zavisi od prisustva radionuklida i od geohemijskih procesa u datoj geohemijskoj sredini.

3.2. Geohemijski procesi prirodnih radionuklida

Pojavljivanje i raspodela radionuklida u prirodi i životnoj sredini zavise, kako je već istaknuto, ne samo od njihove obilnosti u litosferi već, čak i u većoj meri, od njegovih geohemijskih osobenosti. Ove osobenosti radionuklida bitno utiču na geohemijske cikluse elementa, odnosno na njegove koncentracije i migracije u pojedinim delovima životne sredine kroz geohemijske procese. Pritom, mogu da budu zastupljene značajne razlike u ponašanju radionuklida u primarnim i sekundarnim geohemijskim sredinama.

3.3. Primarne geohemijske sredine

U primarnim geohemijskim sredinama, koje bitno karakterišu magmatogeni i metamorfogeni procesi, obrazuju se različiti tipovi magmatskih i metamorfnih stena, ruda i duboke podzemne vode u čiji sastav mogu da uđu i radionuklidi. Ove stene, rude i vode kada dospeju blizu ili na površinu zemlje predstavljaju potencijalne izvore zagadjenja životne sredine radionuklidima.

U magmatskim stenama sadržaji i raspodela radionuklida su vezani za geohemijske faktore koji regulišu ponašanje elemenata tokom kristalizacije i diferencijacije magme, pre svega geohemijski karakter elemenata i radujuse njihovih jona. Tako sadržaj nuklida K-40, prati geohemiju kalijuma, koji je jedan od glavnih elemenata magme. Sadržaj kalijuma je izrazito nizak u ultrabazičnim stenama (duniti,harcburgiti) (srednje 0.03 %), viši je u bazičnim stenama (gabro, dijabaz), znatno viši u intermedijarnim stenama (pojavljuju se značajnije minerali kalijuma) i najviši u kiselim stenama (graniti, rioliti) (srednje 3.34 %), u kojima su K-minerali (liskuni, K-feldspat) glavni petrogeni minerali (Tabela 3). Sadržaji Rb-87 pokazuju isti trend raspodele, pošto Rb kao mikroelement zbog svog velikog radijusa jona

(0.147 nm po Ahrens-u) može da zamenjuje od glavnih elemenata samo kalijum u rešetci petrogenih minerala. Stoga, prosečni sadržaji rubidijuma rastu od 2 mg/kg u ultrabazičnim do 200 mg/kg u kiselim stenama.

Tabela 3. Srednji sadržaji radionuklida u magmatskim stenama[1]

Elemenat Radionuklid	Tip stene			
	ultrabazične	bazične	prelazne	kisele
K (%)[2]	0.03	0.83	2.3	3.34
Rb (mg/kg)[2]	2	45	100	200
La (mg/kg)[2]	-[3]	0.27	-	0.6
Th (mg/kg)[2]	0.007	3	7	18
U (mg/kg)	0.003	0.5	1.8	3.5

[1]- Prema [10]

[2]- Relativne obilnosti:
K-40=0.018 % K; Rb-87=27.85 % Rb; La-138= 0.089 % La.

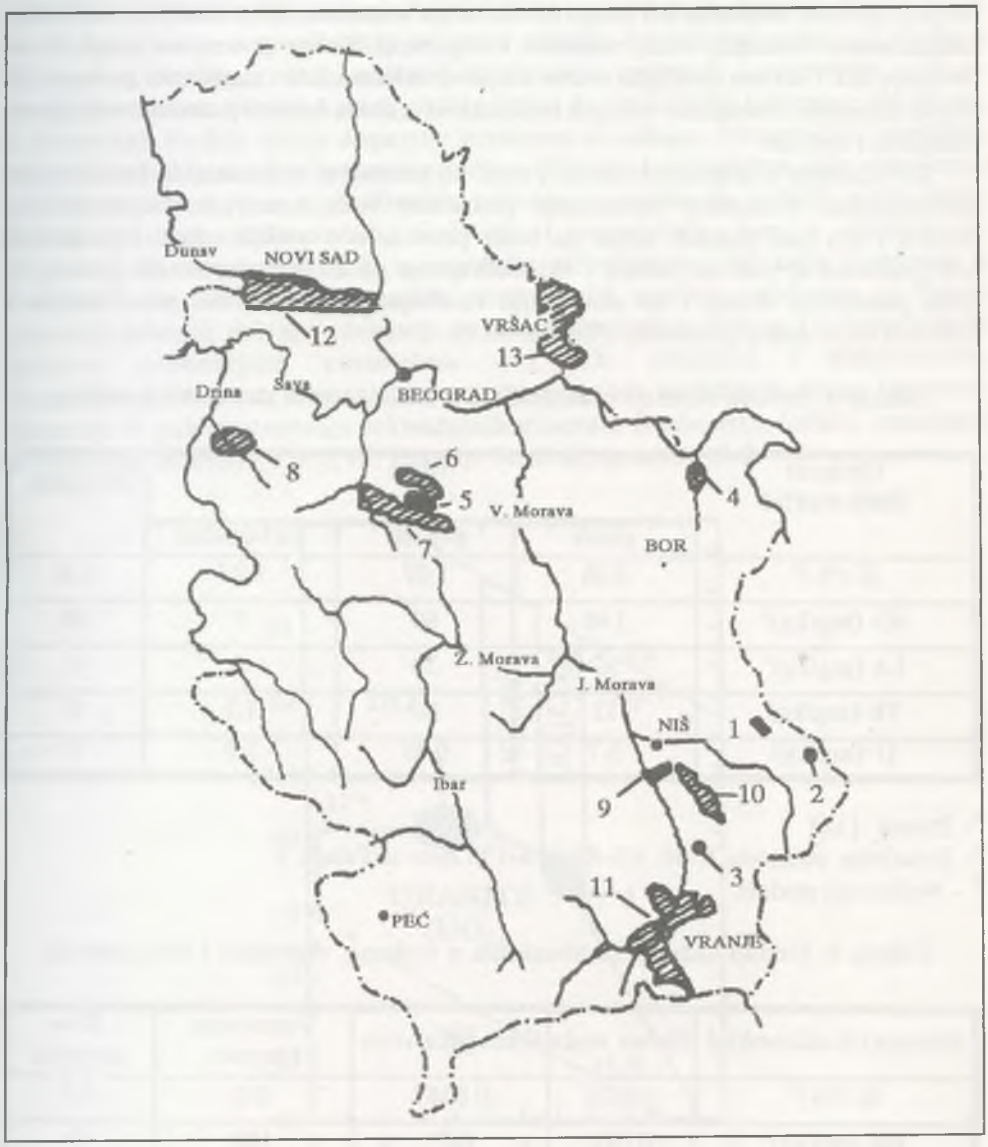
[3] - Nedostaju podaci

Slične trendove pojavljivanja u magmatskim stenama kao kalijum i rubidijum pokazuju i drugi značajni radionuklidi U i Th ali i manje zastupljeni La-138 (Tabela 3). I oni su kao Rb mikroelementi u magmi ali je njihov ulazak u stene drugačiji: kao joni velikih i naelektrisanja i radijusa (po Ahrens-u La 0.114 nm, Th 1.02 nm, U 0.97 nm) ne mogu da zamenjuju glavne elemente u glavnim mineralima stena i značajnije se koncentrišu u nekim akcesornim mineralima (cirkon, monacit, apatit) ili su vezani za vanstrukturne pozicije. Delom torijum i naročito uran prelaze i u hidrotermalne rastvore i mogu da obrazuju ili sopstvena rudna ležišta (žice, impregnacije i sl.) ili da se u manjoj meri koncentrišu i u ležištima drugih metala (Pb-Zn, i dr.). Hidrotermalne rudne koncentracije se pojavljuju u i oko granitoidnih masa. U ovim stenama i rudama obično se U i Th nalaze u ravnoteži sa svojim potomcima radijumom i radonom (izuzev u geološki jako mladim tvorevinama).

Zahvaljujući ovakvim geohemijskim trendovima, glavne primarne izvore K-40, U i Th predstavljaju granitoidne stene i orudnjenja uranijuma u i oko masiva ovih stena. U stenama oko hidrotermalnih ruda i mineralizacija uopšte (različitiih sastava) obrazuju se zone hidrotermalne alteracije u kojima su često povišeni sadržaji kalijuma (K-metasomatoza), a oko ležišta uranijuma i oreoli rasejavanja uranijuma i torijuma - ove zone i oreoli se koriste u geohemijskom proučavanju i prospekciji hidrotermalnih ležišta [11, 12, 13].

U Srbiji su na više lokaliteta, u i oko nekih granitskih i granit-gnajsgranitskih masa, otkrivena hidrotermalna rudna ležišta i mineralizacije uranijuma, Na Sl. 1 prikazani su važniji lokaliteti: području Stare Planine - Kalna, Mezdpeja, Gabrovnica, Aldina reka (oznaka 1 na Sl. 1), na planini Kukavici - Slatinska reka (3), na planini Bukulji -Paun stena i Cigankulja (5). Kao glavni rudni mineral uranijuma pojavljuje se uraninit (pehblenda) (UO_2), na nekim lokalitetima zastupljen je i torijalit (Aldina reka), redovni pratioci su pirit i pirit-markasit, a mogu da se pojavljuju i drugi sulfidi;

sadržaji urana mogu da budu značajno visoki - naprimer u Slatinskoj reci variraju u opsegu 100- 3160 g/t [14].



Sl. 1. Rudna ležišta, mineralizacije i oreoli geohemijske disperzije u Srbiji (detaljnije u tekstu). 1- Kalna, 2- Dojkince, 3- Slatinska Reka, 4- Plavna, 5- Bukulja, 6- Aranđelovački basen, 7- Belanovački basen, 8- Iverak, 9- Barbeški basen, 10-Zaplanjski basen, 11- Vranjski basen, 12- Fruška Gora, 13- Vršačka Brda

3.4. Sekundarne geohemijske sredine

U sekundarnim geohemijskim sredinama, koje bitno karakterišu procesi površinskog raspadanja stena i ruda, transporta i sedimentacije komponenti kao i biogeni procesi, radionuklidi mogu da obrazuju koncentracije u zemljištu, različitim sedimentnim stenama, vodi, vazduhu i vegetaciji. Ovim procesima mogu da se obrazuju čak i veoma značajna rudna ležišta uranijuma kao i raznovrsni geohemijski oreoli disperzije uranijuma i drugih radionuklida, među kojim i potomaka uranijuma radijuma i radona.

Površinskim raspadanjem stena i ruda sa sadržajem radionuklida kao i drugim geohemijskim procesima (interakcije podzemne vode-stene/rude; biogeohemisjki procesi i sl.) radionuklidi mogu da bude prevedeni u mobilnu fazu i rasejani ili redeponovani ili pak da ostanu i akumuliraju se na mestu odigravanja procesa. U ovim procesima dolazi i do značajnijih razdvajanja radionuklida usled razlika u njihovoj supergenoj geohemiji (Tabele 4 i 5).

Tabela 4. Srednji sadržaji radionuklida u sedimentnim stenama i zemljištu.

Element Radionuklid	Stene			Zemljišta
	glinci	pešcari	karbonatne	
K (%)[2]	2.66	1.07	0.27	1.36
Rb (mg/kg)[2]	140	60	3	60
La (mg/kg)[2]	92	30	n	-[3]
Th (mg/kg)	12	1.7	1.7	6
U (mg/kg)	3.7	0.45	2.2	1

[1]- Prema [10]
[2]- Relativne obilnosti K-40, Rb-87 i La-138 date u Tabeli 3.
[3] - Nedostaju podaci.

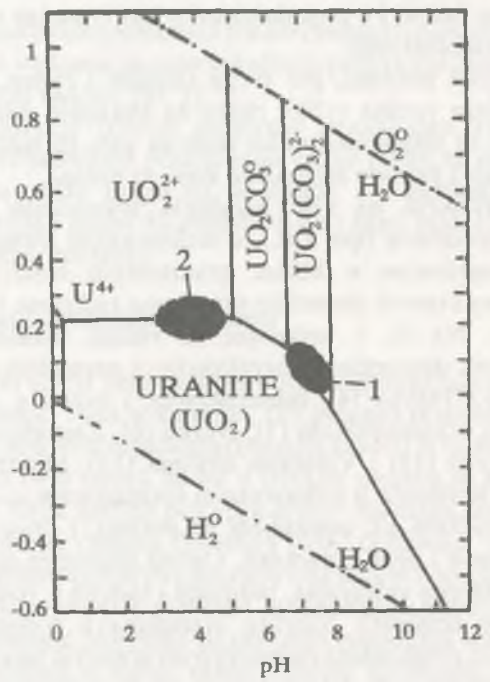
Tabela 5. Srednji sadržaji radionuklida u vodama, vegetaciji i živoj materiji

Element/Radionuklid	Rečna voda	Okeanska voda	Vegetacija (pepeo)	Živa materija
K (%)[2]	0.0023	0.0387	3.0	0.3
Rb (mg/kg)[2]	0.001	0.12	100	5
Th (mg/kg)	0.0001	0.00001	-[3]	-
U (mg/kg)	0.04	0.003	0.5	<0.010

[1]- Prema [10]
[2]- Relativne obilnosti K-40 i Rb-87 date u Tabeli 4.
[3]- Nedostaju podaci

Kalijum (i K-40) kao tipičan rastvorni katjon lako je rastvoran i migrativan ali može delom da bude adsorbovan na česticama minerala glina [10]. Na isti način ponaša se i rubidijum (i Rb-87). Torijum je u površinskim uslovima, kao tipičan element hidrolizata, imobilan i obogaćuje se ili u rezistatima (peskovi sa cirkonom i sl.) ili specifičnim produktima raspadanja kakvi su gline i boksiti (rude aluminijuma). S druge strane, uranijum se u površinskim uslovima oksidiše do šestovalentnog (+) stanja u kome, zbog visokog jonskog potencijala, obrazuje rastvorne i migrativne složene kompleksne anjone (uranil-jon i sl.). Stoga dolazi do razdvajanja torijuma i uranijuma i obrazovanja širokih oreola disperzije uranijuma u vodama, stenama i/ili zemljištu, vegetaciji, a u pogodnim uslovima mogu da se obrazuju i sekundarne rude uranijuma.

Migraciju uranijuma u površinskim uslovima ograničavaju različiti geohemijski faktori: prisustvo karbonatnih, fosfatnih i vanadatnih jona i obrazovanje odgovarajućih nerastvornih soli, u pogodnim pH-uslovima, redukcija uranijuma u četvorovalentno stanje (odgovarajuća promena Eh sredine), vezivanje za čvpstu organsku materiju, delom i adsorpcija na mineralima glina. Pritom, i relativno male promene geohemijskih parametara -pH, Eh, prisustvo i koncentracija kompleksirajućih jona, mogu da dovede do promena mobilnosti urana i njegove disperzije ili pak obrazovanja sekundarnih minerala (karbonata, fosfata, vanadata, seiundarnog uraninita, i dr.), što ilustruje fazni dijagram na sl. 2.



Sl. 2. Fazni odnosi u sistemu U-O_2 -CM_2 -H_2O, na 25° C, $p_{CO2} = 10^{-2}$ atm, aktivnost U= 10^6 M (0,24 ppm); granice stabilnosti prema [15]. 1- plitke podzemne i površinske vode u Zaplanjskom i Barbeškom basenu (po [14]; 2- kisele (sulfatne) vode u oksidacionoj zoni ležišta urana Paunova Stena (Bukulja).

Polja stabilnosti faza u sistemu U-O_2 -CO_2 -H_2O, za uslove koji odgovaraju površinskim, ukazuju da u uslovima neutralnih i oko-neutralnih voda, kakve su većinom plitke podzemne i površinske vode (šrafirano), male promene u pravcu porasta Eh i/ili pH dovode do rastvaranja uraninita i obrazovanja mobillih uranil-jona i uranilbikarbonata i uraniltrikarbonata, a samo u uskom opsegu pH i imobilnog uranilkarbonata; i obrnuto, male promene ka redukcionim uslovima mogu da dovedu do obrazovanja sekundarnog uraninita. Slični odnosi karakterišu i fosfatne i vanadatne sisteme. Kroz ove procese se obrazuju sekundarna rudna ležišta uranijuma (infiltracionog i dr. tipova), u kojima su zastupljeni uranijumski minerali pehblenda, autunit, tornbernit, urano-organski kompleksi i dr., i različiti prateći minerali (pirit, markasit, i dr.); koncentracije uranijuma u fosfatnim rudama; koncentracije uranijuma u bituminoznim škriljcima i ugljevima; oreoli disperzije uranijuma u različitim delovima životne sredine vodama (podzemnim i površinskim, zemljištu, stenama, vegetaciji).

Radijum i radon prate sekundarne koncentracije uranijuma, ali često obrazuju i odvojene oreole disperzije, zbog određenih razlika u geohemijskim karakteristikama. Radijum, kao rastvorni katjon, je migrativan i u uslovima kada je uranijum imobilan, te u vodama ili zemljištu može da bude u maloj ili većoj meri razdvojen od uranijuma i lokalno posebno koncentrisan.

Radon je gasoviti radionuklid, rastvoran u vodi, i može lako da migrira sa gasovitom i vodenom fazom i u pogodnim uslovima (rasedne zone, zemljišta i sl.) da obrazuje značajne koncentracije.

Uranijum i njegovi potomci, pre svega radijum i radon, iz oreola sekundarne disperzije predstavljaju veoma velike rizike za izlaganje stanovništva jonizujućem zračenju, eksternom ili internom (preko vode za piće ili lanca ishrane), kako zbog dimenzija oreola tako i prirode sredina za koje su vezani.

U Srbiji su otkriveni na više lokaliteta sekundarne uranijumove rude i mineralizacije (infiltracionog tipa, i sl.), u sedimentnim formacijama, preneogene i neogene starosti, uglavnom u blizini granitoidnih masiva sa hidrotermalnim mineralizacijama, kao i oreoli disperzije uranijuma radijuma i radona u tlu, vodama i /ili vazduhu [14]. Na Sl. 1 prikazani su važniji lokaliteti ovih orudnjenja-mineralizacija i oreola disperzije: mineralizacije u permskim peščarima - Dojkince (oznaka 1 na Sl. 1) i Plavna (4), mineralizacije i oreoli u neogenim basenima - Aranđelovačkom (6), Belanovičkom (7), Iverku (8), Zaplanjskom (10) i Vranjskom (11), i na Fruškoj Gori (12) i Vršačkim Brdima (13). Mineralizacije su vezane za određene peskovite horizonte u sedimentnim formacijama, a odlikuju se sadržajima U u opsegu oko 100-3000 g/t; zastupljeni su autunit, i drugi sekundarni minerali, sporadično i pehblenda i pirit i markasit. Oreoli disperzije se odlikuju mestimično veoma visokim sadržajima uranijuma, radijuma i radona u vodama i lokalno visokim sadržajima radona u zemljištu. Sadržaji uranijuma u vodama su lokalno visoki, zahvaljujući značajnim promenama rastvorljivosti uranovih faza pri malim promenama geohemijskih parametara (pH, Eh) kakve se sreću u plitkim podzemnim vodama. Tako, napr. sadržaji uranijuma u vodama u Zaplanjskom i Barbeškom basenu, koje su uglavnom neutralne do slabo bazične, su 0,2-1900 μg/l, u kiselim vodama u zonama mineralizacije na Bukulji (pH oko 4) oko 500 ug/l; sadržaji radijuma i radona su u vodama u Zaplanjskom i Barbeškom basenu 0,053-0,794 Bq/l Ra i 6,29-377,4 Bq/l Rn.

S druge strane, boksitna ležišta u Srbiji (Poćuta kod Valjeva, Mačkat na Zlatiboru i Grebnik u Metohiji), kao i u istočnoj Bosni (Vlasenica) i predstavljaju sredine nešto povišenih koncentacija torijuma, ali niskih sadržaja urana) (Tabela 6).Međutim, kako se radi o torijumu u pitanju su ipak niski sadržaji i ne predstavlju neki zdravstveni rizik za stanovništvo.

Tabela 6. Sadržaji Th, U i K u boksitima

Boksitni region/ležište	Srednj (opseg)		
	Th mg/kg	U mg/kg	K mg/kg
Poćuta	27.67 (0.17-54.96)	4.67	3.03
Zlatibor (Mačkat)	19.65	3.44	0.856
Nikšička Župa	58.93	8.45	0.000
Vlasenica	40-70	4-6	nx1000

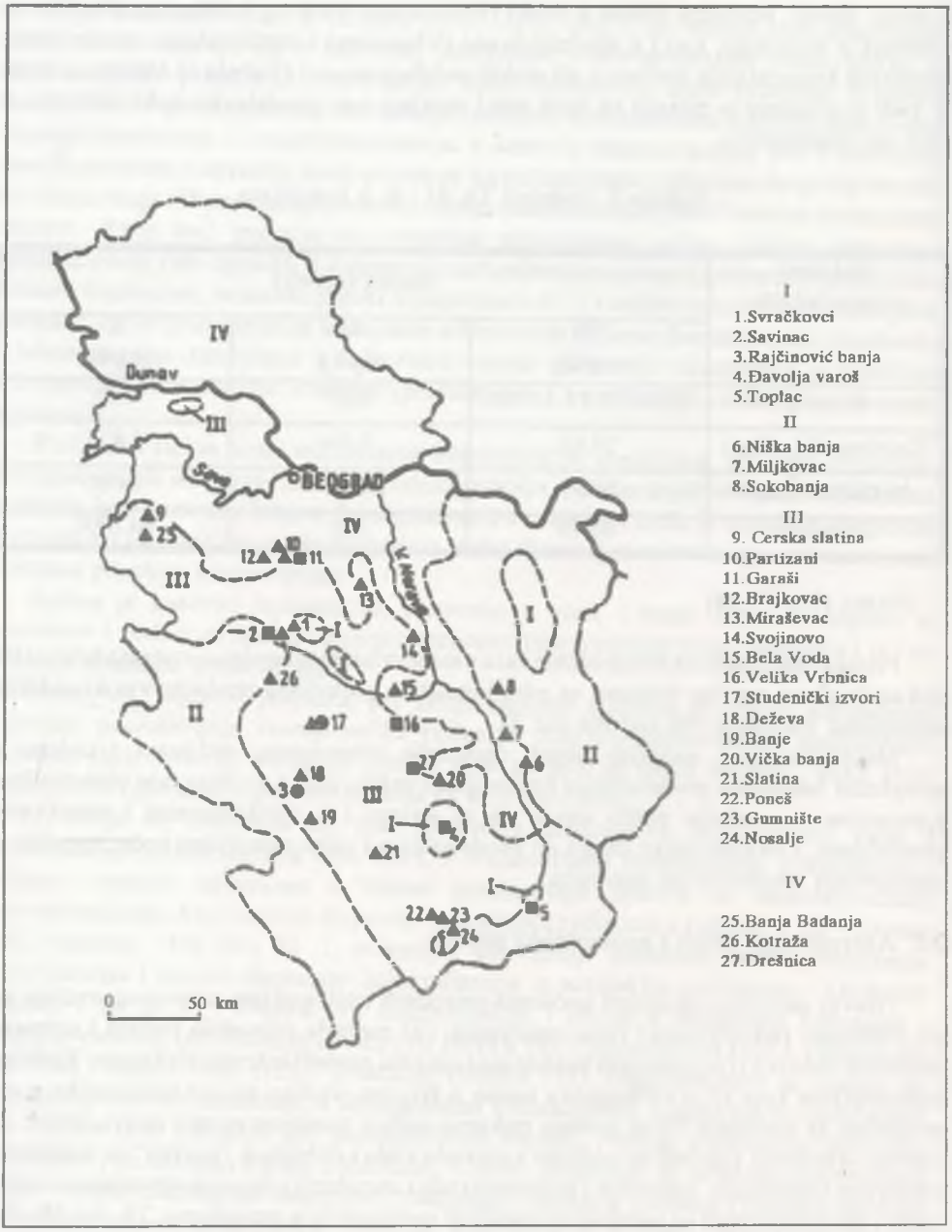
[1] - Prema [16, 17, 18].

Proučavanja radioaktivnih elemenata u mineralnim i termalnim vodama Srbije [19] pokazuju da se u ovim vodama na nizu lokaliteta pojavljuju značajno visoki sadržaji uranijuma, radijuma i/ili radona (Sl. 3).

Mineralizacije i naročito oreoli disperzije uranaijuma, radijuma i radona u neogenim basenima predstavljaju potencijano velike rizike za izlaganje stanovništva jonizacionom zračenju pošto mogu da se nalaze i u agrikulturnim i naseljenim područjima. Lokalne rizike mogu da predstavljaju i neke mineralne vode, naročito u slučajevima neadekvatne upotrebe

3.5. Antropogeni izvori i geohemijski procesi

Glavni antropogeni izvori unošenja prirodnih radionuklida u životnu sredinu su: (i) dobijanje (iskopavanje) ruda uranijuma, (ii) prerada prirodnih fosfata i primena fosfatnih đubriva i (iii) gasovita zagađenja (otpadni gasovi) iz termoelektrana. Količine radionuklida koje se iz ovih izvora unose u životnu sredinu su već sada velike a sve prognoze za narednih 10-ak godina pokaziju njihov značajan porast za sve izvore. U okviru aktivnosti vezanih za vađenje i preradu ruda i dobijanja "goriva" za nuklearne elektrane (rudarenje, mlevenje i priprema ruda i metalurški procesi) obrazuju se čvrsti, tečni i gasoviti otpadi sa sadržajem različitih radionuklida: uranijuma, Th, Ra, Pb, Po, koji ulaze u životnu sredinu. Naročito su značajna zagađenja tečnim otpadima, zbog velike migrativnosti, kojima se unose velike količine uranijuma i radijuma u životnu sredinu. Ove količine, koje već sada značajno ugrožavaju životnu sredinu, neprekidno rastu, zbog porasta korišćenja nuklearne energije u svetu - po nekim procenama u 2000-toj godini biće 5-12 puta veće nego danas i mogle bi da dostignu čak oko 4800 t uranijuma (17 % ukupnog unosa uranijuma) i oko $900x10^{10}$ Bq Ra (6 % ukupnog



Sl. 3. Mineralne i termalne vode sa povišenim sadržajem uranijuma, radijuma i/ili radona (iz 1191). Kvadrati=>5 μg/l U; krugovi=>1,00 Bq/l Ra; Trouglovi=>100 Bq/l. I- oblasti vulkanogenih masiva; II- karsne oblasti; III- oblasti metamorfita; IV - hidrogeološki baseni.

unosa Ra) (Tabela 7). Kao što je izneto u prethodnom poglavlju, uranijum u sekundarnim geohemijskim sredinama pokazuje tendenciju vezivanja za fosfate te se značajno koncentriše u fosfatnim rudama. Stoga se preradom sirovih fosfata u veštačka đubriva i primenom ovih đubriva unose velike količine urana i pratećih radionuklida u životnu sredinu. Ovo je i daleko najveći antropogeni izvor unošenja uranijuma - procenjuje se da bi unosi u životnu sredinu u svetu u 2000-toj godini iz ovog izvora mogla i da dostignu čak 21000 t uranijuma (73 % ukupnog unosa U) i blizu 3000 10^{10} Bq Ra.

Tabela 7. Prognozirani godišnji unos prirodnih radionuklida iz antropogenih izvora u životnu sredinu za 2000. godinu.

Izvor	U	Ra	U+Ra
	t	10^{10} Bq	10^{10} Bq
Tečni otpad pri dobijanju i preradi uranijumovih ruda	4760	925	6808
Fosfatna đubriva	21000	2886	28860
Gasovita zagađenja iz termoelektrana	2900	11000	14800
Ukupno	28660	14911	50468

*- Prema [8]; vrednosti date u Ci preračunate u Bq.

Brojne termoelektrane u svetu sagorevajući ugljeve emituju gasovite produkte sagorevanja koji preko atmosfere ulaze u životnu sredinu. Kako ugljevi sadrže kao mikroelemente uranijuma i prateće radionuklide (zbog afiniteta U ka vezivanju za čvrstu organsku materiju), radom termoelektrana u životnu sredinu se unose značajne količine uranijuma i radijuma - procenjuje se da bi unosi u životnu sredinu u svetu u 2000-toj godini iz ovog izvora mogli i dostignu 2900 t uranijuma i čak 11000 10^{10} Bq Ra (74 % ukupnog unosa Ra u životnu sredinu).

Uranijum i radijum (i drugi radionuklidi) koji se unose u životnu sredinu iz antropogenih izvora, u životnoj sredini učestvuju u geohemijskim procesima na isti način kao i elementi iz prirodnih izvora - rasejavajući se ili koncentrišući se u određenim sredinama u zavisnosti od geohemijskih uslova.

Unosi uranijuma i radijuma (i drugih radionuklida-potomaka U) u živitnu sredinu iz antropogenih izvora mogu da predstavljaju značajne lokalne rizike izlagana stanovništva jonizujućem zračenju ali su značajni i za podizanje fona ovih elemenata u regionalnoj skali.

3.6. Deponije radioaktivnog otpada i geohemijski procesi

Deponije radioaktivnog otpada mogu da sadrže otpade različitih nivoa radioaktivnosti kao i radionuklide različitog porekla: samo prirodne, samo antropogene, i mešavinu jednih i drugih.

Ove deponije ako su izložene dejstvu geohemijskih faktora (interakcija sa površinskim i podzemnim vodama i sl.) ponašaju se kao rudna ležišta i mineralizacije i mogu da budu izvor za obrazovanje oreola disperzije odgovarajućih radionuklida. Pritom, u zavisnosti od sastava materijala, geohemijskih karakteristika prisutnih radionuklida i lokalnih geohemijskih procesa odvijaće se migracija i/ili redeponovanje radionuklida.

Stoga za deponije radioaktivnog otpada, ako nisu zaštićene od interakcija sa okolnom sredinom, mogu da budu vezani značajni rizici izlaganja stanovništva jonizujućem zračenju.

4. ZAKLJUČAK

Prirodni radionuklidi zemaljskog porekla, koji se unose u životnu sredinu na različite načine i iz različitih izvora- prirodnih, geološko-geohemijskih (rudna ležišta, stene i sl.) i antropogenih (dobijanje i prerada ruda, proizvodnja i korišćenje mineralnih đubriva, deponije radioaktivnog otpada i sl.) doprinose povećanom sadržaju radionuklida u životnoj sredini i ozračivanju populacije. U Srbiji su identifikovane na različitim lokalitetima koncentracije ovih radionuklida vezane za geološko-geohemijske sisteme - rudna ležišta i mineralizacije uranijuma i oreoli geohemijske disperzije uranijuma, radijuma i radona u tlu, vodama i vazduhu, koje mogu da predstavljaju značajne rizike za zdravlje stanovništva. Raspodele radionuklida u prirodi zavise od njihove obilnosti u litosferi i od geohemijskih osobina radionuklida.

Sve veći unosi prirodnih radionuklida iz antropogenih izvora u životnu sredinu stavaraju mogućnost, u pogodnim geohemijskim uslovima, koncentracija koje mogu, samostalno ili superponirane sa koncentracijama geološko-hemijskog porekla, da predstavljaju značajne rizike za izlaganje stanovništva jonizujućem zračenju. Stoga otkrivanje i procena rizika od jonizujućih zračenja predstavlja problematiku za čije je uspešno rešavanje neophodno izvodjenje kompleksnih geohemijskih istraživanja.

LITERATURA

1. Faure, G.: Principles of Isotope Geology, Second Edition, 1986, John Wiley & Sons, Inc.
2. Jakubik, A.T., Geochemistry and Physics of Plutonium Migration, L.H. Arens, ed.: Origin and Distribution of the Elements, 775-790, 1979, Pergamon Press.
3. Fritz, P., Fontes, J. Ch., ed. Handbook of Environmental Isotope Geochemistry, v. 1, 1980, Elsevier.
4. Henderson, P., Inorganic Geochemistry, 1982, Pergamon Press.

5. Паблоцкај, Ф,И., Мјсоедов, Б.Ф., Определение содержанић и форм нахождениј искусстжехиних радионуклпдов в објектах окружакцеи среди., Современие методи разделенић и определенић радиоактивних злементв, 36-45, 1989, Наука, Москва.
6. UNEP: Radijacija - doze, posledice, rizici, (prevod sa engleskog), 1986, Nolit, Beograd.
7. Наумов, Г. Б., Мироиова О. Ф. ,Физики-хемически аспект миграции урана в литосфере, Б. Н. Ласкорин, Б. Ф. Мјсоедов, едс., Хпмиј ураиа, 5-16, 1989, Наука Москва
8. Шаталов В. В., Ласкорин Б. Н., Хемиј естесвених радионуклидов и Вопроси зашити окружакцеи среди, Б. И. Ласкорин, Б. Ф. Мјсоедов, едс , Химиј урана, 17-24, 1989, Наика Москва.
9. Klinkhammer, G.P., Palmer, M.P., Uranium in the oceans: Where it goes and why, Geochim. Cosmochim. Acta, v. 55, 7, 1799-1825, 1991.
10. Dangić, A., Geohemija, A. Dangić i I. Krstanović, urednici, Geoloska terminologija i nomenklatura, III: Geohemija, kristalografija, mineralogija, 1-88, 1983 Zavod za RGP RGF, Univ. u Beogradu, Beograd,.
11. Dangić, A., Geohemija hidrotermalne alteracije stena oko sulfidnih mineralizacija i evolucija hidrotermalne aktivnosti na primeru Srebrenice i Kišnice, Geol. anali Balk. poluostrva, XLII-LXIX, 305-509, 1979-80, Beograd.
12. Dangić, A., Geohemija u istraživanju mineralnih sirovina, Tehnika, nauka, inženjering, 27, 109-126, 1987, Sarajevo. /Dangić, A., Geochemistry applied to mineral raw material research, Technology, Science, Engineering, 27, 109-126, 1987, Sarajevo.
13. Dangić, A., Milojević, M., Environmental geochemistry and radioactivity: anomalies detected by airborne gamma-ray spectrometry and their impacts, Krakow, Abstracts of 3th Int. Symp. on Environmental Geochemistry, 88-89, 1994, Krakow.
14. Dangić, A., Gordanić, V., Dangić, J., Ore deposits, mineralisations and geochemical dispersion of radioactive elements as potential environmental problems in Serbia, A. Dangić, A., ed., Investig. Mineral Row Materials and Environmental Protection, Igalo 92, 27-31, 1992, SIT RGM, Belgrade.
15. Guilbert, J. M., Park, C.F. Jr., The Geology of ore depo- sits, 1986, W.H. Freeman and Company, New York.
16. Dangić, A., Gordanić, V., Geohemija boksita Poćute (Z Srbija): pojavljivanje i sadržaji radioaktivnih elemenata i kalijuma, Radovi Geoinstituta, 29, - , 1994, Beograd.
17. Dangić, A., Milojević, M., Geohemija boksita, disperzija radioaktivnih elemenata iaero-gamaspektrometrija: istraživanja u boksitonosnom području Vlasenice (I Bosna), Radovi Geoinstituta, 29, - , 1994, Beograd
18. Simić, N., Kecojević, V., Knežević, M., Primena geofizičkog karotaža pri istraživanju ležišta boksita u Jugoslaviji, Zbornik radova VI jugosl. simpozijuma o istraživ. i eksploatac. boksita, 107-121, 1988, Herceg Novi.
19. Dangić, A., Protić, D., Mineralne i termalne vode Srbije: radioaktivni elementi i kvalitet voda, Zbornik radova međunarodne konferencije "Kvalitet voda", 149-156, 1994, Čačak.

GEOHEMIJSKI PROCESI U PRIRODI I RADIONUKLIDI

Adam Dangić

Rezime:

Jonizujuće zračenje predstavlja jedan od rizika za zdravlje stanovništva. Rad razmatra pojavljivanje i značaj svih radionuklida u savremenoj životnoj sredini, kako prirodnih (kosmogenih i zemaljskih) tako i antropogenih (veštačkih), njihove izvore (kosmički, geološko-geohemijski, antropogeni), načine ulaska u i kretanje kroz životnu sredinu. Najveće rizike za stanovništvo predstavljaju radionuklidi iz geološko-geohemijskih izvora; u Srbiju su na više lokaliteta nađene visoke koncentracije radionuklida vezane za ove izvore. Kretanje radionuklida u životnoj sredini regulišu geohemijski procesi odnosno geohemijski ciklusi elemenata. Za otkrivanje radionuklida u prirodi, procenu rizika za zdravlje stanovništva i prevenciju neophodna su višeslojna geohemijska istraživanja.

Ključne reči: Jonizujuće zračenje; priroda; životna sredina; radionuklidi; geohemijski ciklusi; geohemijski procesi; oreoli disperzije; zdravstveni rizici; zaštita stanovništva.

IONIZING RADIATION AND RADIONUCLIDES IN THE ENVIRONMENT: SOURCES, ORIGIN, GEOCHEMICAL PROCESSES AND HEALTH RISKS

Adam Dangić

Abstract:

Ionizing radiation related to the radioactivity and radionuclides appears to be ones of most dangerous environmental risks to the human health. The paper considers appearance and importance of all radionucliodes, both natural (cosmogenic and Earth´s) and anthropogenic, mode of their entering into and mo- vement through the environment. Most risk to the population are radionuclides related to the geological-geochemical systems - in Serbia, high concentrations of radionuclides related to these sources were indicated at a number of localities. Movement of radionuclides through the environment is regulated by the geochemical processes i.e. the geochemical cycles of the elements. For the discovering of radionuclides in the nature, the assessment of the health risks to the population and the related protection are necessary multylayer geochemical studies.

Key words: Ionizing radiation, Nature, Environment, Radionuclides, Geochemical cycles; Geohemical processes; Dispersion halos; Health risks, Protection of population.

3.

GEOHEMIJSKI PROCESI I GEOHEMIJSKE ANOMALIJE URANIJUMA, RADIJUMA I RADONA U TLU, VODAMA I VAZDUHU KAO EKOLOŠKI RIZICI

Adam Dangić
Rudarsko-geološki fakultet, Univ. u Beogradu, Djušina 7
Vojin Gordanić
Geoinstitut, Rovinjska 12, Beograd
Jelena Dangić
Fakultet za fizičku hemiju, Univ. u Beogradu, St.trg. 16

1. UVOD

Uranijum i radijum se pojavljuju u litosferi i hidrosferi u različitim geološkim objektima: stenama, rudama, zemljištu, kao i u podzemnim i površinskim vodama. U najvećim koncentracijama se pojavljuju u rudama, u sopstvenim rudnim ležištima ili pak kao primese u rudama fosfata, olova i cinka i drugih sirovina; u stenama se značajnije koncentrišu, zbog svog geohemijskog karaktera, u kiselim magmatskim stenama, škriljcima i glincima. Oko rudnih ležišta kao i oko stena sa povišenim koncentracijama uranijuma i torijuma mogu geohemijskim procesima da se obrazuju na širokim prostorima kontaminacije ovih elemenata, naročito uranijuma i radijuma u vodama i zemljištima. Visoki sadržaji uranijuma i radijuma u vodama i zemljištu su snažni izvori radona i predstavljaju veoma visoke rizike životne sredine, odnosno rizike ozračivanja ljudi i životinja. Radon se, kao gasovit radioizotop, lako koncentriše u vazduhu u zatvorenim prostorima, kakvi su različite podzemne prostorije i stambene

zgrade. Izvori radona u zatvorenim prostorima mogu da budu i građevinski materijali dobijeni od geoloških objekata sa visokim sadržajima uranijuma i radijuma.

U Srbiji su značajno zastupljene geološke formacije u kojima mogu da se pojave radioaktivni elementi u sadržajima koji predstavljaju rizike za životnu sredinu [1,2]. Rizici mogu da budu visoki naročito u gušće naseljenim i agrikulturnim područjima kakva su i Barbeški basen, u JI Srbiji, i lokalitet Garaši na planini Bukulji, u Šumadiji. U ovim područjima su utvrđene geohemijske anomalije uranijuma, radijuma i/ili radona u vodama, tlu i/ili vazduhu. U radu su prikazani pojavljivanje i sadržaji ovih elemenata i relevantni geohemijski i analizirani ekološki rizici. Na datim primerima ukazano je na potrebu detaljnijih istraživanja ove problemtike u našoj zemlje.

2. URANIJUM, RADIJUM I RADON U TLU, VODAMA I VAZDUHU I RELEVANTNI GEOHEMIJSKI PROCESI

Uranijum i njegovi potomci radijum i radon su najvažniji izvori jonizujućeg zračenja iz prirode [3]. Pritom, kod uranijuma, koji je zastupljen sa 3 izotopa, praktično je značajan samo najzastupljeniji izotop U-238, čija je relativna obilnost 99,274 % (relativne obilnosti druga dva izotopa U-235 i U-234 su 0,720 i 0,006 %, respektivno). Kod radijuma i radona su praktično značajni samo izotopi Ra-226 i Rn-222, potomci U-238. U radioaktivnoj seriji U-238, redosled transformacija i vreme poluraspada nuklida ukazuju da je za uspostavljanje ravnoteže U-Ra-Rn potrebno da prođe oko 800.000 godina

Uranijum, radijum i radon se pojavljuju u različitim delovima životne sredine: tlu, vodama i vazduhu, bilo zajedno ili razdvojeno, i mogu određenim geohemijskim procesima da se lokalno značajnije koncentrišu.

U tlu uranijum se pojavljuje vezan za rude, stene i zemljišta. U rudama i stenama obrazovanim u primarnim geohemijskim sredinama, pre svega magmatskim, uranijum asocira sa torijumom. U kristalizaciji magme i hidrotermalnim procesima prisutan je kao U jon, koji se zbog velikog radijusa (0.97 nm po Arens-u, odnosno 0,108 nm po Witheker & Muntus) i naelektrisanja obogaćuje u kasnim diferencijatima. Stoga graniti, koji se odlikuju istim prosečnim sadržajem U kao litosfera - 3,5 mg/kg, imaju preko 1000 puta više U od ultrabazičnih i 7 puta više od bazičnih stena (Tabela 1). Međutim, izrazite koncentracije uranijuma postiže u nekim hidrotermalnim sistemima, bilo da obrazuje sopstvena ležišta (sadržaji reda 0,n- n %) ili da ulazi u rude drugih elemenata (ležišta olova i cinka i dr., lokalne koncentracije i od nx100 mg/kg). U ovim stenama i rudama po pravilu (pošto su kod nas starije od 800.000 godina) postoji ravnoteža U-Ra-Rn.

U procesima na površini zemlje, kakvi su raspadanje stena i ruda i obrazovanje zemljišta, sedimentnih stena i sekundarnih mineralizacija i ruda, najćešće se uranijum i torijum razdvajaju, usled razlika u nekim svojim geohemijskim karakteristikama. Uranijum je u površinskim uslovima u U^{4+} stanju slabo migrativan.

Tabela 1.Srednji sadržaju uranijuma u litosferi, stenama, zemljištima i vodama[4; 5].

Sredina-Materijal	Jedinica	Srednji sadržaj
Litosfera	mg/kg	3.5
Magmatske stene	mg/kg	3.5
Ultrabazične stene	mg/kg	0.003
Bazične stene	mg/kg	0.5
Graniti	mg/kg	3.5
Sedimentne stene	mg/kg	3.2
Peščari	mg/kg	0.45
Karbonatne stene	mg/kg	2.2
Glinci	mg/kg	3.7
Zemljište	mg/kg	1
Rečne vode	μg/kg	40
Morska voda	μg/kg	3

Međutim, u sredinama sa visokim oksidacionim potencijalom prelazi u U^{6+}-stanje i obrazuje uranil-jon koji je veoma migrativan. Migrativnost u vodi mu ograničavaju adsorpcija na mineralima glina i ferihidroksidu, obrazovanje sekundarnih minerala (kompleksni karbonati, fosfati i dr.), kao i redukcioni uslovi. Dakle, u interakcijama voda-stene i voda-rude uran može da pređe u rastvor i u zavisnosti od daljih geohemijskih uslova i procesa ili se rasejava u vodama, zemljištu i stenama ili se u manjoj ili većoj meri koncentriše, čak obrazujući i sekundarne rude. U ovim procesima Ra i Rn prisutni u primarnim materijalima se razdvajaju, u manjoj ili većoj meri od uranijuma: Ra zbog razlika u geohemijskim osobenostima (različite migrativnosti u vodenoj sredini), a Rn, kao gasovit element, može lako da difunduje iz sistema. Stoga u tlu (stene, zemljišta) i vodama mogu da se obrazuju oreoli rasejavanja tipa U+Ra+Rn, koje karakteriše neravnotežno stanje U-Ra, kao i oreoli tipa Ra+Rn, i Rn. S druge strane, Rn može da u pogodnim uslovima da se značajno koncentriše u vazduhu, u porama zemljišta ili neposredno iznad površine terena.

Geohemijsko rasejavanje urana, radijuma i radona supergenim geohemijskim procesima i njihove lokalne koncentracije u tlu (stenama i zemljištima), vodama i vazduhu mogu da predstavljaju zdravstvene rizike za životnu sredinu odnosno zdravlje stanovništva. Kao ilustraciju ovih rizika prikazaćemo koncentracije ovih elemenata na dva lokaliteta u Srbiji: u Barbeškom basenu, u JI Srbiji, i na planini Bukulji, u Šumadiji.

3. BARBEŠKI BASEN I BUKULJA: URANIJUMA, RADIJUM I RADON U TLU, VODAMA I VAZDUHU

U Srbiji je otkriven i u manjoj ili većoj meri istraživan niz mineralizacija i nekoliko manjih rudnih ležišta uranijuma, pretežno lokalizovanih u i oko granitoidnih masiva i u tercijarnim sedimentnim basenima (Sl. 1). Ove rudna ležišta-pojave i mineralizacije kao i geohemijski oreoli rasejavanja, naročito u tercijarnim basenima, predstavljaju i značajne rizike za životnu sredinu [2].

Slika 1. Položaj istraživanih područja: 1-Barbeški basen, lokalitet Gornji Barbeš; 2-Lokalitet Garaši na Bukulji

Barbeški basen, u JI Srbiji, je jedan od tercijarnih sedimentnih basena sa mineralizacijama uranijuma a u njemu se nalazi i više sela i zaseoka. Mineralizacije su tipa uranonosnih peščara i vezane su za određene horizonte u sedimentnoj seriji. U ovom basenu je proučena geohemijska disperzija radioaktivnih elemenata u različitim sredinama a naročito su interesantni sadržaji i raspodela uranijuma, radijuma i radona u vodama [6].

U i oko granitskog masiva Bukulje, u centralnoj Srbiji (Šumadija), otkriveni su manja rudna ležišta i mineralizacije uranijuma na nekoliko lokaliteta. Na južnom obodu masiva, na lokalitetu Garaši, otkriveno je manje ležište Paunova stena, vezano za jednu veću, subvertikalnu, rasednu zonu, na kontaktu masiva sa škriljcima. U ovoj

zoni, hidrotermalno izmenjenoj, lokalno se pojavljuju rudne koncentracije uranijuma žičnog tipa; oko i iznad njih proučeno je geohemijsko rasejavanje uranijuma, radijuma i radona u stenama, vodama i zemljištu [7; 8; 9]. Posebno su interesantni sadržaji i raspodela radona u vazduhu u zemljištu.

3.1. Barbeški basen

Barbeški tercijarni basen se nalazi u dolini Južne Morave, između Niškog basena, na severu i Leskovačkog basena, na jugu (Sl. 1). Veličine je oko 12 x 2-4 km, izgrađuju ga subhorizontalne sedimentne formacije miocenske i pliocenske starosti a podlogi mu uglavnom čine kompleks škriljaca paleozojske starosti. Miocen je predstavljen peščarsko-glinovitom serijom, u kojoj se izdvajaju dve facije: (1) crvenih peščara i (2) sivih peskova, peščara i konglomerata, za koju su vezane uranske mineralizacije. Ove mineralizacije su otkrivene na nekoliko lokaliteta, a pojavljuju se kao manja sočivasta tela sa niskim sadržajem uraninita i autunita, debljine do nekoliko m. Mineralizaciju kod sela Donji Barbeš karakterišu debljina 0,5-4,5 m (najčešće 1 m) i sadržaj uranijuma 67-3090 mg/kg (pretežno 100-400 mg/kg).

U okviru regionalnih geohemijskih istraživanja basena i njegovog oboda analizirani su sistematski (7 uzoraka/km) sadržaji uranijuma, radijuma i radona u vodama, potočnim sedimentima i mineralnim koncentratima kao i u stenama (na odabranim profilima). U uzorcima voda uranijum je analiziran laserskom fluorometrijom, radijum sa Rn-detektorom (RD 200 EDA) a Rn emanometrijski (emanometar ETR 1 Scintrex).

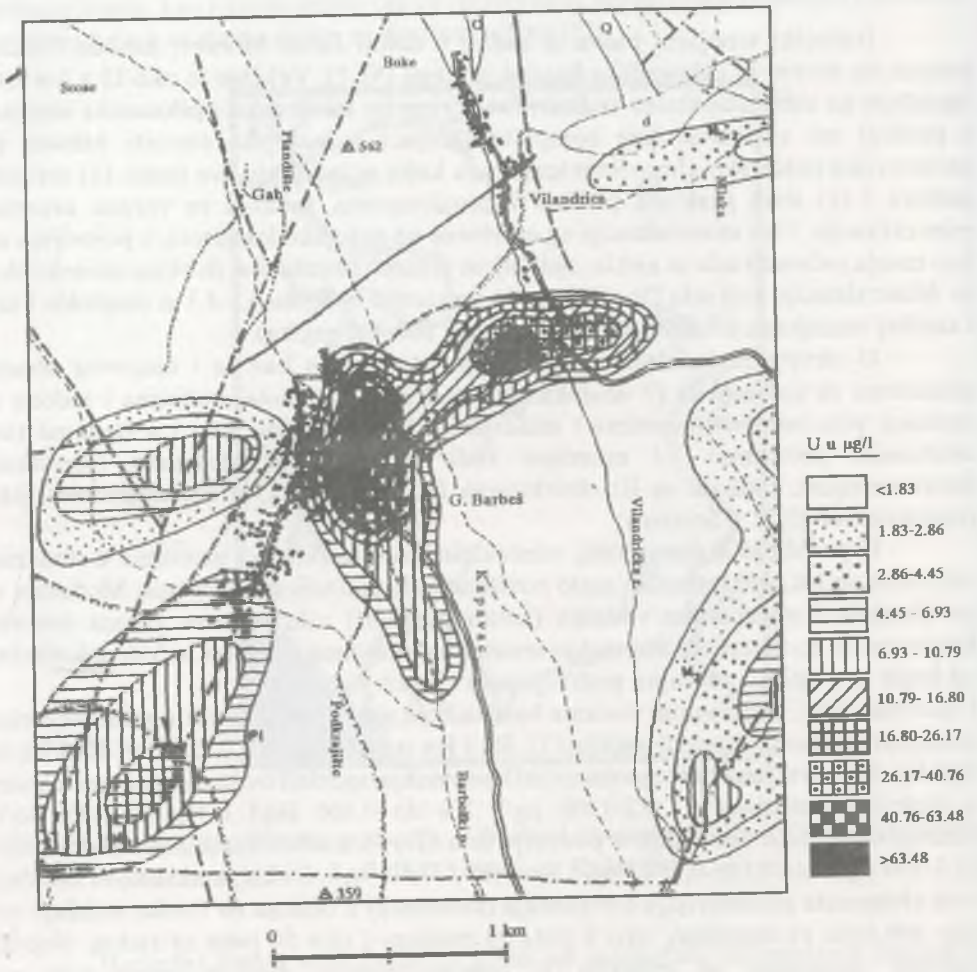
U potočnim sedimentima, mineralnim koncentratima i profilima u stenama otkrivene su lokalno relativno malo povišene koncentracije uranaijuma. Međutim, u površinskim i podzemnim vodama (izvori i bunari) otkrivene su veoma izrazite hidromorfne geohemijske anomalije uranijuma, radijuma i radona na više lokaliteta, od kojih je posebno značajan područje sela Gornji Barbeš.

U površinskim i podzemnim vodama basena koje nisu izložene uticaju mineralizacija uranijuma prosečni (fonski) sadržaji U, Ra i Rn su: 1,67 μg/l U, 0,127 Bq/l Ra i 24,40 Bq/l Rn. U područjima hidrogeohemijskih anomalija, sadržaji ovih elemenata se nalaze u sledećim opsezima: U 0,2-1900 μg/l, Ra do 0.800 Bq/l i Rn do 380 Bq/l. Hidrogeohemijsku anomaliju u području sela Gornji Barbeš karakterišu sadržaji: U 13,5-500 μg/l, Ra 0,136-0,794 Bq/l i Rn 9,99-377,40 Bq/l. Dakle, maksimalni sadržaji ovih elemenata predstavljaju obogaćenja (kontraste) u odnosu na fonske sadržaje od oko 300 puta za uranijum, oko 6 puta za radijum i oko 16 puta za radon. Najviši sadržaji uranijuma se pojavlju u samom naselju, što se jasno vidi na hidrogeohemijskoj karti urana (Sl. 2), koja obuhvata šire područje sela (12 km). Neki od najviših sadržaja radioaktivnih elemenata su nađeni u bunarima u selu.

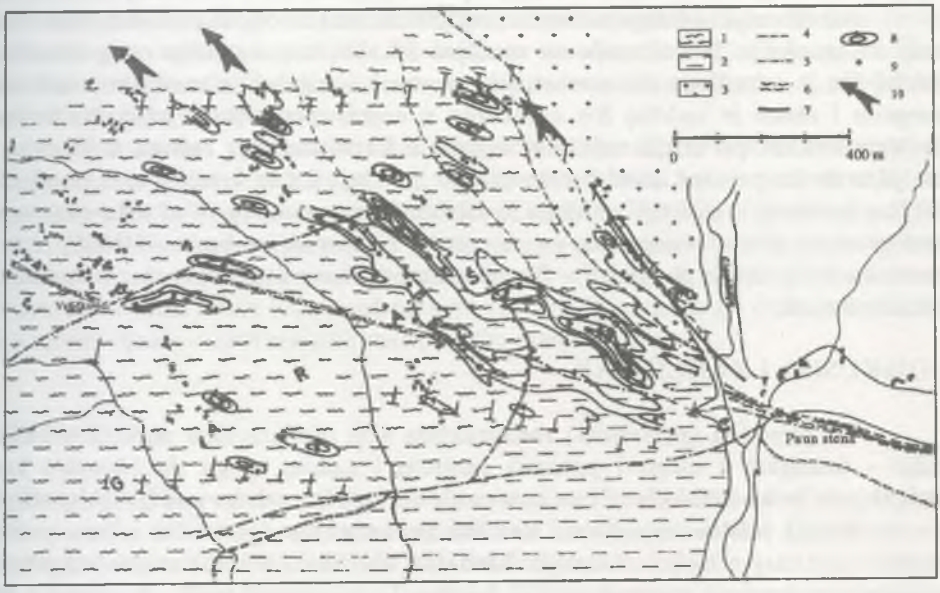
3.2. Bukulja - lokalitet Garaši

Planina Bukulja, u Šumadiji, kod Aranđelovca, smeštena je između neogenih basena Aranđelovačkog, na severu, i Belanovačkog, na jugu, a izgrađuju je granitoidni masiv tercijarne starosti i njegov kontaktni oreol (metamorfisani paleozojski sedimenti). U granitoidnom masivu , koji je otkriven na površini od oko 40 km , i

njegovom kontaktnom orelu kao i u neogenim sedimentima otkrivene su pojave i ležišta uranovih ruda.



Slika 2. Hidrogeohemijska karta sa geohemijskim anomalijama urana u području sela Gornji Barbeš u Barbeškom basenu. Geologija: d- deluvijum, Pl- pliocen, peskovi, šljunkovi, gline; M_2- gornji miocen: peskovi, gline, šljunkovi; M_{1+2}- miocene, donji+gornji: gline i peščari; Gab- albitski gnajsevi; Scose-hloritsko-sericitski škriljci



Slika 3. Atmogeohemijska karta sadržaja radona u zemljištu, lokalitet Garaši na planini Bukulji.

1- škriljci i gnajsevi; 2- tercijalni sedimenti; 3- granit delimično alterisan; 4- Rased predpostavljen; 5- rased, fotogeološki indiciran; 6- Rasedna zona fotogeološki indicirana; 7- rudne zone, utvrđene bušenjem; 8- izoemane (u emanima); 9- emanacione anomalije potvrđene α-metrijom; 10- orjentacija zona anomalnih koncentracija radona.

U području sela Garaša, na južnom obodu granitskog masiva otkriveno je manje ležište uranijumove rude Paun stena, vezano za rasednu zonu na kontaktu sa serijom škriljaca. Čine ga strma do subvertikalna tela uranijumske rude, na dubini od oko 150-300 m. Rudnu paragenezu čine pehblenda, autunit, pirit, a manje su zastupljeni i drugi sulfidi (markasit, halkopirit, pirotin, i dr.), hematit, magnetit, siderit i radiobarit. Sadržaji U rudi prelaze i preko 1000 mg/kg.

Granitoidne stene masiva Bukulja pokazuju određene razlike u sadržajima uranijuma u zavisnosti od stepena promena stene [10, 11]. Prosečni sadržaji uranijuma u svežim granitoidima masiva su 2,9 μg/kg; u širem području ležišta Paunova stena, u delom izmenjenim granitoidima prosečan sadržaj uranijuma je 4.8 μg/kg a u jako izmenjenim granitoidima je 5,5 μg/kg. Takođe i udeo lakorastvornog (lakše pokretljivog) uranijuma raste u istom smeru, od oko 10-ak % u svežim do oko i 80 % u jako izmenjenim granitoidima.

U stenama, vodama i zemljištu oko i iznad rudnih tela obrazovani su geohemijski oreoli raselavanja U, Ra i Rn, različitih dimenzija i intenziteta. Najveći

sadržaji U se pojavljuju u vodama istražnog potkopa u ležištu Paun stena - 1300 μg/l, u koje sadrže i do 0,444 Bq/l Ra i 196 Bq/l Rn [8].

Istraživanja sadržaja radona u zemljištima iznad i oko rudonosnih zona Paun stene i Cigankulje 191 ukazuju na značajne lokalne koncentracije ovog elementa. Sadržaj Rn je određivan emanometrijski, na terenu: vazduh iz zemljišta je usisavan pumpom i zatim je sadržaj Rn određivan u emenometru (a-metrija). Na osnovu rezultata analiza po mreži tačaka dobijena je karta sadržaja radona u vazduhu u zemljišta za širi prostor iznad ležišta (Sl. 3). Sadržaji Rn se kreću u opsegu od <8 - >30 Em (emana), a izolinije sadržaja (8-10-20-30 Em) ukazuju na izrazitu strukturnu predispoziciju difundovanja radona i njegovog rasejavanja u pravcu JJI-SZZ, i to u smeru ka SSZ. Zone obogaćenja Rn protežu se i kroz područje sela, sa kućama i domaćinstvima.

4. DISKUSIJA I ZAKLJUČAK

Tri prirodna (zemaljska) radionuklida koji predstavljaju najveće ekološke rizike - uranijum i njegovi potomci radijum i radon, mogu da obrazuju kroz geohemijske procese lokalno da se koncentriču u različitim delovima životne sredine.

Rudna ležišta uranaijuma kao izrazite koncentracije U, Ra i Rn u prirodi predstavljaju i najveće ekološke rizike. Međutim, kao značajni izvori zračenja iz prirode pojavljuju se i oreoli rasejavanja i/ili lokalne koncentracije ovih elemenata u tlu, vodama i vazduhu.

U stenama oko ruda uranijum obrazuju se relativno slabije izraženi oreoli rasejavanja uranijuma, radijuma i radona. U rudama i stenama oko rude po pravilu je postignuta ravnoteža U-Ra-Ra.

Sekundarnim geohemijskim procesima mogu oko ruda uranijuma ili drugih ruda koje sadrže uranijum kao prateći element kao i oko mineralizacija uranijuma da se obrazuju široki i lokalno intenzivni oreoli rasejavanja U, Ra i Rn u vodama, zemljištu i vazduhu. Po pravilu, zbog razlika u supergenoj geohemiji ovih elemenata [3;4], dolazi do narušavanja ravnoteže U-Ra-Rn, odnosno obrazuju se manje ili više razdvojeni oreoli U, Ra i Rn. U pogodnim geohemijskim i geološkim uslovima, kroz oksidaciono-redukcione reakcije i druge geohemijske procese, može da dođe do obrazovanja takvih oreola disperzije ovih elemenata koji predstavljaju odredjene ekološke rizike, kako zbog prostora na kome se pojavljuju tako i zbog direktnijeg dejstva radionuklida. Ove fenomene i ekološke rizike jasno ilustruju i prikazane situacije u Barbeškom basenu i na lokalitetu Garaši na Bukulji.

U Barbeškom basenu raelativno siromašne mineralizacije uranijuma se pojavljuju plitko i u interakciji podzemne vode-mineralizacija u pogodnim geohemijskim uslovima obrazovani su široki hidromorfni oreoli rasejavanja uranijuma, lokalno sa veoma visokim sadržajima uranijuma. Pritom, sadržaji Ra u vodama su uglavnom niski a sadržaji Rn su mestimično takođe visoki. Kako se ovi geohemijski oreoli disperzije nalaze u naseljenom području, odnosno obuhvataju prostore sa kućama, domaćinstvima i baštama, predstavlju značajne ekološke rizike.

Na lokalitetu Garaši na Bukulji, u širem području pojavljivanja uranovih ruda pojavljuju se na znatnom prostoru lokalno visoke koncentracije Rn u vazduhu u zemljištu. Mada se rude uranijuma nalaze u dubini od oko 100-150 m i dublje,

pogodni geološki i geohemijski uslovi doveli su do široke i intenzivne disperzije Rn na znatnom prosrtoru i do znatnog rastojanja od rudnih tela. Pogodna strukturna priprema (rasedne zone) omogućava difuziju radona i njegovo lokalno koncentrisanje uz strukture u vazduhu u zemljištu. Područje sa oreolima i visokim koncentracijama Rn obuhvata deo sela Garaši, na kome se nalaze kuće i domaćinstva, te predstavlja područje visokog ekološkog rizika.

Na osnovu generalnih razmatranja pojavljivanja visokih koncentracija uranijuma, radijuma i radona u tlu, vodama i vazduhu kao i razmatranja ovih fenomena u Barbeškom basenu i na lokalitetu Garaši na Bukulji, očigledna je potreba sistematskih i detaljnih geohemijskih istraživanja u područjima sa pojavama ne samo uranijumovih ruda već i siromašnih mineralizacija. Takva istraživanja omogućavaju procenu ekoloških rizika koje predstavljaju različite koncentracije ovih radionuklida kao i postavljanje odgovarajućih mera zaštite stanovništva.

LITERATURA

[1] Dangić, A., The environmental geochemistry and health: Impact of ore deposits and ore usage, A. Dangić, ed., Investing. Mineral Raw Materials and Environmental Protection, Agile 92, 19-23, 1992, SIT RGM, Belgrade.

[2] Dangić, A., Gordanić, V., Dangić, J., Ore deposits, mineralisations and geochemical dispersion of radioactive elements as potential environmental problems in Serbia, A. Dangić, A., ed., Investig. Mineral Row Materials and Environmental Protection, Igalo 92, 27-31, 1992, SIT RGM, Belgrade.

[3] Dangić, A., Jonizujuće zračenje i radionuklidi u prirodi: izvori, poreklo, geohemijski procesi i zdravstveni rizici, Ova monografija, xx-xx, 1994, Beograd.

[4] Dangić, A., Geohemija, A. Dangić i I. Krstanović, urednici, Geološka terminologija i nomenklatura, III: Geohemija, kristalografija, mineralogija, 1-88, 1983 Zavod za RGP RGF, Univ. u Beogradu, Beograd,.

[5] Hem, J.D., Study and interpretation of the chemical characteristics of natural water, U.S. Geol. Surv. Water-Supply Paper, 2254, 263.

[6] Gordanić, V., Istraživanja urana u tercijarnim basenima Srbije - geohemijski deo, 1990, FSD Geoinstituta, Beograd

[7] Višić, S., Pojave i ležišta urana u oblasti planine Bukulje, Radovi Geoinstituta, 1, 45-60, 1961, Beograd.

[8] Protić, D., Pregled hidrogeohemijskih ispitivanja u granitoidima Bukulje sa aspekta rudonosnosti, Radovi Geoinstituta, 28, 213-219, 1993, Beograd.

[9] Simić, V., Istraživanja urana u oblasti Bukulje u 1979: Geofizički deo, Izveštaj (nepublikovan), FSD Geoinstituta, Beograd, 1979.

[10] Omaljev, V., Raspodela urana u južnom delu granitskog masiva Bukulje, Radovi Geoinstituta, 16, 145-168, 1983, Beograd.

[11] Omaljev, V., Raspodela urana, teškorastvornog i lakorastvornog urana u južnom delu granitskog masiva Bukulje, Radovi Geoinstituta, 17, 89-116, 1984, Beograd.

GEOHEMIJSKI PROCESI I GEOHEMIJSKE ANOMALIJE URANIJUMA, RADIJUMA I RADONA U TLU, VODAMA I VAZDUHU KAO EKOLOŠKI RIZICI

Adam Dangić , Vojin Gordanić , Jelena Dangić

Rezime:

Uranijum i njegovi potomci radijum i radon su u ekološkom pogledu najznačajniji prirodni (zemaljski) radionuklidi, jer se zahvaljujući svojim geohemijskim specifičnostima, mogu lokalno da koncentrišu u tlu, vodama i vazduhu. U zavisnosti od geohemijskih faktora i procesa, pojavljuju se različiti tipovi ovih koncentracija, sa različitim efektima na stanovništvo, što pokazuju i primeri Barbeškog basena i Bukulje u Srbiji. U Barbeškom basenu, koji sadrži mineralizacije urana, obrazovana je hidrogeohemijska anomalija urana (13,5-500 μg/l) u delu sela Gornji Barbeš. Na planini Bukulji, gde se pojavljuju orudnjnja urana, atmogeohemijske anomalije radona u zemljištu (i preko 30 emana) obuhvataju i deo sela Garaši.

Ključne reči: geohemija; uranijum; radijum; radon; tle; vode; vaz- duh; ekološki rizici; Barbećki basen; Bukulja; Srbija.

GEOCHEMICAL PROCESSES AND GEOCHEMICAL ANOMALIES OF URANIUM, RADIUM AND RADON IN THE GROUND, WATER AND AIR AS ECOLOGICAL RISCS

Adam Dangić , Vojin Gordanić, Jelena Dangić

Abstract

Uranium and its doughters radium and radon are ecologicly most important Earth´s radionuclides, as they may form, due to their geochemical specificity, dangerous local concentrations in the ground, water and air. Depending on geochemical factors/processes, their concentrations vary in form and ef-ects to the population, as illustrated studies in the Barbeš Basin and the Bukulja Mt. in Serbia. In the Barbeš Basin, an area with poor uranium mineralizations, a hydrogeochemical uranium anomaly (13,5-500 μg/l) covers partly village of the Gornji Barbeš. At the Bukulja Mt., in the area with uranium ores, a zone with radon content in soil air localy as high as >30 eman include parts of village of the Garaši.

Key words: Geochemistry, Uranium, Radium, Radon, Soil, Water, Air, Ecological risks, Barbeš Basin, Bukulja Mt., Serbia.

4.

PREGLED RADIOAKTIVNIH MINERALA JUGOSLAVIJE

Biljana Zrnić, Suzana Erić
Geoinstitut, Rovinjska 12, Beograd

1. UVOD

U prirodi su glavni nosioci radioaktivnosti uran i torijum i ova dva elementa izgrađuju najveći broj radioaktivnih minerala, a osim njih u ovu grupu se ubrajaju i minerali u kojima se ovi elementi javljaju kao primese i nečistoće.Zbog različitih geohemijskih osobina ova dva oksifilna elementa u prirodi su češći minerali urana u odnosu na minerale torijuma. Uran se u prirodi javlja u obliku U^{4+} jona, koji lako oksiduje u U^{6+}, koji gradi uranil jon ($U^{6+}O_2$) i koji obrazuje veliki broj minerala. Torijum se javlja u obliku Th^{4+} jona koji ne oksiduje.

Minerali urana mogu se svrstati u dve grupe prema obliku u kome se uran javlja: jon U^{4+} karakteriše uranat tip minerala (okside, fosfate i silikate) dok uranil jon $U^{6+}O_2$ gradi uranil tip minerala.

Jon U^{4+} može biti izomorfno zamenjen za Zr^{4+}, elementima retkih zemalja, Ca^{2+}, Fe^{2+} u oksidima, silikatima i fosfatima, dok se kod uranil tipa mogu javiti sadržaji ovih elemenata zbog veličine i specifičnog oblika uranil jona. Jon Th^{4+} je izomorfan sa Zr^{4+} i elementima retkih zemalja uglavnom Ce^{4+}.

Boja radioaktivnih minerala zavisi od hemijskog sastava tako da oksidi i silikati uranat tipa imaju tamnu boju, crnu do smeđu dok su uranil minerali jarko obojeni: žuto, zeleno do narandžasto crvene.

Za radioaktivne minerale bitne su dve strukturne karakteristike: metamikt stanje i meta forme.

Metamikt stanje je pojava da se pri delovanju alfa čestica (verovatno i drugih) koje nastaju pri dezintegraciji U, Th i njihovih produkata, radioaktivni minerali trpe promene u strukturi tako da se pri određenim ispitivanjima (optička, rendgenska) ponašaju kao amorfni čak i kada su razvijene kristalne forme. Samo neki od preko 200 poznatih radioaktivnih minerala pokazuje metamikt stanje: alanit, cirkon, torit, davidit, branerit, gadolinit i dr.[1,2].

Meta forme su karakteristike za minerale koji u svom hemijskom sastavu sadrže molekule vode i koja je delom zeolitska tj. neki broj molekula vode može biti izgubljen, a da pri tom ne dolazi do promena u strukturi. Promene osobina minerala su neznatne. Faza koja sadrži manji broj molekula vode dobija prekfiks meta, tako imamo autunit - metaautunit, torbernit - metatorbernit i dr. Za radioaktivne minerale karakteristične su još: fluoroscencija, pojava polihroičnih oreola i kod metamikt minerala pojava radioaktivnih fraktura. Radioaktivni minerali kod drugih petrogenih minerala (kvarc, feldspati, liskuni i dr.) mogu izazvati pojavu termoluminiscencije.

2. PREGLED RADIOAKTIVNIH MINERALA

Radioaktivni minerali konstatovani na prostorima bivše Jugoslavije klasifikovani su prema hemijskom sastavu na uranske i torijumske minerale, a minerali urana su razdvojeni prema načinu postanka na primarne i sekundarne, gde izuzetak predstavlja pehblenda čije poreklo može biti primarno i sekundarno (tab.1.).

Tabela 1. Radioaktivni mineralni pronađeni na teritoriji SFRJ

Minerali urana		Minerali torijuma	Minerali nosioci radioaktivnosti
primarni	sekundarni		
Uraninit	Autunit	Torit	Cirkon
Pehblenda	Torbernit	Alanit	Monacit
Davidit	Metatorbernit		Ksenotim
Kofinit	Zipeit		Kolumbit
Betafit	Uranofan		Epidot
	Dumontit		
Branerit	Fosforuranilit-		Radiobarit
	-Renardit		

2.1 Primarni minerali

Primarni minerali urana predstavljaju jedinjenja u kojima se uran javlja u obliku U^{4+} i U^{6+}. Mada se jon U^{4+} nalazi u primarnim magmama, zbog niskih koncentracija U ne kristališe direktno, već iz pegmatitskih i hidrotermalnih rastvora.

2.1.1 Uraninit i pehblenda

Uraninit i pehblenda su minerali identičnog mineralnog sastava koji se u idealnom slučaju može predstaviti formulom UO_2, ali zbog oksidacije U^{4+} u U^{6+} obično se radi o mešavinama različito valentnih oksida U. Sadržaj urana kreće se od 46,5 do 88,2%

Uraninit je otkriven prvi put kod nas zajedno sa autunitom u pegmatitima Dobrotića južno od Prokuplja 1947.g. od strane M.Ristića [3,4]. On je kao mineraloška pojava konstatovan u različitim petrološkim sredinama: granitima, vulkanitima, metamorfitima, peščarima i dolomitima. Samo u pojedinim pegmatitima (okolina Prokuplja, Pelagonida i Stare planine) uraninit je konstatovan makroskopski [3,4,5,6].

Uraninit se javlja kao idiomorfno kristalan, forme kocke i oktaedra ili u obliku zrna nepravilnog oblika, crne boje. Veličina zrna kreće se od nekoliko desetina milimetra do 3 cm u pegmatitu Drenovac u Pelagoniji, u pegmatitu sastav Reke u okolini Prokuplja javlja se u kristalima do 3 mm koji sa metamikt cirkonom grade gnezdaste zrnaste agregate do 10 cm u prečniku [5].

Uraninit se javlja kao akcesorni sastojak u stenama u međuprostorima petrogenih minerala, a ponekad se javlja kao inkluzija u njima. U granitima Bukulje uraninit se javlja u paragenezi sa sulfidima Fe,Pb,Zn,Cu i As [7,8,9], Stare planine [10], Motajice [11], u vulkanitima Golije [12], u metamorfnim stenama Stara planina - Aldina Reka [10], Vitolište, Peštane, Selce [13-17]. U dolomitima devonske starosti sa sulfidima Cu: halkopiritom, bornitom, halkozinom i drugim na planini Pogorelici u gornjem toku reke Neretve [18].

Uraninit u uzorcima pegmatita ispitivan je radiometrijski, spektrohemijski i rendgenski. Radiometrijska ispitivanja izvršena su na uzorcima iz pegmatita Bukulje, Vidovače, Drenovca i iz dolomita sa planine Pogorelice. Rezultati ovih analiza prikazani su na tabeli 2.

Tabela 2. Sadržaji urana i torijuma Bukulja [7], Vidovača, Drenovac [5],Pogorelica [18]

% sadržaj	Bukulja	Vidovača	Drenovac	Pogorelica
U	82,11	69,17	71,10	78,00
Th	0,1	0	0,005	0,022

Rezultati radiometrijskih ispitivanja pokazali su da se radi o čistim uraninitima, naročito sa Bukulje. Za ispitivane uraninite karakterističan je nizak sadržaj Th što može da ukaže na eventualno niske temperature obrazovanja.

Spektrohemijske analize izvršene su na uzorcima iz pegmatita i rezultati ovih ispitivanja prikazani su na tabeli 3. Ovi rezultati su potvrdili da je glavni element U, dok su sadržaji Th niski. Prisustvo Si, Al i drugih elemenata ukazuje na neznatno prisustvo drugih minerala. Sadržaji Pb, Cu i Ba normalni su za uraninit. U svim uzorcima odsustvuju elementi retkih zemalja.

Tabela 3. Spektrohemijske analize uraninita (ppm) [5,7]

	Bukulja	Vidovača	Drenovac
U	gl.elm.	gl.elm.	gl.elm.
Th	3160	-	-
Cu	3160	-	100
Pb	2000	-	1000
Fe	2000	316	-
Ca	316	316	316
Si	1000	2000	3160
Al	316	500	-
Mg	100	-	-
Ba	-	-	316

Rendgenska ispitivanja potvrdila su da se radi o uraninitu. Dimenzije elementarne ćelije prikazane su na tabeli 4.

Tabela 4. Dimenzije elementarne ćelije uraninita

Lokalnost	a_0 /A/	Literatura
Bukulja	5,4679	[7]
Vidovača	5,479	[18]
Drenovac	5,465	[19]
Aldina Reka	5,52	[10,19]

Na osnovu dimenzija elementarne ćelije uraninita i ispitivanja hemijskog sastava uraninit iz Bukulje, Vidovače i Drenovca predstavlja uraninit sa niskim sadržajem Th. Uraninit iz Aldine Reke ima nešto veće dimenzije elementarne ćelije što je posledica visokog sadržaja Th koji utiče na njeno povećanje. Izračunata vrednost sadržaja torijuma u ovom uraninitu je 28,8% i odgovara toro-uraninitu mada je predhodno determinisan kao torijanit [19].

Pehblenda je znatno prisutnija u odnosu na uraninit, čak do ekonomski značajnih sadržaja. Sva ležišta urana sadrže pehblendu kao vodeći mineral. Ona se u pojedinim lokalnostima makroskopski zapaža u vidu tamnih žilica i pega u steni. Vrlo često je konstatovana kao prevlaka na zrnima drugih minerala, a u pojedinim lokalnostima javlja se u vidu sitnozrnih disiminacija koje ponekad obrazuju dendritična nagomilanja. Takođe su konstatovani kolomorfni agregati, a u rudnom mikroskopu zapažene su ritmičke, kolomorfne strukture. Uglavnom je konstatovana rudno mikroskopskim ispitivanjima, a rendgenski je analizirana u hidrotermalnim žicama na Staroj planini. Dimenzije elementarne ćelije a_0 kreću se od 5,415 do 5,442 A [18]. Osim navedenih podataka ne postoje drugi podaci o ispitivanju ovog minerala što je

uzrokovano niskim sadržajem urana, neznatnom veličinom zrna u steni, a postupcima koncentrisanja ruše se paragenetski odnosi i često je nemoguće dobiti teški koncentrat zbog trošnosti ili rasejanosti u steni.

Pojavljivanje pehblende vezano je za različite petrološke sredine a genetski se razlikuju primarne i sekundarne pehblende. Svakako najznačajnije pojavljivanje pehblende i druge uranske mineralizacije imamo u jedino aktivnom ležištu na teritoriji Slovenije - žirovski Vrh. Ovo ležište je lokalizovano u gredenskim sivim peščarima i pripada infiltracionom tipu ležišta [20]. U ležištu se pehblenda pojavljuje na tri načina:

- disperzno rasuta u cementu peščara, to su sitnozrni agregati čija je veličina oko 10 mikrometara, dok se krupniji sferoidni agregati javljaju u najintenzijem delu orudnjenih partija;
- u vidu tankih oreola oko zrna petrogenih minerala,
- duž prslina i pukotina providnih minerala i organske materije.

U oksidacionoj zoni ležišta prisutni su sekundarni minerali urana autunit, torbernit - metatorbernit, fosforuranilit - renardit, gumit i dr.

Pored žirovskog Vrha otkriveno je još nekoliko ležišta urana i to: Zletovska Reka (Makedonija) žično hidrotermalnog tipa, lokalizovano u hidrotermalnim andezitima. U ležištu je konstatovana pehblenda, sekundarni minerali urana i sulfidi: pirit, galenit, sfalerit, tetraedrit, bravoit i dr. [22].

Na Staroj planini nekoliko manjih ležišta i brojne pojave u: Mezdreji, Gabrovnici, Kalni, Aldinoj Reci, Papratni, Srnećem Dolu, Aldincu, Trepetljaku i dr. Ekonomski najinteresantnije pojave vezane su za granite u kojima je pehblenda stvorena u hidrotermalnoj fazi od kata do mezotermalnih uslova, a mlađa praškasta pehblenda obrazovana je na nižim temperaturama [6,10,23].

Na Bukulji su konstatovana dva nisko procentna ležišta Paun Stena i Cigankulja. Ona pripadaju žičnim hidrotermalnim ležištima sa pehblendom, kofinitom i sulfidima piritom, sfaleritom, galenitom i dr. [8,9,24].

Mineralizacije urana u Srbiji utvrđene su na Goliji u biotitskom andenzitu sa uraninitom i sulfidnim mineralima [12], na području Mandre na kontaktu sericitsko-hloritskih i grafitičnih škriljaca [25], u Pb-Zn-Sb rudniku Veliki Majdan [26], u Slatinskoj Reci [27]. Na teritoriji Makedonije: u okolini Vitolišta [13,27,28,29], kod Strumice lokalnosti Bizava Ritka i Ciganski Potok [15,16], na planini Belasici [17], u Pb-Zn rudniku Dobrovo [30], na Osogovu, rudniku Cr Lojane, Spančevu, Trijeski, na planini Nidže [31].

2.1.2. Davidit

Davidit predstavlja retku mineralnu vrstu koja je konstatovana u nekoliko lokalnosti u svetu. Kod nas je davidit pronađen u lokalnosti Crni Kamen, a kasnije i u Nežilovu [19]. Davidit ima opštu formulu: $AB_3(O,OH)_7$ gde je: A = U, Fe^{2+}, Pb, Mn, Cr, Ca, Na, Th a B = Ti, Fe^{3+}, V, Cr. Kristališe heksagonalno, a sadržaji urana variraju od 4,6 do 20%. Davidit iz Crnog Kamena pronađen je u humusnom zemljištu sa kvarc sijenitskom podlogom. Pronađeni uzorci minerala su bili krupni, veličine od

1 do 15 cm sa ponekom izraženom poljosni i predstavljaju fragmente krupnijeg kristala. Boje je crne, smolastog sjaja. Optički izotropan zbog metamikt stanja. Mineraloški je detaljno proučen, a rezultati hemijskih analiza davidita prikazani su na tabeli 5. [32]. Rezultati pokazuju sadržaj urana (preračunato kao U_3O_8) od 6,46 [33] do 10,39%. U odnosu na druge poznate davidite, davidit iz Crnog Kamena karakteriše visok sadržaj olova (PbO 7,17%).

U lokalnosti Nežilovo pronađen je davidit koji je V.Vujanović izdvojio kao varijetet Miomirit, a koji se odlikuje niskim sadržajem urana (U_3O_8 - 2,68), visokim sadržajem Pb (PbO -11,83%) i prisustvu delova koji nisu metamiktizirani [34]. I ovaj davidit je detaljno mineraloški ispitan, a oba minerala su potvrđena Rö analizom.

Tabela 5. Hemijske analize davidita

	Crni Kamen	Nežilovo
TiO_2	55,58	47,91
Fe_2O_3	9,44	29,96 (zbir FeO+Fe_2O_3)
Cr_2O_3	0,15	
V_2O_5	0,36	
U_3O_8	10,39	2,68
FeO	13,50	
ZrO_2	0,27	
Ce_2O_2	1,55	6,21 (Rz + Th oksidi)
Na_2O	0,08	
CaO	0,06	
ThO_2	0,28	
PbO	7,17	11,83
H_2O	0,10	
Al_2O_3	-	1,54
Nb_2O_5	-	0,06
SiO_2	0,32	
MnO	0,26	0,07
	99,51	99,96

2.1.3. Kofinit

Kofinit je po hemijskom sastavu $U(SiO_4)_{1-x}(OH)_4$ i može da sadrži od 40,90 do 60,20% urana. Kristališe tetragonalno. Kofinit je konstatovan u teškoj frakciji uzoraka sa Bukulje elektronskom mikroanalizom. Kofinit kao i drugi silikati urana teško je odrediti optički zbog male veličine zrna, odnosno obično su to agregati intimno srasli sa kvarcem.

Kvantitativnom analizom dobijeni su sledeći podaci:

Tabela 6. Analize kofinita [8,24]

%	UO_2	SiO_2	CaO	MgO	K_2O	PbO
A	73,59	17,81	1,91	0,11	0,15	0,06
B	70,57	19,28	1,64	0,19	0,36	0,12
C	71,03	20,93	1,92	0,29	0,30	0,25

Kofinit je na isti način utvrđen u Slatinskoj Reci, a verovatno i u Žirovskom Vrhu [24].

2.1.4. Betafit

Betafit je po hemijskom sastavu $(U,Ca)\ (Nb,Ta,Ti)_3\ O_9\ n\ H_2O$, sadrži od 15 do 21,50% U i Th od 1 do 1,10%.

Betafit je rudnomikroskopski konstatovan u amfibolitskoj seriji sela Peštana. On je predstavljen zrnima kvadratnog preseka veličine 0,08 do 1 mm, crveno mrke boje i izotropan. Pojavljuje se u vidu inkluzija u epidotu, biotitu i apatitu kada stvara polihroične oreole. Javlja se i u pukotinama ovih minerala ili u agregatima sa cirkonom. Potvrđen je spektrohemijski i rendgenski [35]. Pojavu betafita navodi M.Ristić kod Crnog Kamena, ali nema nikakvih podataka.

2.1.5.Branerit

Branerit je po hemijskom sastavu $(U,Ca,Fe,Y,Th)_3\ (Ti,Si)_5\ O_{16}$ i sadrži od 26,50 do 43,60% U i od 0,26 do 11,30% Th. Kristališe rombično. On je konstatovan jedino u lokalnosti Topolčane kod Prilepa u silifikovanim partijama kvarc - sijenita. Utvrđen je od strane N.Mihailović Vlajić 1959.g. prilikom ispitivanja masenih proba. [33,36].

Branerit se javlja u obliku prizmatičnih kristala veličine ispod 0,1 mm i u obliku nepravilnih zrna žuto mrke do crne boje. Prelom je školjkast i na prelomnim površinama je staklastog sjaja, inače je prekriven mrkim produktima raspadanja. Neprovidan je i metamiktan.

Radiometrijskom analizom utvrđen je sadržaj urana od 8 do 11,50%, a torijuma od 4,30 do 5%.

Spektrohemijskom analizom (tabela 7) kao glavni elementi utvrđeni su Ti,U,Th i Nb, a kao primese prisutni su Mn,Pb,Y,Zr,Ba,Sr i elementi retkih zemalja (La,Dy,Gd,Er,Eu).

Rendgenskom analizom posle zagrevanja na 900°C potvrđeno je prisustvo ovog minerala.

Tabela 7. Spektrohemijska analiza branerita

Glavni elementi: Ti, U, Th, Nb	
Mn	1000 (ppm)
Pb	3160
Y	1000
Zr	1000
Ba	~1000
Sr	~1000
La	>1000
Dy	>1000
Gd	>1000
Er	>1000

2.2. Sekundarni minerali urana

Sekundarni minerali urana obuhvataju minerale u kojima se uran javlja u obliku uranil jona. Za minerale ove grupe zajedničko je da nastaju alteracijom primarnih minerala u oksidacionim uslovima.

2.2.1. Autunit

Autunit je po hemijskom sastavu $Ca(UO_2)_2$ $(PO_4)_2$ nH_2O [10-12] može sadržati od 48,30 do 50,10% U, kristališe tetragonalno.

Autunit je prvi radioaktivni mineral pronađen kod nas od strane M.Ristića 1947.g. u pegmatitu južno od Prokuplja-Dobrotić [4,15]. Ovaj mineral se javlja u obliku skrama i prevlaka po petrogenim mineralima, a ponegde su zapaženi žuto zeleni kristali.

Autunit je optički određen, a potvrđen spektrohemijski. Rendgenskim ispitivanjem utvrđeno je da se radi o meta-autunitu koji ima identičan hemijski sastav, ali sadrži 8 molekula vode.

Autunit iz Žirovskog Vrha potvrđen je metodom fluorescencije i rendgenski, a mikrohemijskim testovima dokazano je prisustvo Ca,U,P i u tragovima Cu i Fe [37].

Kao sekundarni mineral nastao alteracijom primarnih minerala urana konstatovan je pored navedenih lokalnosti u pegmatitima Cera [5], granitima Bukulje [8,9], okolini Vitolišta i Lozanice [13,28,29], u oblasti Belasice lokalnosti Bajrambos i Kaladžar[17], u pegmatitu Kukavice gde nisu konstatovani primarni minerali urana i gde se njihova geneza vezuje za apatit koji sadrži 50 ppm U.

2.2.2. Cipeit

Cipeit je po hemijskom sastavu $(UO_2)_3$ $(SO_4)_2$ (OH) $8H_2O$, monokliničan. Pored ostalih sekundarnih minerala u pegmatitu Dobrotić kod Prokuplja pominje se i cipeit, ali bez ikakvih drugih podataka.

2.2.3. Uranofan

Po hemijskom sastavu je $CaO\ 2UO_3\ 2SiO_2\ 6H_2O$, kristališe monokliničnо. U oblasti Belasice (Plačkovica) pored autunita pominje se uranofan u zoni škriljavih i feldspatiziranih riolita [17], takođe nisu poznati drugi podaci.

2.2.4. Torbernit

Po hemijskom sastavu je $Cu(UO_2)_2\ (PO_4)_2\ 12H_2O$, a sadrži do 47,10% U, kristališe tetragonalno.

Torbernit se javlja u obliku sitnih kristala zelene boje koji obrazuju skrame po zrnima petrogenih minerala. U ležištu žirovski Vrh prisutan je u vidu sitnih kristala do 1 mm i tankih paralelnih pločica. Torbernit je potvrđen rendgenski, a fluoroscentnom analizom je dokazano prisustvo Cu, U i niski sadržaji As. Prisustvo fosfora dokazano je mikrohemijskom analizom [37].

Torbernit je konstatovan još u pegmatitima Prokuplja i Kukavice[5,15], na području Belasice kod Bajrambosa [17].

2.2.5. Metatorbernit

Ovaj mineral ima identičan hemijski sastav kao i torbernit, ali sadrži 8 molekula vode. Konstatovan je u žirovskom Vrhu gde je utvrđen na osnovu rendgenskih ispitivanja i razlike u indeksu prelamanja u odnosu na torbernit [37]. Javlja se još u okolini Lozanice i lokalnosti Krst u oblasti Belasice [17,29].

2.2.6. Dumontit

Dumontit je po hemijskom sastavu $Pb_2(UO_2)_3\ (PO_4)_2\ (OH)_4\ 3H_2O$, kristališe rombično.

Ovaj mineral konstatovan je jedino u ležištu žirovski Vrh. Javlja se u obliku tankih prevlaka i skrama svetlo žute, žute do mrke boje. Identifikacija je izvršena na osnovu dijagrama praha, rendgen-fluorescentne i spektralne analize. Spektralna analiza pokazala je da su glavni elementi, U,Pb i P, a sporedni Fe,Sr,Al,Mg,Cu i V [37].

2.2.7. Gumit

Po hemijskom sastavu predstavlja smešu sekundarnih minerala urana. Ova mineralna vrsta konstatovana je u pegmatitu Prokuplja u lokalnosti šarci gde se javlja oko kristala uraninita, a drugi oreol koji sledi posle gumita je oreol autunita [5]. Javlja se i u Žrovskom Vrhu.

2.2.8. Fosforuranilit - renardit

Ova izomorfna serija ima s jedne strane fosforuranilit koji je po hemijskom sastavu $Ca(UO_2)\ (PO_4)_2\ (OH)\ 7H_2O$, a sa druge strane renardit gde je Ca zamenjen

Pb. Kristališu rombično.

Ova izomorfna serija konstatovana je zajedno sa autunitom i torbernitom u pegmatitu Prokuplja u kome se javlja u vidu prevlaka sastavljenih od mekih ljuski žute boje [15].

U Žirovskom Vrhu javljaju se u vidu prevlaka zajedno sa dumontitom. Rendgen-fluorescentnom analizom utvrđeno je prisustvo U, Pb, malih količina As, Fe, Cu koje potiču od nečistoća. Mikrohemijskom reakcijom dokazano je prisustvo Ca i P, a promene hemijskog sastava su varirale od jednog do drugog uzorka i nisu nađeni krajnji članovi serije. [37].

2.3 Minerali torijuma

2.3.1. Torit

Torit je po hemijskom sastavu Th Si O_4 i može da sadrži 64,10% Th i 10,10% U. Kristališe tetragonalno.

Ovaj mineral se kao akcesorni javlja u granitima, pegmatitima i nanosima, a konstatovan je mineraloškom analizom masenih proba.

Izdvojene količine torita su male pa su vršena samo optička i spektrohemijska ispitivanja.

Torit se javlja u obliku nepravilnih zrna ili nepotpunih kristala, a retko je idiomorfan kada se vide forme prizme i bipiramide. Pri ispitivanju veštačkih šlihova granita Jugoslavije [11] izdvojeno je nekoliko vrsta torita po boji i konstatovano da boja ukazuje na stepen hidratacije. Svež torit je zelen kao trava, maslinasto zelen i narandžast ukazuju na rast stepena hidratacije, a kod mrkih je on najviši. Zeleni torit konstatovan je u granitima Pohorja, Papuka, Moslavine, Motajice, Bukulje i dr., maslinasto zelen na Staroj planini, Neresnici, Rudnoj Glavi, narandžasti u Selečkoj, Kruševu, žuti karakteriše granite Plačkovice, Ograždena, a mrki granite Selečke i Babune [11,38,39].

Sitni kristali torita konstatovani su u pegmatitima Juhora, Cera, Bukulje i Gornjana [7].

U nanosima Bukulje i Gobeljske reke torit je svetlozelene boje. Optički izotropan zbog metamikt stanja. Spektrohemijski je analiziran torit iz nanosa Bukulje u kome su glavni elementi Th i Si, a u maloj količini javljaju se U, Fe, Pb, Al [40,41].

2.3.2. Alanit

Alanit je po hemijskom sastavu $(Ca,Ce,Th)_2$ $(Al,Fe,Mg)_3$ Si_3O_{12} (OH), sadrži od 0 do 2,95% U i do 4,35% Th, a kristališe monokliničnо. Analit je prisutan kao akcesorni mineral u granitima i pegmatitima u kojima se javljaju izduženi prizmatični kristali veličine do 0,5 mm u granitima i do 5 cm u pegmatitima. Boja je mrka do crna.

Radiometrijske analize alanita iz Aldine Reke pokazale su neujednačene sadržaje urana od 0 do 100 ppm i od tragova do 0,6% Th [10].

Alanit nanosa Bukulje sadrži 400 ppm U i 16.800 ppm Th [40].

Spektrohemijska ispitivanja izvršena na alanitima iz pegmatita Pelagonije u lokalnsotima Kapinovo i čanište i nanosa Bukulje dati su na tabeli 8., a gde su glavni

Tabela 8. Spektrohemijske, hemijske i radiometrijske analize

	Rb	Ba	K	Pb	Sr	La	Ce	Th	Dy	Ca	Y	U	Yb	Na	Cu	Mn	Zr
Alanit-Kapinovo		270	+	320	1500	gl.	gl.	7399		+	800	588,8	+	+	10	2300	
- čanište		70	+	100	600					+	50		+	+		316	
- Bukulja(n)				32		1%	1%	316		gl.	>1000					316	700
Cirkon-Bukulja(n)				32		1600					1600		1000				gl.
- Crni Kamen		1000		75	316	100					3160		+				gl.
- Prokuplje			+				-				200	11032			+	+	gl
- čanište				20					+	+	900	+	+		10		gl.
Monacit-Bukulja(n)				70		>1%	>1%	>1000		>1000	3160					32	3160
Kolumbit-Kukavica																1000	1000
- Prokuplje								104		316	2000	1685				3160	
- Juhor															70	3160	
Epidot-Drenovci		100	+	280						+	32			+		1500	42
- Drenovci	32	32	+	200	1700			-		+	60	6432		+	10	1100	32
Epidot-čanište		-	+	500	700			905		+	45	112		+		900	
- čanište		270	+	400	500			68		-	32	16		-		750	

		Fe	Se	Ni	Li	Mg	Sn	Nb	Ta	V	Cr	Ti	Al	Si	Be	Ga	P	Co
Alanit-Kapinovo		gl.			2	5000				85		1000	+	+		20		
- čanište		+	17		1,5	1000	50			38	1,5	1000	+	+		60		
- Bukulja(n)		gl.				gl.	530			316		>1000	+	+				
Cirkon-Bukulja(n)	+	178					3160							gl.				
- Crni Kamen	+5		200	180			tr							gl.	142			
- Prokuplje	+	2000			15	500							1000	gl.				
- čanište	+													gl.				
Monacit-Bukulja(n)		>1000										447		3160			>1%	
Kolumbit-Kukavica				1000			250	+	+			1000	1000	2000				
- Prokuplje							250	+	+			1000	1000	2000				
- Juhor							250	+	+			2000	500	3160				316
Epidot-Drenovci		+	15		10	500	10			32		1000	+	+		60		
- Drenovci		+	20		19	1000	10	-		45		1000	+	+		60		
Epidot-čanište		+	25		10	2000	80			80		700	+	+		100		
- čanište		+	25		4,2	2000	70			80		1000	+	+		80		

elementi Ca, Fe, Al, Si, Ce i La, a primese Mn, Ti i drugi. Alanit Kapinovo pokazuje visok sadržaj Th u odnosu na ostale alanite [5,40].

Alanit je još konstatovan u granitima Motajice, Bukulje, željina i nanosima Bukulje i Gobeljske Reke [5,8,10,38,40,41].

2.4 Minerali nosioci radioaktivnosti

Ovu grupu predstavljaju minerali u kojima U i Th mogu da se jave u niskim sadržajima ili kao nečistoće.

2.4.1. Cirkon

Po hemijskom sastavu je Zr SiO_4, a može da sadrži do 3% U i do 13% Th. Kristališe tetragonalno.

Cirkon je čest akcesorni mineral, a radioaktivni cirkoni konstatovani su u granitu i nanosu Bukulje, u pegmatitima Prokuplja u lokalnosti Dobrotić, Sastav Reke, šarci, zatim u Crnom Kamenu i Selcu [3,5,33,35,40].

Način pojavljivanja identičan je kao i kod običnih cirkona. Boja je takođe ista stim što mrko žuti i mrko zeleni cirkoni su delimično metaklazirani. Na tabeli 9. prikazani su različiti sadržaji U određeni radiometrijskom analizom.

Tabela 9. Radiometrijske analize cirkona

Sadržaj	Bukulja (nanos)	Bukulja (granit)	Crni Kamen	Dobrotić (pegmatit)
U	1300 ppm 1,04%	0,32%	-	1,1%
Th	0 1,19%	0,14	-	-

Spektrohemijske analize cirkona (tabela 8) pokazale su da su glavni elementi Zr, Si, Hf, Y, La, dok su ostali elementi prisutni u sadržajima koji su normalni za cirkon.

2.4.2. Monacit

Monacit je po hemijskom sastavu (Ce,La)PO_4, a može da sadrži do 28,20% Th i 1,09% U. Kristališe monokliničnо.

On se javlja u obliku prizmatičnih kristala ili u obliku zaobljenih zrna. Boje žute sa zelenom nijansom ili sa narandžastom nijansom. Fluoroscencija je utvrđena kod uzoraka iz nanosa Bukulje i Gobeljske Reke [40,41].

Radiometrijskom analizom utvrđeni su sadržaji urana i torijuma u uzorcima iz nanosa Bukulje i to: 3600-7100 ppm i 58100-77600 ppm Th [40] i granita Bukulje 0,66 do 0,85% U i 6,01 do 6,57% Th [8]. Rendgenski i spektrohemijski monacit je potvrđen u nanosima Bukulje /tabela 8/.

Ovaj mineral konstatovan je kao radioaktivni i u granitu Motajice, zatim Stalačka brda, a takođe i u pegmatitima Gornjana, Juhora i Ograždena [33,11,5].

2.4.3. Ksenotim

Po hemijskom sastavu je YPO_4, a sadrži do 3,6% U i do 3,3% Th, kristališe tetragonalno.

Ksenotim je relativno čest radioaktivni mineral, a uzorci sa povišenim sadržajem U i Th konstatovani su u granitima Bukulje i Motajice. Predstavljen je bipiramidalnim kristalima koji su zamućeni i bledo žute boje. Pojavljuje se sa drugim radioaktivnim mineralima: alanitom, toritom, uraninitom i monacitom [40,38].

2.4.4. Kolumbit

Po hemijskom sastavu je $(Fe,Mn)(Nb,Ta)_2O_6$, a kristališe rombično.

Kolumbit je konstatovan od strane D.Nikolića 1957.g. u pegmatitima Kukavice i to je bio drugi nalazak ovog minerala na Balkanu. Nađen je u pegmatitskim žicama koje su interkalisane u kristalaste škriljce. Kristali kolumbita su pločasti, veličine do 2 cm. Boje je crne sa smolastim sjajem. Pored optičkih i rendgenskih ispitivanja urađena je i spektrohemijska analiza prikazana na tabeli 8. Karakteristično je da su sadržaji urana u ovom kolumbitu 16 puta veći od sadržaja torijuma. Isti slučaj je i sa kolumbitom iz pegmatita Prokuplja. [5,42].

2.4.5. Uranski epidot

Varijetet epidota sa sadržajem urana konstatovan je u pegmatitima Pelagonije u lokalnostima Vitolište, Drenovci i čanište, u amfibolitskoj seriji lokalnosti Crni Kamen i Peštane [5,33,16].

Uranski epidot iz pegmatita Vitolišta javlja se u obliku sitnozrnih agregata i kristalima koji su u pojedinim delovima i do dužine od 60 cm. Boja je bledo žuto-zelena do tamno zelena. Sadrži od 110-3250 ppm urana. Spektralne analize uranskih epidota prikazane su u tabeli 8.

2.4.6. Radiobarit

Radiobarit je nađen u lokalnosti Crni Kamen, zatim u Pb-Zn rudniku Dobrovo i na Goliji [33,30,12]. Nepravilna zrna mlečno belih do mednožutih radiobarita veličine su oko 0,2 mm u Crnom Kamenu, a u Dobrevu se javljaju lepe kristalne druze i do 2 cm veličine.

Radiometrijska analiza uzoraka iz Crnog Kamena pokazala je sadržaje od 0,08% U i 0,03% Th kod belog barita i od 0,02 do 0,06% U i 0,11 do 0,46% Th u tamnijem baritu. Barit iz Dobreva sadrži 28 ppm U i 3280 ppm Th.

Osim uranskog epidota i radiobarita u pojedinim lokalnostima javljaju se i radioaktivni sfen, apatit, rutil, biotit, opal i dr. Radioaktivne pojave konstatovane su i u ugljevima, vodama i dr., a o kojima ovde nije bilo govora.

3. ZAKLJUČAK

Pregled radioaktivnih minerala obuhvatio je 20 minerala koji su pronađeni na teritoriji bivše Jugoslavije. Najzastupljeniji su minerali urana, zatim minerali koji sadrže uran i torijum i dva minerala torijuma. Moguće je prisustvo većeg broja minerala s obzirom na teškoće koje se odnose na njihovo proučavanje s jedne strane zbog nemogućnosti direktnog ispitivanja što je prouzrokovano načinom pojavljivanja, a s druge strane zbog nemogućnosti identifikacije pojedinih mineralnih vrsta savremenim metodama ispitivanja.

LITERATURA

[1] Frondel C., 1958: Systematic Mineralogy of Uranium and Thorium, Geol.Survey Bull 1064.

[2] Heinrich E.Wm., 1958: Mineralogy and Geology of Radioactive Raw Materials, McGraw Hill, New York.

[3] Ristić M., 1957: Pegmatiti sa radioaktivnim mineralima i berilom iz okoline Prokuplja, Fond stručne dokumentacije Geoinstituta.

[4] Ristić M., 1969: Prvi nalazak minerala urana na teritoriji Jugoslavije, Radovi instituta za rudarsko-geološka istraživanja (IGRI) sv.6, str.9-18.

[5] Nikolić D., 1963: Pegmatiti SFRJ, FSD Geoinstituta.

[6] Ristić M., 1963: Genetsko-strukturni tipovi radioaktivnih mineralizacija Stare Planine, Radovi Zavoda za nuklearne sirovine, sv.2, str.3-19.

[7] Radusinović D., 1963: Otkriće uraninita na planini Bukulji, Radovi ZNS, sv.2, str.43-53.

[8] Markov C., 1984: Mineraloške karakteristike ležišta urana i mineralizacije ostalih metala u granitu Bukulje, FSD Geoinstituta.

[9] Stojanović M., 1987: Istraživanje urana u granitima Bukulje, FSD Geoinstituta.

[10] Radusinović D., 1987: Mineralni sastav uranskih orudnjenja Stare Planine, Radovi Geoinstituta, sv.21, str.27-43.

[11] Markov C., Mihailović-Vlajić N., 1969: Opšta zapažanja o akcesornim mineralima granitoidnih masiva Jugoslavije, Radovi IGRI, sv.6, str..249-278.

[12] Milovanović S., 1968: Uranska mineralizacija na Goliji, Radovi IGRI, sv.4, str.29-34.

[13] Ristić M., 1958: Izveštaj Vitolište, FSD Geoinstituta.

[14] Vujanović V., 1964: Izveštaj o rezultatima dosadašnjih ispitivanja i istraživanja urana u Makedoniji, ibid.

[15] Ristić M., 1958: Pojave radioaktivnih minerala u Makedoniji, ibid.

[16] Ristić M., 1956: Izveštaj o mineraloško-petrološkom ispitivanju primeraka iz radioaktivnih pojava okoline Strumice, ibid.

[17] Vujanović V., Višić S., Teofilović M., 1969: Belasica - geološko petrografske karakteristike i pojave orudnjenja urana sa osvrtom na genezu, Radovi IGRI, sv.5, str.29-65.

[18] Radusinović D., 1978: Bakarno-uranska mineralizacija u Neretvici, Zbornik radova IX kongresa geologa Jugoslavije, Sarajevo, str.735-741.

[19] Krstanović I., 1954: Izveštaj o rendgenostrukturnom ispitivanju radioaktivnog minerala iz Aldine Reke, FSD Geoinstituta.

[20] Omaljev V., 1978: Uranovo ležište žirovski Vrh, Radovi Geoinstituta, sv.12, str.27-44.
[21] Radusinović D., 1967: Mineralni sastav i geneza uranskog ležišta žirovski Vrh, Slovenija, Radovi IGRI, sv.3, str.4-11.
[22] Radusinović D., 1974: Uranium ore deposit Zletovska Reka, Formation of ore deposits - IAEA, Wien.
[23] Gertik S., 1978: Metalogenetske karakteristike ležišta urana kod Kalne, Zbornik radova Rudarsko-metalurškog fakulteta u Boru, vol.XX.
[24] štrumberger Z., 1986: Proučavanje minerala urana lokalnosti Cirankulja, Podgroblje i Slatinska Reka metodom elektronske mikroanalize, Diplomski rad, FSD Geoinstituta.
[25] Klajn đ., 1980: Hidrotermalna mineralizacija urana Mandre, FSD Geoinstituta.
[26] Radusinović D., 1963: Ni-Co-U mineralizacija u Pb-Zn-Sb rudniku Veliki Majdan (Zapadna Srbija), Radovi ZNS, sv.2, str.53-63.
[27] Purić D., Izveštaj o istraživanju urana na području Slatinske Reke u 1984.g., FSD Geoinstituta.
[28] Sarić V., 1990: Uranske mineralizacije Vitolišta, Radovi Geoinstituta, sv.24, str.243-254.
[29] Vujanović V., Teofilović M.: Geologija, geneza i perspektivnost uranovih pojava u okolini Lozanice, Makedonije, Radovi IGRI, sv.5, str.7-9.
[30] Radusinović D., Pojave pehblende u Pb-Zn rudniku Zletovo, Makedonija, Radovi ZNS, sv.1, str.77-85.
[31] Ristić M., Genetko-strukturni tipovi uranskih mineralizacija Jugoslavije, Teza.
[32] Damjanović A., Vukasović M., 1961: Radioaktivni mineral iz Crnog Kamena u Makedoniji određen kao davidit, Radovi ZNS, sv.1, str.11-17.
[33] Mihailović-Vlajić N., 1959: Izveštaj o mineraloškom ispitivanju radioaktivnih minerala oblasti Crni Kamen, FSD Geoinstituta.
[34] Vujanović V., 1965: Miomirit-olovni davidit iz Nežilova, Radovi IGRI 5, str.147-154.
[35] Radusinović D., Hadžipopović S., Izveštaj o ispitivanju gnajsa iz sela Selce, FSD Geoinstituta.
[36] Vukasović M., Mihailović-Vlajić N., 1961: Branerit iz Topolčana kod Prilepa, Radovi ZNS, sv.2, str.67-69.
[37] Vukasović M., 1963: Sekundarni minerali urana iz oblasti žirovskog Vrha kod mesta Gorenja Vas u Sloveniji, Radovi ZNS, sv.2, str.63-67.
[38] Mihailović-Vlajić N., 1963: Akcesorni minerali u granitima planine Motajice, Radovi IGRI, sv.3, str.191-210.
[39] Mihailović-Vlajić N., Markov C., 1963: Akcesorni torit u granitima Jugoslavije, Radovi IGRI, sv.3, str.67-82.
[40] Maksimović S., 1961: Mineraloško ispitivanje nanosa Bukulje, Radovi ZNS, sv.1,str.19-29.
[41] Markov C., 1958: Radioaktivni minerali Gobeljske Reke, FSD Geoinstituta.
[42] Nikolić D., 1963: Kolumbit iz pegmatita Kukavice, Radovi ZNS, sv.2, str.69-71.

PREGLED RADIOAKTIVNIH MINERALA JUGOSLAVIJE

Biljana Zrnić, Suzana Erić

Rezime

Tokom dugogodišnjih istraživanja urana koja su vršena na prostorima bivše Jugoslavije otkrivena su brojna ležišta urana u kojima se kao nosioci radioaktivnosti javljaju radioaktivni minerali. Pregled radioaktivnih minerala urađen je na osnovu obimnog fondovskog materijala, a prikazani su rezultati ispitivanja različitim metodama (mineraloške, radiometrijske, spektrohemijske i dr.), kao i lokalnosti u kojima su konstatovani minerali. Radioaktivni minerali su interesantni kao mineraloške pojave, a pojedine mineralne vrste koje su konstatovane retke su i u svetu.

Ključne reči:radioaktivni minerali, uranijum, torijum, radiometrijske analize

RADIOACTIVE MINERALS REVIEW

Biljana Zrnić, Suzana Erić

Abstrakt:

Diferent giological formations, rocks and ore deposites where uranium and thorium were detected play a important role as a natural source of ionisation radioation.

During many years of uranium investigations in former Yugoslavia there were detected many ocurances and deposites of uranium as a radioactive source.

Review of radioactive minerals contain 20 discovered minerals and results of investigations with diferente methods. The base for realization of this review were Geoinstitute archive material.

Key words:radioactive minerals, uranium, thorium, radiometric analysis

5.

RADIOAKTIVNOST BOKSITA ZAPADNE SRBIJE

Vojin Gordanić, Sladjan Timotijević
Geoinstitut, Rovinjska 12, Beograd

1. UVOD

Istraživanje ležišta radioaktivnih minerala u Jugoslaviji uslovio je razvoj i primenu mnogobrojnih metoda, koje baziraju na utvrdjivanju sadržaja prirodnih radionuklida U, Th i ^{40}K u različitim sredinama geosfere. Zbog geohemijskih karakteristika ovi elementi i njihovi izotopi mogu se koncentrisati u različitim geohemijskim sredinama stvarajući litogeohemijske, metalometrijske, hidrogeohemijske i atmogeohemijske oreole rasejavanja oko ležišta ili rudnih pojava. U zavisnosti od geološkog sastava terena U, Th i ^{40}K se javljaju kao neposredni indikatori skrivenih rudnih tela, pre svega urana, zatim kao pratioci olovo - cinkanih i drugih ležišta metala a u novije vreme i u istraživanju ležišta boksita.

U izveštajima Naučnog Komiteta Ujedinjenih nacija o efektima [1] biološkim efektima [2] i rizicima od jonizujućih zračenja [3] sistematizovana je većina podataka o dugoživećim radionuklidima, poreklom iz prirode. Ovi podaci se odnose na temperaturne zone u severnoj hemisferi Zemlje. Teorijske postavke o modelima Mediteranske boksitogeneze [4] olakšale su izradu prognozne karte perspektovnih područja za istraživanje mezozojskih boksita u Jugoslaviji, što je omogućilo sistematski

pristup u istraživanju ležišta i rudnih pojava boksita u Srbiji, pa tako i sadržaj prirodnih radionuklida u njima. U Zapadnoj Srbiji crveni boksiti su otkriveni na planini Tari, oko Poćuta kod Valjeva i jugoistočno od Užica, u predelu Mačkata (Nikojevići, Ravbi i Skržuti). Navedene lokalnosti nalaze se u zoni unutrašnjih Dinarida, a nastale su za vreme kopnene faze u periodu izmedju trijasa i krede. Osnovno obeležje ove zone je da su ležišta grupisana, retka i mogu biti izuzetno velikih dimenzija [5]. U Zapadnoj Srbiji za sada je otkriveno desetak ležišta i nekoliko desetina rudnih pojava boksita koja su svrstana u tri boksitonosna područja: Poćuta, Tara i Mačkat.

2. KARAKTERISTIKE LEŽIŠTA BOKSITA

Podinu boksita grade kristalasti krečnjaci kao dolomitični krečnjaci trijasa koji su često ispucali, kavernozni, silifikovani i ispunjeni crveno-mrkom boksitičnom materijom. Povlata boksita je heterogenog sastava i u zavisnosti od rudnih područja varira po sastavu i starosti [6].

U području Poćute povlatu čine krečnjaci gornjeg turona, laporca i laporoviti krečnjaci senona.

U području Tare povlatu boksita čine krečnjaci, peščari, peskovite gline, gline redje konglomerati. Mikropaleontološkim ispitivanjima ovi sedimenti odgovaraju gornjoj kredi odnosno cenomanu. Asocijacija faune ukazuje na polubrakičnu sredinu, odnosno vreme kada kopno postepeno osvaja more.

U području Mačkata gornje kredni sedimenti su predstavljeni alevrolitima, peščarima, konglomeratima sa proslojcima slabo vezanih peščara, laporovitih krečnjaka i ugljevitih glina.

Boksiti Zapadne Srbije se javljaju kao veća ili manja sočivasta rudna tela, nepravilnog oblika, ispunjavajući paleokarsna udubljenja na trijaskom krečnjaku. Kvalitet boksita u rudnim telima varira u zavisnosti od sadržaja gvožđa, titana i silicije, kako vertikalno tako i horizontalno. Za sada su najkvalitetniji boksiti u području Poćute (ležište Petrovići). Prema mineralnom sastavu najzastupljeniji su boksiti bemitskog tipa, koji su i najkvalitetniji, a zatim slede bemitsko-kaolinski, kaolinsko-bemitski i boksitične gline. Ovakva mineralna parageneza bemita i kaolinita karakteristična je za celu oblast Zapadne Srbije[10].

Postoji više teorija koje objašnjavaju izvor i poreklo materijala u ležištima boksita, a koje su često kontradiktorne. Za naše boksite najprihvatljiviji je eugeosinklinalni sedimentološki model boksitogeneze A. Grubića [5]. U osnovi modela bitno je da se eugeosinklinalne zone sastoje od ultramafita, bazičnih i prelaznih magmata, sprudnih krečnjaka i parasprudova. Ispitivanjem sadržaja mikro elemenata u boksidima utvrđeni su povećani sadržaji Fe, Cr, Ni, i Co koji verovatno potiču iz bazičnih stena (gabrova, dijabaza, spilita itd.)

3. RADIOAKTIVNOST BOKSITA

U boksitonosnim područjima Zapadne Srbije u fazi istraživanja ležišta boksita određivani su sadržaji prirodnih radionuklida U, Th, ^{40}K. Zakonomernost distribucije ovih elemenata je lognormalnog karaktera, a međusobni odnosi i prosečne vrednosti

prikazane su za svako područje posebno (sl. 1). Povećan sadržaj radionuklida u boksidima svakako treba vezati za metaklastite(paleozojske metapeščare, filite itd.) ili klastite (kredne peščare, gline itd.) koji se javljaju na širem području proučavane oblasti. Navedeni rezultati u saglasnosti su sa prosečnima sadržajem ovih elemenata u različitim sredinama (tabela 1).

Tabela 1. Klark koncentracija prirodnih radionuklida u različitim geološkim sredinama

GEOLOŠKA SREDINA	K (%)	U(g/t)	Th(g/t)
METORI*	0.045	0.009	0.038
ZEMLJINA KORA**	1.8	1.5	7.3
BAZIČNE STENE**	0.7	1.0	4
KISELE STENE**	3.5	3.0	17
PEŠČARSKI	1.3	0.45	1.7
GLINENI ŠKRILJCI**	2.7	3.7	12
KREČNJACI**	0.28	2.2	1.7
MORSKA VODA*	0.039	0.003	0.00001

* Sobotkovič, Bartnickij, Cjonj, Kononeiko,1982
** Beus, Grigorijan, 1975

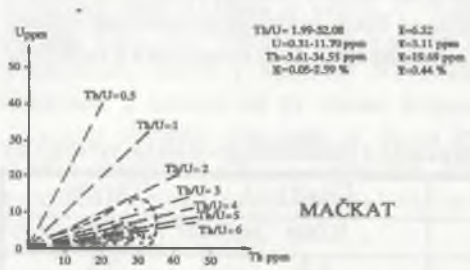
Ovo potvrđuje teoriju o modelu mediteranske boksitogeneze i ukazuju na izvorni materijal kore raspadanja od čega su i nastala ležišta boksita. Prikazane varijacije sadržaja U, Th i ^{40}K, međusobni odnosi Th/U za navedene lokalnosti date su u tabeli 2, [8]. Prosečni sadržaj Th u boksitima u odnosu na prosečne sadžaje urana su šest puta povećani u području Poćute i Mačkata, dok je u području Tare taj odnos deset puta veći. Sadržji ^{40}K su povećani u području Tare, a najmanji su u području Poćute. U prilog predhodno navedenom, navodimo i sadžaje Th u boksitima Severne Amerike, koji iznose 48.9 gr/t (9), a u bentonitima sa istog lokaliteta 24 gr/t [10].

Tabela 2. Varijacija sadržaja U, Th, i ^{40}K; prosečan sadržaj i međusobni odnos Th/U

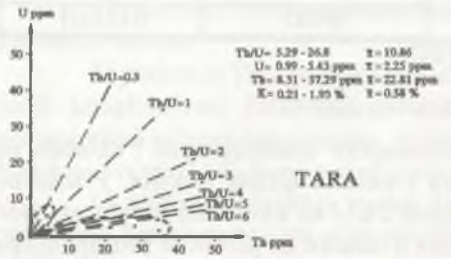
PODRUČJE	U (g/t)			Th (g/t)			^{40}K (%)			Th/U
	INTERVAL	$\bar{x}$	n	INTERVAL	$\bar{x}$	n	INTERVAL	$\bar{x}$	n	
POĆUTA	0.10-12.11	2.42	33	0.17-54.96	14.22	33	0.01-1.68	0.14	33	4.63
MAČKAT	0.31-11.70	3.31	135	3.61-34.55	19.69	135	0.05-2.59	0.44	135	6.52
TARA	0.99-5.43	2.25	10	8.31-57.79	22.81	10	0.21-1.73	0.58	10	10.86

V. Gordanić, 1992

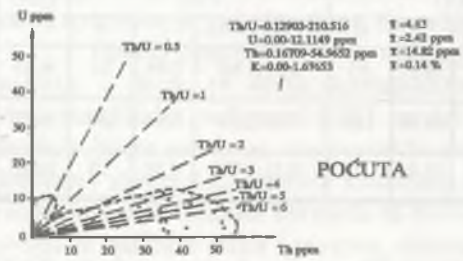
Međusobni odnosi Th i U prikazani su na dijagramu relativnog odnosa Th/U za područje Mačkata, Tare i Poćute gde se jasno uočava torijumski karakter radioaktivnih anomalija (sl 1.). Povećanje sadržaja Th u odnosu na U prati i povećanje sadržaja ^{40}K što je veoma značajno ako se uzme u obzir visoki sadržaj kalijuma u Zemljinoj kori (oko 2 %) [11,12] što doprinosi povećanju ukupnog jonizujućeg zračenja u boksitonosnom području Zapadne Srbije.



	BROJ TACAKA	%
Th/U=<0.5	0	
Th/U=0.5-1	0	
Th/U=1-2	1	0.7
Th/U=2-3	2	1.5
Th/U=3-4	13	9.6
Th/U=4-5	26	19.3
Th/U=5-6	28	20.8
Th/U=>6	65	48.1

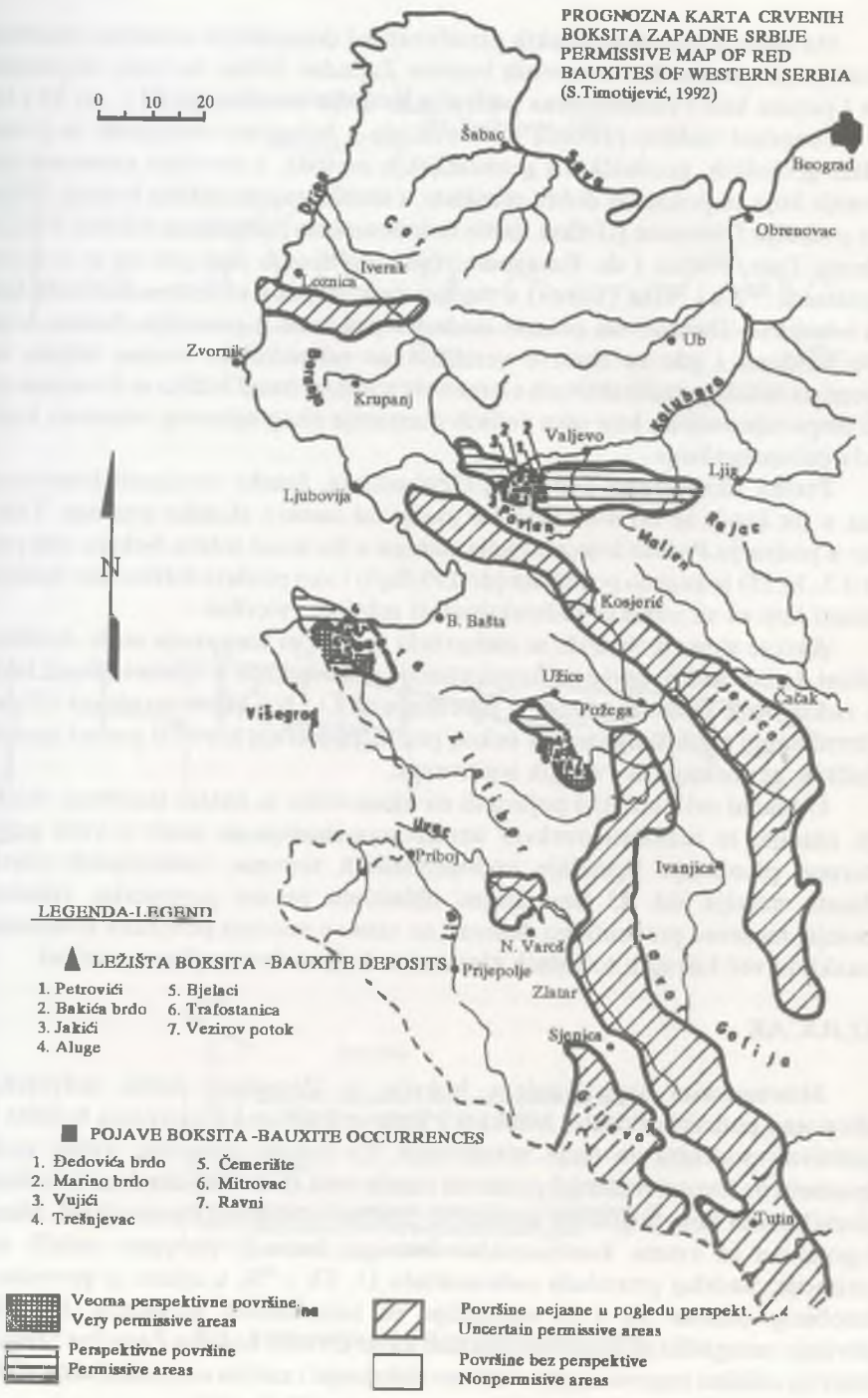


	BROJ TACAKA	%
Th/U=<0.5	0	
Th/U=0.5-1	1	10
Th/U=1-2	0	
Th/U=2-3	0	
Th/U=3-4	1	10
Th/U=4-5	1	10
Th/U=5-6	1	10
Th/U=>6	6	60



	BROJ TACAKA	%
Th/U=<0.5	2	6
Th/U=0.5-1	1	3
Th/U=1-2	2	6
Th/U=2-3	2	6
Th/U=3-4	6	18
Th/U=4-5	2	6
Th/U=5-6	3	9
Th/U=>6	15	45

Slika 1. Dijagrami relativnih odnosa Th i U u boksitima



Slika 2. Prognozna Karta crvenih boksita Zapadne Srbije

4. PRAKTIČNA PRIMENA U ZAŠTITI OD JONIZUJUĆEG ZRAČENJA

Na osnovu metalogenetskih proučavanja i dosadašnjih rezultata istraživanja izrađena je prognozna karta crvenih boksita Zapadne Srbije na kojoj su prikazana ležišta i pojave kao i perspektivna područja za dalja istraživanja (sl 2., lit 13 i 14).

Povećani sadržaj prirodnih radionuklida u boksitima omogućili su primenu različitih geoloških, geofizičkih i geohemijskih metoda, a naročito enamometrijska ispitivanja koja su pokazala dobre rezultate u istraživanjima ležišta boksita Lekanes i Luka području Distomon (Grčka), zatim boksitonosnim područjima Nikšića, Vlasenice, Zlatibora, Tare, Poćute i dr. Emanometrijska ispitivanja sastojala su se u merenju koncentraciji ^{222}Rn i ^{220}Rn (Toron) u tlu kao neposrednog idikatora skrivenih ležišta urana i boksita. Ilustrativan primer možemo prikazati u području Poćute, koja je najviše izražena i gde su rezerve verifikovane od nekoliko stotina hiljada tona. Obzirom na sadržaje radioaktivnih elemenata u njima, iznad ležišta se formiraju gasni oreoli disperzije radona koji nisu velikih dimenzija zbog njihovog relativno kratkog perioda poluraspadanja.

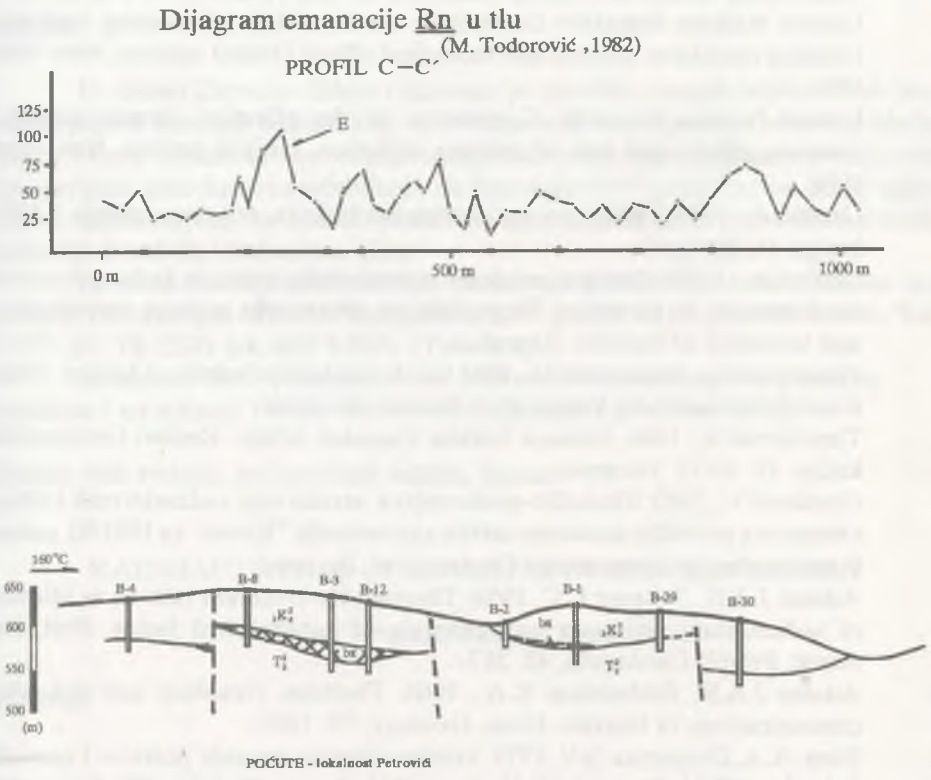
Prema iskustvenim podacima Geoinstituta, fonske vrednosti koncentracije radona u tlu kreću se od 4-40 Bq/l što zavisi od sastava stenske podloge. Tako na primer u području Poćute koncentracija radona u tlu iznad ležišta boksita duž profila C-C (sl 3., lit 15) je znatno povećana (do 110 Bq/l) i ako povlatu ležišta čine krečnjački sedimenti koji su sa aspekta radioaktivnosti relativno sterilni.

Ako se uzme u obzir da se rudno telo metodom emanacije može detektovati na dubini do 200 m što, zavisi od koncentracije radionuklida u njima i drugih faktora, da se radon bolje rastvara u vodi u poređenju sa O_2, N i H_2, a manje od CO_2 onda se u utvrđivanju ekološkog statusa nekog područja moraju koristiti podaci geoloških, geofizičkih, geohemijskih i drugih ispitivanja.

U blizini ovih ležišta i pojava ili na njima često se nalaze stambeni objekti ili manja naselja, te rezultati ovakvih istraživanja moraju se imati u vidu prilikom prostornog planiranja izgradnje vodoprivrednih sistema, industrijskih objekata, stambenih naselja itd. U navedenim oblastima prema postojećim rezultatima ispitivanja, možemo preventivno delovati ne samo u zonama povećane koncentracije radionuklida već i drugih toksičnih elemenata koji su često njihovi pratioci.

ZAKLJUČAK

Sistematskim istraživanjem boksita u Zapadnoj Srbiji izdvojena su boksitonosna područja Poćute, Mačkata i Tare sa ležištima i pojavama boksita kao i perspektivna područja za dalja istraživanja. Za boksite Zapadne Srbije može se predpostaviti da izvorni materijal potiče od raznih vrsta stena kao ultrabazičnih, Bazičnih i prelaznih stena koje pripadaju uglavnom dijabaz rožnjačkoj formaciji itd. Materijal je deponovan za vreme kontinentalne faze pri čemu je pretrpeo različit stepen boksitizacije. Sadržaj prirodnih radionuklida U, Th i ^{40}K u njima je povećan, a iz međusobnog odnosa Th i U anomalije su torijumskog karaktera. Dosadašnja istraživanja omogućila su izradu prognozne karte crvenih boksita Zapadne Srbije koja predstavlja solidnu osnovu za preventivno delobanje i zaštitu od jonizujućeg zračenja.



Slika 3. Dijagram emanacije Rn u tlu

LITERATURA

1. United Nations Scientific Committee on the effect of ionizing radiation. Sources and effect of ionozing radiation. United Nations, New York, 1997.
2. United Nations Scientific Committee on the effect of ionizing radiation. Ionizing radiation: sources and biological effect: United nations, New York, 1982.
3. United Nations Scientific Committee on the effect of atomic radiation. Sources, effects and risk of ionizing radiation. United nations, New York, 1988.
4. Grubić A., 1975. Geologija jugoslovenskih boksita, posebno izdanje SANU, knjiga 44, Beograd
5. Grubić A., 1976. Quelque modeles sedimentologiques de la bauxitogenese mediterranee ou karstique, Simposium on advances in geology, geochemistry and treatmen of bauxite, Zagreb
6. Timotijević S., Podunavac D., 1994 Geologija ležišta boksita Zapadne Srbije. Radovi Geoinstituta, knjiga 29, u štampi. Beograd
7. Timotijević S., 1986. Geneza boksita Zapadne Srbije. Radovi Geoinstituta, knjiga 19, 61-71. Beograd
8. Gordanić V., 1992 Ekološko-geohemijska istraživanja radioaktivnih i drugih elemenata područja sanitarne zaštite akomulacije "Rovni" za 1991/92 godinu. Fond stručne dokumentacije Geoinstituta, Beograd
9. Adams J.A.S., Weaver C.C, 1958. Thorium-Zr-Uranium rations as idicators of sedimentary processes and example of geochemical facies. Bull. Am. Assoc. Petrol. Geologists, 42, 367-
10. Adams J.A.S., Richardson K.A., 1960. Thorium, Uranium and zirkonium concentracions in bauxite. Econ. Geology, 55, 1653-
11. Beus A.A.,Gregorjan S.V.,1975. Geohemičeskie metody poiskov i razvedki
12. Sobotkovič E.V., Bartnickij E.H., Cjojn O.V., Konaneiko L.V.,1982. Spravočnik po izotopnoj geohemii. Energoizdat., Moskva, p.241.
13. Grubić A.,Milovanović D., Petković M., Dragović D., Antonijević I., 1976. Ocena perspektivnosti pronalaženja ležišta mezozojskih boksita u Jugoslaviji, IV jugoslovenski simpozijum o istraživanju i eksploataciji boksita, Herceg Novi, 13-16.
14. Timotijević S.,1992. Stratigrafski položaj boksita Zapadne Srbije. Rdovi Geoinstituta, knjiga 27,73-80. Beograd
15. Todorović M., 1982. Izveštaj o regionalnim geofizičkim istraživanjima boksitonosnog područja Poćute. Fond stručne dokumentacije Geoinstituta, Beograd

RADIOAKTIVNOST BOKSITA ZAPADNE SRBIJE

Vojin Gordanić, Sladjan Timotijević

Rezime:

U oblasti Zapadne Srbije otkriveno je nekoliko manjih ležišta i veći broj rudnih pojava karstnih boksita koji su svrstani u tri boksitonosna područja:Mačkat, Poćuta i Tara. Nalaze se kao veća ili manja sočivasta rudna tela nepravilnog oblika ispunjavajući paleokarstna udubljenja na trijaskom krečnjaku. Prema mineralnom sastavu najzastupjeniji su boksiti bemitskog tipa a zatim slede bemitsko-kaolinski, kaolinsko-bemitski i boksitične gline.

Prosečni sadržaji radioaktivnih elemenata u boksitima Poćute iznose: uran 2.42 g/t; Th 14.22 g/t; 40K0.14 %;Mačkata, 3.31 g/t; Th 19.69 g/t; 40K 0.44%; Tara U 2.25 g/t; Th 22.81 g/t; 40K 0.58% (Tabela 2).

Iz odnosa Th/U proizilazi da su radioaktivne anomalije torijumskog karaktera i na lokaciji Poćute iznose 4.63, Mačkata 6.52 i Tare 10.86.

Ključne reči: boksiti, radionuklidi, ležišta, geneza

RADIOACTIVITIES OF BAUXITES IN WESTERN SERBIA

Vojin Gordanić, Sladjan Timotijević

Abstract

Systematic investigation of bauxites in Western Serbia enabled to distinguish region of Poćuta, Mačkat and Tara in which are separated deposits and occurrences of bauxite and also area of interest for further investigations.

It is supposed that source material for bauxite of Western Serbia originated from various rock types as ultramafic, basic, intermediate rocks of diabase-chert formation and others.

This mentioned was deposited during the continental phase when it underwent different degree of diferentions

The content of natural radionucleides U, Th and ^{40}K was increased in them and the relation of Th and U indicate thorium character of anomalies.

This investigations enabled the completion of the prognostic map for red bauxites of Western Serbia that is representing a load base in radiometric protection.

Key words: bauxite, radionucleide, deposits, genesis

Glava II

Tehnološki povišena radioaktivnost

6.

UGLJEVI I MINERALNA ĐUBRIVA KAO IZVOR TEHNOLOŠKOG POVEĆANJA PRIRODNE RADIOAKTIVNOSTI

Kljajić Ranko,
Naučni institut za veterinarstvo, Novi Sad;

Šipka Vojislava, Radenković Mirjana
Institut za nuklearne nauke "Vinča", Beograd;

Mitrović Radosav
Veterinarski i mlekarski institut, Beograd

1. UVOD

Radioaktivnost i jonizujuće zračenje su stalna i prirodna odlika životne sredine. Sa radioaktivnim materijama i drugim izvorima jonizujućeg zračenja živimo, a rizici povezani sa svim njihovim oblicima mogu se ograničiti, ali ne i potpuno eliminisati. Pored toga, čovek je svojim aktivnostima proizveo i nove izvore jonizujućih zračenja, tako da se praktično u svim oblastima ljudske delatnosti, na posredan ili neposredan način koriste radioaktivne materije i/ili jonizujuća zračenja.

Moderne tehnologije i povećan broj novih industrijskih postrojenja, zahtevaju sve veće energije. U cilju rešavanja energetskih problema sa kojim je suočen savremeni svet, koriste se svi raspoloživi energetski izvori. U drugoj polovini ovog veka počelo je i korišćenje nuklearne energije za rešavanje naraslih energetskih potreba. Već krajem 1992.godine oko 17% ukupno proizvedene električne energije u svetu poticalo je od nuklearne energije.

Široko rasprostranjeno korišćenje proizvedenih izvora jonizujućeg zračenja, izgradnja nuklearnih elektrana, ogromni arsenal nuklearnog oružja, uslovili su da je od kraja pedesetih godina ovog veka, radioaktivnosti koju je proizveo čovek

posvećivana dominantna pažnja i to kako u naučnoistraživačkom radu tako i u tehničko-tehnološkim rešenjima i merama zaštite. Proizvedeni izvori jonizujućeg zračenja postali su "medijski hit" sa svim kontraverzama političke, ekonomske i socijalne prirode.

Prirodnoj radioaktivnosti, sa kojom smo oduvek živeli i koju smo različitim tehnološkim postupcima takođe izmenili, nije posvećivana potrebna pažnja. Ona je bila na marginama, kako naučno-istraživačkih, tako i edukativnih, političkih, ekonomskih, socijalnih i medijskih interesovanja najšire javnosti. Zato danas ne treba da čudi, da obični građanin, političar pa i stručnjak izvan oblasti zaštite od zračenja, sa nevericom prihvata činjenicu da je pojava radioaktivnosti stara koliko i Zemlja, da se u čovekovom telu nalazi prirodni radioaktivni element kalijum-40 "koji zrači", da je zbog različitih tehnoloških postupka došlo do preraspodele i povećanja prirodne radioaktivnosti itd.

U cilju "ispravke" neopravdanog zapostavljanja značaja i uloge prirodne radioaktivnosti, ne toliko od strane uže naučne, već šire stručne i društvene javnosti, autori ovim preglednim radom žele da ukažu na neke osnovne karakteristike i značaj tehnološki uslovljene povišene prirodne radioaktivnosti.

2. IZVORI PRIRODNIH RADIONUKLIDA

Pojava koju nazivamo "radioaktivnost" je prirodna pojava na našoj planeti. Prirodnih radionuklida ima mnogo, od kojih neki, dugoživeći postoje od formiranja planete Zemlje, a neki se stalno stvaraju. Tako, pod dejstvom neutronske komponente kosmičkih zraka, u višim slojevima atmosfere dolazi do spontanih reakcija sa mikrometeoritima i drugom prašinom iz vazduha, pri čemu nastaju prirodni radionuklidi: H-3, Be-7, C-14, Na-22, Si-32, P-32, Ar-39, Kr-81 i dr. (Tabela 1.)

Tabela 1. Osnovni kosmogeni radionuklidi [1]

Nuklid	Vreme poluraspada	Brzina nastajanja (atom/cm^2-sec)	Ukupna količina (kg)	Aktivnost vazduha Bq/m^3
H-3	12.26 g	0.25	3.5	0.167
Be-7	53 d	0.08	0.0032	0.017
Be-10	2 700 000 g	0.05	$3.9 \cdot 10^5$	10^{-7}
C-14	5760 g	2.5	$6.8 \cdot 10^4$	0.067
Na-22	2.6 g	$8.6 \cdot 10^{-5}$	0.0019	$1.7 \cdot 10^{-6}$
Al-25	740 000 g	$1.4 \cdot 10^{-5}$	1000	-
Si-32	280 g	$1.6 \cdot 10^{-4}$	1.4	$3.3 \cdot 10^{-8}$
P-32	14.3 d	$8.1 \cdot 10^{-4}$	0.0004	0.00033
P-33	24.4 d	$5.8 \cdot 10^{-4}$	0.0006	0.00025
S-35	87.9 d	0.0014	0.0045	0.00025
Cl-36	380 000 g	0.0011	$1.4 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^{-10}$
Ar-39	270 g	0.0056	23	-
Kr-81	210 000 g	10^{-6}	16.2	-

Neki od ovih radionuklida su kratkoživeći i raspadnu se već na svom putu do Zemljine površine. Drugi, kao npr. C-14 i H-3 ulaze izotopskom izmenom u molekul CO_2 i H_2O i prate kružni tok vode na Zemlji (padavine, površinske vode). Oni su od posebnog značaja jer ulaze u sastav žive materije na Zemlji.

U sastav minerala u Zemljinoj kori ulaze tri radioaktivna niza Th-232, U-238 i U-235, nastala pri formiranju litosfere. U stenama koje se nalaze na površini ima svega nekoliko ppm U, na srednjim dubinama oko 2.8 ppm, a fosfatne stene, koje se koriste za proizvodnju đubriva sadrže do 200 ppm U. Vulkanske i granitne stene sadrže više urana nego sedimentne stene (tabela 2).

Tabela 2. Koncentracije uranijuma u stenama [1]

Vrsta stene	Srednja koncentracija urana (ppm)
Ultrabazne	0.001
Bazaltne	1
Granitne	3
Sieniti	3
škriljci	3.7
Peščari	0.45
Karbonatne	2.2
Gline	1.3

Reke i otvorene vodene površine sadrže prirodne radionuklide koji nastaju u atmosferi, ali i one koji se nalaze u dubini Zemljine kore. Kao posledica toga izvorska voda sadrži i 0.024-200 μg/l dok morska voda sadrži oko 2-3.7 μg/l urana. [1]

3. TEHNOLOŠKI USLOVLJENA POVIŠENA PRIRODNA RADIOAKTIVNOST

Savremeni svet je danas suočen sa dva osnovna problema: obezbediti dovoljnu količinu energije i proizvesti dovoljnu količinu hrane. U nastojanjima da se reše ova dva osnovna problema, uvedene su nove tehnologije i različiti tehnološki postupci. Kao rezultat nekih tehnoloških postupaka (sagorevanje uglja, proizvodnja veštačkih đubriva itd.) dolazi do preraspodele prirodne radioaktivnosti i znatno većeg izlaganja stanovništva prirodnoj radioaktivnosti nego da su prirodni radionuklidi ostali na mestu i u obliku u kome su se nalazili pre provođenja određenog tehnološkog postupka.

Pojam tehnološki uslovljena prirodna radioaktivnost ("technologically enhanced natural radioactivity") je relativno novijeg datuma. Uveden je polovinom sedamdesetih godina a označava izlaganje prirodnim izvorima radijacije koji se ne bi pojavili bez prethodne tehnološke aktivnosti koja nije posebno provedena u cilju dobijanja zračenja [2]. Dosadašnja istraživanja su pokazala da su glavni izvori

tehnološki uslovljene povišene prirodne radioaktivnosti termoelektrane na ugalj i primena mineralnih đubriva u poljoprivrednoj proizvodnji.

3.1.Prirodna radioaktivnost ugljeva i tehnološko povećanje prirodne radioaktivnosti uslovljene radom termoelektrana na ugalj

I pored uvođenja novih energetskih izvora i novih tehnologija, ugalj, kao najrašireniје fosilno gorivo, i dalje ostaje najvažniji energetski izvor u prirodi. Kopanjem iz dubljih slojeva zemlje, gde nije bitnije uticao na životnu sredinu, ugalj dospeva na površinu tla gde se preko 90% ukupne količine koristi za proizvodnju električne energije u termoelektranama. Sagorevanjem uglja u termoelektranama dolazi do oslobađanja i preraspodele niza zagađivača od sumpordioksida, azotnih oksida, ugljenmonoksida preko toksičnih i teških metala (Pb, Cd, Hg, Be, Ni, As itd.) do organskih čestica (policiklični hidrokarbonati), radionuklida uranovog i torijumovog niza i kalijuma-40.

Spaljivanjem uglja nastaje procentualno najveća emisija zagađivača u poređenju sa bilo kojim drugim gorivom, što je posledica visokog sadržaja pepela u uglju. U SAD, do obavezne ugradnje elektrofiltera (1977.godine), sadržaj pepela, nastalog sagorevanjem uglja kretao se od 4 do 25%. Pri tome su glavni zagađivači bili sumpordioksid, azotni oksidi, ugljenmonoksid, organske i neorganske supstance, kao i prirodni radionuklidi u tragovima [3].

3.1.1. Prirodni radionuklidi u uglju

Poznato je da svaki ugalj sadrži bar 1-2 ppm uranijuma i 3-4 ppm torijuma, što odgovara 12,2-24,4 Bq/kg urana-238 i 12,21-16,28 Bq/kg torijuma-232, kao i potomke proizvedene njihovim radioaktivnim raspadom. Ove koncentracije su nešto niže u odnosu na sadržaj prirodnih radionuklida u zemljinoj kori. Međutim, neke vrste ugljeva sadrže i znatno veće količine prirodnih radionuklida (kameni ugalj). Pored toga, sagorevanjem uglja u termoelektranama dolazi do koncentrisanja prirodnih radionuklida pri čemu faktor obogaćenja za pepeo i šljaku može iznositi 5-10. [4-7]

Povećane koncentracije uranijuma u različitim slojevima uglja nastaju uglavnom zbog izluživanja urana iz bogatih vulkanskih stena. Pretpostavlja se da prosečne koncentracije radionuklida u ugljevima iznose 50 Bq/kg za kalijum-40 i 20 Bq/kg po svakom članu niza urana-238 i torijuma-232, te da su svi produkti njihovog raspada u radioaktivnoj ravnoteži, odnosno da je aktivnost svih radionuklida u nizu jednaka [8]. Međutim, kasnija istraživanja su opovrgla ovu pretpostavku posebno u slučaju olova-210 i polonijuma-210 a donekle i kod radijuma-226 [3]. Tokom godina je ustanovljeno da produkti raspada urana-238 i torijuma-232 u uglju nisu u sekularnoj ravnoteži što posebno važi za olovo-210 i polonijum-210. Povećana koncentracija olova-210 u odnosu na prethodne članove niza urana u ugljevima može se pojaviti ako velike količine radona-222 difunduju iz okolnih visokoaktivnih stena u manje aktivne slojeve uglja [2].

U svetu je izvršen veliki broj istraživanja sadržaja radionuklida u uglju [9]. Rezultati su dati u tabeli 3.

Tabela 3. Sadržaj prirodnih radionuklida u uglju Bq/kg [9]

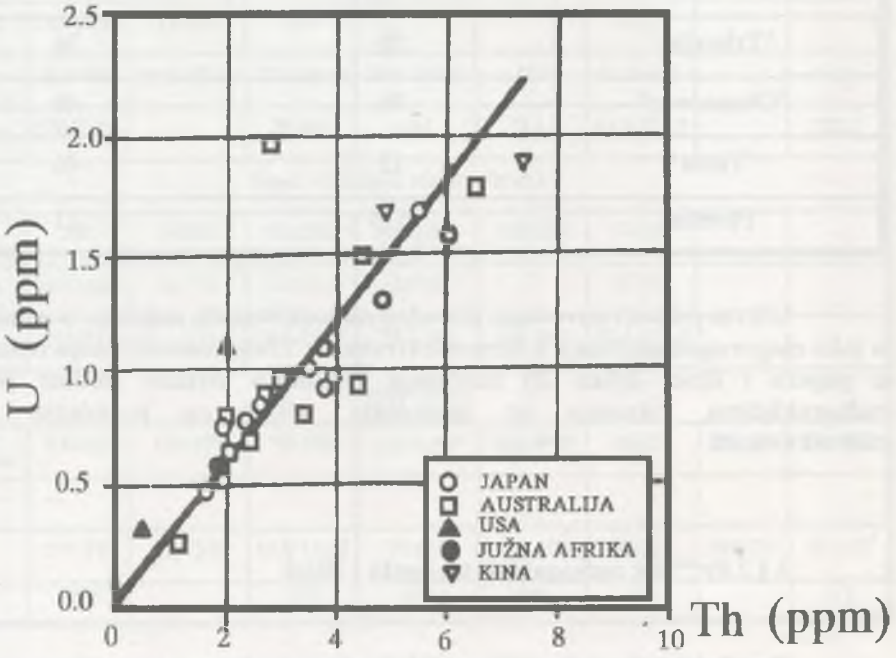
Zemlja porekla	^{40}K	^{238}U	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th
Australija			30-48			
Brazil	370		100			67
Kanada	440		30			26
Čehoslovačka			4-13			
Kina			7			
SR Nemačka		<40	20	25	30	<20
Mađarska			1,5			
Indija			25			
Italija		15-25	4-15	25-50		7-110
Poljska	290	38				30
Južna Afrika	100		30			20
SSSR	120	28			22	
Engleska	120	17				17
SAD	52-120	16-30	1-30	10-36		8-23
Venecuela	110		<20			<20

Američki autori [10,11] su analizirali sadržaj prirodnih radionuklida u preko 1000 uzoraka uglja dobijenih direktno iz rudnika. Izmerene koncentracije su svrstali po veličini i utvrdili da koncentracija radionuklida u uglju varira u dva niza: niske koncentracije (0,7 Bq/kg za kalijum-40 i 3,0 Bq/kg za uranilim-238 i torijum 232) i više koncentracije (70 Bq/kg za kalijum-40, 520 Bq/kg za uranijum-238 i 320 Bq/kg za torijum-232). Utvrđene su velike razlike i za ugljeve sa istih lokacija. Slične podatke izneli su i Japanski autori [8] za ugljeve iz različitih zemalja (Japan, Australija, Kanada, Južna Afrika, Kina, SAD). Rezultati su dati u tabeli 4. sa podacima o kaloričnoj vrednosti i procentu pepela. Izneti rezultati su slični rezultatima koje je dao UNSCEAR 1982.[9]

Tabela 4. Sadržaj prirodnih radionuklida u ugljevima različite kalorijske vrednosti i sadržaja pepela

Zemlja porekla	Kalorična vrednost (kcal/kg)	Sadržaj pepela (%)	Sadržaj uranijuma, torijuma i kalijuma		
			U (Bq/kg)	Th (Bq/kg)	K (%)
Japan					
	6,350	12,5	9,52	8,95	0,13
	6,420	20,0	11,71	15,87	0,45
	5,950	16,6	9,27	7,78	0,15
	5,770	27,4	15,86	19,54	0,58
	5,940	24,4	12,08	14,25	0,31
	5,580	25,4	10,37	10,58	0,29
	6,280	20,8	6,47	7,73	0,17
	5,210	33,0	5,86	6,51	0,34
	4,420	40,5	11,35	15,47	0,42
	6,140	23,7	13,42	15,06	0,34
Australija					
	6,800	13,0	10,98	10,99	0,84
	6,740	7,8	9,76	14,25	0,42
	6,330	18,4	21,96	26,46	0,15
	6,870	12,8	11,35	18,32	0,46
	6,900	13,0	24,40	11,39	0,27
	7,090	10,2	3,42	4,88	0,017
	6,800	10,8	7,93	8,55	0,099
	7,070	9,6	9,76	8,55	0,097
	6,640	11,8	18,30	18,32	0,033
	6,520	17,6	11,59	12,21	0,060
	6,760	15,6	8,54	10,18	0,050
Kanada					
	6,360	9,2	13,42	8,14	0,066
Južna Afrika					
	6,510	13,7	20,74	19,54	0,087
	6,350	18,0	23,18	29,71	0,10
Kina					
	7,010	10,2	6,22	7,33	0,10
	6,390	21,4	20,74	22,39	0,16
	5,940	14,8	19,52	24,42	0,23
SAD					
	6,430	14,3	3,78	1,99	0,0066
Prosek					
	6,380	17,4	12,20	13,43	0,23

Na bazi eksperimentalnih podataka koeficijent korelacije za uranijum i torijum iznosio je 0,83 a nije utvrđena velika razlika između ugljeva iz Japana i ostalih zemalja (slika 1.).



Slika 1.Uran i torijum u uglju /2/

I u našoj zemlji istraživan je sadržaj prirodnih radionuklida u uglju. Izmerene vrednosti (tabela 5.) bile su u proseku više u odnosu na podatke za ugljeve iz drugih zemalja. Medjutim, treba imati u vidu da, u podacima za ugljeve u svetu nije uvek naznačeno geološko poreklo i vrsta uglja, a podaci iz tabele 5. se odnose na kameni i mrki ugalj, koji, po pravilu, imaju viši sadržaj radionuklida.

Tabela 5. Sadržaj prirodnih radionuklida u ugljevima SFRJ [3] u Bq kg^{-1}

Termoelektrane	Niz U-238	Niz Th-232
	U-238	Th-232
"Šoštanj"	76	50
"Trbovlje"	56	36
"Obrenovac"	38	48
"Tuzla"	12	46
"Plomin"	533	21

Glavni prinos i povećanje prirodne radioaktivnosti, sadržane u uglju, nastaje u toku njegovog sagorevanja u termoelektranama. Zbog koncentrisanja radionuklida u pepelu i šljaci dolazi do značajnog zagađenja životne sredine prirodnim radionuklidima, odnosno do tehnološki uslovljenog povećanja prirodne radioaktivnosti.

3.1.2.Prirodni radionuklidi u pepelu i šljaci

Ponašanje prirodnih radionuklida u procesu sagorevanja uglja zavisi od više faktora: vrste i karakteristika uglja, sadržaja pepela u uglju, kalorične vrednosti uglja, temperature sagorevanja uglja u termoelektranama, pripremi i obradi uglja pre sagorevanja, hemijskom i fizičkom obliku u kome se radionuklidi nalaze u uglju itd.

U cilju proizvodnje električne energije u termoelektranama ugalj sagoreva na temperaturi od 1200 do 1700°C. Najveći deo mineralnih materija iz uglja ostaje u pepelu gde teži deo (precipitatorski pepeo) pada na dno kotla kao šljaka. Lebdeći pepeo prenosi se duž kotla zajedno sa vrelim dimnim gasovima i drugim isparljivim mineralnim sastojcima do elektrostatičkog precipitatora a zatim odlazi u dimnjak. U zavisnosti od efikasnosti precipitatora, najveći deo lebdećeg pepela se zadržava a ostatak kroz dimnjak odlazi u atmosferu. Radionuklidi iz sagorelog uglja u zavisnosti od njihovih fizičkih karakteristika i hemijskog oblika, raspoređuju se na šljaku i pepeo, bilo precipitatorski i/ili lebdeći, izuzev gasovitih i isparljivih koji se direktno uključuju u dimne gasove. Koncentracija prirodnih radionuklida u šljaci, precipitatorskom pepelu sa elektrofiltara i raspršenom lebdećem pepelu data je u tabeli 6.

Tabela 6. Sadržaj prirodnih radionuklida u uzorcima pepela (Bq kg^{-1}) [2]

Vrsta pepela i nalazište	^{40}K	Raspadni niz ^{238}U				Raspadni niz ^{232}Th		
		^{238}U	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Th	^{228}Ra
šljaka								
SR Nemačka	518		133-167				96-137	
Poljska	280-1200	17-100	159			15-120		
SAD	241-481	66,6-181,3	22,2-81,4	25,9-207,2	189	51,8-66,6		66,6
SSSR	370-2220		78-185	444	7,4	85,1-321,9		122,1
Pepeo sakupljen elektrofiltrima								
SR Nemačka	740	70-300	40-200	60-2000*	100-2000	30-100		
Poljska	180-1500	44-170	33-236,8	247,9		33-130		
SAD	255-777	85,1-155,4	29,6-140,6	77,7-370	196-481	44,4-173,9		
Leteći pepeo								
SR Nemačka	700-850	100-477	70-333	200-3000*	300-5900	40-126	50-107	104-130
SAD	259-370	111-204	41,8-140,6	78-629	104-196	78-122	80-120	80-155
SSSR	1850		185	444	444	185		115

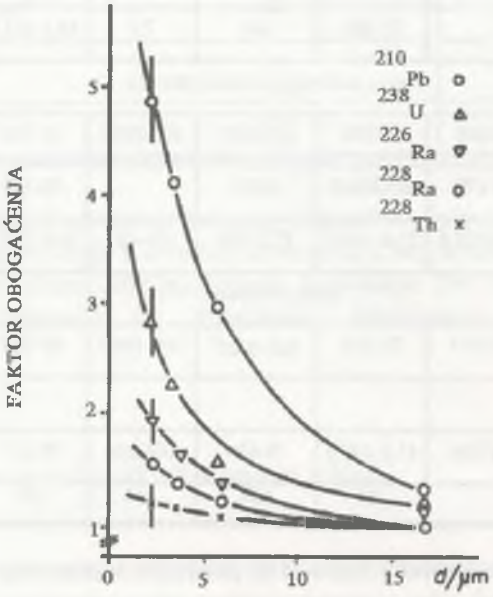
* ^{210}Pb može poticati i iz vazduha koji sadrži produkte sagorevanja benzina

U procesu sagorevanja uglja dolazi do eliminacije organske komponente usled čega dolazi do povećanja koncentracije aktivnosti radionuklida u pepelu u odnosu na ugalj. Zbog ovog procesa koncentracija prirodnih radionuklida u pepelu i šljaci nastala sagorevanjem uglja mnogo je veća od odgovarajućih koncentracija u zemljinoj kori.

Više studija, koje su urađene u SAD, pokazalo je da su koncentracije određenih elemenata različito raspoređene između šljake i pepela, što se objašnjava različitim mehanizmom formiranja aerosola u termoelektranama na ugalj [10-12]. Manje čestice pepela koncentrišu neke elemente na svojoj površini tokom hlađenja vrelih dimnih gasova na putu od kotla do dimnjaka. Većinu čestica sakupi elektrofiltar i čistač čime je sprečen njihov izlazak iz termoelektrane. Uz današnju efikasnost elektrostatskih filtara koja se kreće i do 99,5%, glavnina lebdećeg pepela se ukloni tom operacijom. Međutim, treba imati u vidu da u slučaju nekvalitetnih ugljeva sa visokim sadržajem pepela, često dolazi do zagušenja elektrostatskih filtara i njihovog povremenog isključivanja iz funkcije čime se u atmosferu ipak ispuštaju ogromne količine lebdećeg pepela a time i radionuklida adsorbovanih na njihovoj površini. Ovo

je čest slučaj kod termoelektrana koje koriste niskokalorične ugljeve lignit i neke vrste mrkog uglja [13].

Koncentrisanje i obogaćivanje nekih radionuklida na česticama pepela definiše se faktorom obogaćenja (FO), koji predstavlja odnos koncentracije radionuklida (x) i kalijuma-40 u uzorku pepela podeljenim sa odgovarajućim istim odnosom u uglju [5]. U ovom slučaju kalijum-40 je upotrebljen kao standard jer njegova aktivnost ostaje konstantna u svim tipovima pepela koji nastaju u procesu sagorevanja uglja u termoelektranama.



Slika 2. Faktori obogaćenja za ^{210}Pb, ^{238}U, ^{228}Ra i ^{228}Th u funkciji veličine čestice u pepelu koji prođe kroz elektrostatski filter /12/

Na slici 2. prikazana je promenljivost faktora obogaćenja za neke radionuklide kao funkcija veličine čestica koje prođu kroz elektrostatski filtar. Najveći faktor obogaćenja u ovom slučaju utvrđen je za olovo-210 a zatim za uran-238, radijum-226 i torijum-228. Prihvaćeno je opšte pravilo da se vrednost faktora obogaćenja povećavaju sa temperaturom pri sagorevanju uglja a smanjuje sa veličinom čestica. Za radioaktivne gasove kao što je radon-222 i radon-220, smatra se da ne dolazi ni do hemijske reakcije ni do fizičke apsorpcije i da 100% izlaze u atmosferu [8,12,14].

Pod uslovom da elektrofiltri rade sa definisanom efikasnošću, samo mali deo pepela proizvedenog u termoelektranama će biti ispušten kroz dimnjak u atmosferu i u zavisnosti od visine dimnjaka biti deponovan u daljoj ili bližoj okolini termoelektrane. Ostatak pepela i šljake odlaže se na deponije koje mogu da sadrže nekoliko puta veću prirodnu radioaktivnost od prosečnog tla. Zbog netopivosti pepela ispiranje prirodnih radionuklida u površinske i podzemne vode ne predstavlja značajniji problem osim u slučaju radijuma-226. Međutim, potencijalno oslobađanje radona-222 iz deponija otpadnog pepela i šljake predstavlja značajan problem. Problem postaje još značajniji kada se uzmu u obzir stotine hiljada tona pepela koji se odlaže na deponije tokom višegodišnjeg rada termoelektrana na ugalj i činjenicu da se obogaćeni pepeo i šljaka koriste kao komponenta za građevinski materijal a u nekim slučajevima i za "popravljanje" zemljišta namenjenog poljoprivrednoj proizvodnji.

U svakom slučaju osnovni problem tehnološki uslovljene povišene prirodne radioaktivnosti uzorkovane radom termoelektrana na ugalj leži u povećanju nivoa osnovnog zračenja u okolini i povećanoj izloženosti radijaciji lokalnog stanovništva.

U cilju procene očekivane godišnje emisije prirodnih radionuklida usled rada termoelektrana na ugalj urađeno je nekoliko studija, između ostalog i u našoj zemlji [5,15,16]. Rezultati procena dati su u tabalama 7 i 8.

Tabela 7. Godišnja produkcija prirodnih radionuklida usled rada termoelektrana na ugalj [5]

Radioaktivni niz	Radionuklid	Aktivnost u MBq MWe^{-1} $godina^{-1}$			
		Kakanj	Ugljevik	Gacko	Tuzla
Niz U-238	Ra-226	0,226	0,243	0,279	0,123
	Pb-214	0,227	0,262	0,301	0,077
	Bi-214	0,170	0,215	0,254	0,081
Niz Th-232	Ac-228	0,135	0,082	0,053	0,088
	Tl-208	0,130	0,085	0,052	0,088
Prirodni kalijum	K-40	1,027	0,574	0,151	0,691

Tabela 8. Godišnja očekivana emisija prirodnih radionuklida termoelektrane na ugalj od 1000 MWe [9]

Radionuklid	Aktivnost ($Bq \cdot g^{-1}$)			
	Kameni ugalj	Šljaka	Leteći pepeo	Emisija
U-238(Th-234)	$3,7 \cdot 10^{-2}$	0,21	0,34	$0,37 \cdot 10^{9}$
U-234			0,35	$0,37 \cdot 10^{9}$
Th-230			0,22	$0,37 \cdot 10^{9}$
Ra-226(Pb-214, Bi-214)	$1,8 \cdot 10^{-2}$	0,21	0,30	$0,37 \cdot 10^{9}$
Pb-210	$2,6 \cdot 10^{-2}$	$9,6 \cdot 10^{-2}$	2,44	$3,7 \cdot 10^{9}$
Po-210	$3,0 \cdot 10^{-2}$	$1,8 \cdot 10^{-2}$	4,59	$7,4 \cdot 10^{9}$
Th-232	$1,8 \cdot 10^{-2}$	0,10	$8,9 \cdot 10^{-2}$	$0,18 \cdot 10^{9}$
Th-228			$8,9 \cdot 10^{-2}$	$0,18 \cdot 10^{9}$
Ac-228,Pb-212,	$7,4 \cdot 10^{-3}$	$9,3 \cdot 10^{-2}$	0,12	$0,18 \cdot 10^{9}$
K-40	0,13	0,59	0,67	$1,11 \cdot 10^{9}$
Rn-220				$18,5\text{-}37,0 \cdot 10^{9}$
Rn-222				$37,0\text{-}74,0 \cdot 10^{9}$

Iz iznetih rezultata jasno se uočava da pri proizvodnji svakog GWe u termoelektranama na ugalj, dolazi do emisije značajne količine prirodnih radionuklida uranovog i torijumovog niza koji su pretežno koncentrisani u pepelu i šljaci. Ovim je došlo do preraspodele prirodne radioaktivnosti sadržane u uglju koja pre provođenja tehnološkog postupka kopanja i sagorevanja uglja nije bitnije uticala na zagađivanje životne sredine.

Prema podacima (UNSCEAR) u toku 1979.godine sagorevanjem ukupne svetske proizvodnje ugljena na celoj Zemlji deponovano je 4000 tona urana i 8000 tona torijuma sa njihovim potomcima pri čemu je ukupni prinos alfa-emitera u životnoj sredini iznosio oko 592 TBq. Od tog vremena tehnološki uslovljenoj povišenoj prirodnoj radioaktivnosti počela je da se posvećuje veća pažnja. Tako su u nekim zemljama (SAD) doneti i propisi kojim se reguliše pitanje povišene prirodne radioaktivnosti uz obavezno provođenje mera zaštite. Nažalost u našoj zemlji ovom problemu se još uvek ne posvećuje potrebna pažnja a zakonska regulativa je uopštena i obuhvata samo građevinske materijale, dok termoelektrane na ugalj, ogromne deponije pepela i šljake i dalje ostaju potencijalni "radioaktivni izvor".

3.2.Tehnološko povećanje prirodne radioaktivnosti uslovljeno primenom mineralnih đubriva

Sve veća primena savremenih agrotehničkih mera, koje se zasnivaju na korišćenju fosfatnih đubriva, dovodi do preraspodele prirodnih radionuklida iz unutrašnjosti zemljine kore na njenu površinu. Hrana proizvedena na njivama, na kojima se koristi mineralno đubrivo, sadrži u većoj ili manjoj meri određene količine

prirodnog uranijuma i potomaka njegovog niza. Ma koliko mali bio sadržaj prirodnih radioaktivnih izotopa u hrani odnosno zemljištu, on se, voljom čoveka, sistematski povećava i dovodi do ozračivanja stanovništva većeg nego što je to prirodnim zakonima bilo regulisano.

3.2.1. Prirodni radionuklidi u zemljištu

Najznačajniji prirodni radionuklidi koji se nalaze u zemljinoj kori su uran, torijum i potomci njihovog radioaktivnog raspada.

U prirodi se uranijum javlja kao smeša tri dugoživeća izotopa: 99,28% U-238 ($T_{1/2}$=4,5·10^{9}god.), 0,71 % U-235 ($T_{1/2}$=7,1·10^8 god.) i 0,006% U-234 ($T_{1/2}$=2,5·10^{5}god.). Njegova koncentracija u zemljištu veoma se razlikuje u pojedinim delovima sveta, (tabela 9).

Tabela 9. Koncentracija urana u zemljištu [17]

Područje	U (ppm)
Novi Zeland	60
SAD	0,2 - 47
Francuska	1,2 - 37,6
Gabon	1 - 100
Poljska	0,5 - 12,5
SSSR	0,2 - 13
Japan	0,7 - 1,9
Srbija	0,08 - 5,9

Srednji sadržaj uranijuma u zemljinoj kori je oko 3·10^{-4} % a u gornjim slojevima se procenjuje da ga ima u količini od oko 10^{15} t. Aktivnost uranaijum u zemljištu u raznim zemljama u svetu kreće se od 7,4-37,7 mBq/g iako ima područja (npr. Peru), gde stene imaju aktivnost 76,2 mBq/g. Smatra se da se u zemljištu uran nalazi u dva osnovna oblika i to kao inertni i mobilni oblik. Inertni oblik uranijuma, koji čini 97% od ukupnog uranijuma nije od velikog značaja jer praktično ne migrira kroz biosferu, dok mobilni oblik (0,1-3%) ima ogroman ekološki i biološki značaj, jer može preći iz zemljišta u biljke procesom jonske izmene ili u obliku kompleksnih jedinjenja sa organskim kiselinama iz korenovog sistema.

Ra-226 nastaje radioaktivnim raspadom U-238, a u različitim količinama ga ima u skoro svim vrstama stena i zemljištu koje sadrži prirodni uran (u uranititu ga ima 0,14 g/t). Ra-226 se nalazi u neorganskim materijalima koji nastaju vulkanskom erupcijom, šumskim požarima, ili sagorevanjem uglja, a nalazi se i u meteoritima koji dospevaju na Zemlju. Biološki značaj Ra-226 zasniva se na činjenicama da je dugoživeći radionuklid ($T_{1/2}$=1622 god.), koji ima i dugo biološko vreme poluraspada (45 godina), u organizmu prati Ca i jedan je od najtoksičnijih radionuklida sa veoma izraženim kancerogenim dejstvom.

Distribucija Ra-226 u biosferi nije uniformna, ali može se reći da je na teritoriji Srbije njegova aktivnost u granicama od 18,5 mBq do 10,5 Bq/kg zemljišta [17]. Obzirom da se ponaša slično kalcijumu, resorpcijom iz zemljišta lako dospeva u biljke, (najbolji indikator koncentracije radijuma u zemljištu je luk), a potom preko namirnica biljnog i životinjskog porekla i do čoveka.

Radioekološki značaj imaju izotopi torijuma: Th-232 ($T_{1/2}$=1,4·10^{10} god.) i Th-228 ($T_{1/2}$=1,9 god.). U zemljištu i različitim stenama sadržaj torijuma varira od 8,1-33 ppm. Koncentracije torijuma u zemljištu na teritoriji Srbije kreću se u granicama od 0,35-25 ppm. Aktivnost Th-228 kreće se u granicama od 4-44 mBq/kg zemljišta u Srbiji. Međutim, nerastvorljivost i vrlo mala specifična aktivnost torijuma, čine da je njegova zastupljenost u biosferi vrlo mala, te ima i relativno mali ekološki značaj [17].

Ra-228 ($T_{1/2}$=6,7 god.) je prvi član torijumovog niza i jedini izotop radijuma koji je beta emiter. U prirodi se nalazi u odnosu 1:1 prema Ra-226.

3.2.2. Prirodni radionuklidi u mineralnom đubrivu

Sirovine za proizvodnju veštačkih đubriva su fosfatne rude apatit i fosforit. Apatiti su minerali vulkanskog porekla, opšta formula im je $Ca_5R(PO_4)_3$, u kojoj R označava elemente F,Cl ili OH grupu. Deo kalcijuma može biti zamenjen sa Sr, Ba, Mg ili nekim drugim elementom. Sadržaj urana je vrlo mali i iznosi nekoliko ppm. Fosforiti su rude sedimentnog porekla nastale taloženjem kalcijum-fosfata iz morske vode. Sadrže dosta kvarca-SiO_2, kalcita $CaCO_3$, dolomita -$CaCO_3$-$MgCO_3$, alumosilikata a sadržaj urana u njima varira u vrlo širokim granicama u zavisnosti od okolnosti pod kojima su te rude nastale. U tabeli 10 prikazan je prosečan sadržaj urana u prirodnim fosfatima koji sadrže približno istu količinu P_2O_5.

Tabela 10. Sadržaj uranijuma u različitim fosfatnim rudama [18]

Poreklo	P_2O_5	Uran (ppm)
Florida	33,42	180
Jordan	33,37	170
Safi	33,47	155
Izrael	30,37	140
Kossier	30,31	90
Gafsa	30,83	80
Marocco	28,90	40
Kola	38,22	12

Oko 85% ukupne svetske eksploatacije fosfatnih ruda koristi se u proizvodnji veštačkih đubriva. Korišćenjem 1.000.000 t fosforita, sa prosečnim sadržajem urana od 150 ppm, za godišnju proizvodnju i potrošnju veštačkih đubriva, na poljoprivredno zemljište se rasturi u toku godine 150 t uranijuma, što odgovara aktivnosti od

približno $3 \cdot 10^9$ Bq. U procesu proizvodnje mineralnih đubriva fosfatna ruda podleže fizičkom tretmanu (mlevenje) i različitim hemijskim tretmanima (razlaganje mineralnim kiselinama, ekstrakcija i dr.). Pri tome nastaju u zavisnosti od primenjenog postupka, fosforna kiselina, prosta fosfatna đubriva-superfosfat NSP i trostruki superfosfat TSP. Daljom preradom mogu se dobiti druge vrste đubriva (mešana, kompleksna) i fosfati za ishranu stoke. Tehnološki procesi koji se danas primenjuju ne omogućavaju izdvajanje uranijuma iz veštačkih đubriva. Najveći deo ukupne unete aktivnosti radionuklida iz fosfatne rude ostaje u finalnim proizvodima - mineralnom đubrivu. Manji deo radioaktivnih elemenata odlazi kroz ventilacione sisteme u toku procesa proizvodnje (gas Rn) i putem otpadnih voda.

3.2.3. Ponašanje radionuklida u zemljištu i migracija u biljke

Ponašanje prirodnih radionuklida u zemljištu nije dovoljno ispitivano zbog zanemarivanja uticaja tehnološki povišene prirodne radioaktivnosti na promenu prirodnog fona obradivog zemljišta. Radioaktivni izotopi elemenata koji su obično prisutni u zemljištu resorbuju se od strane biljke nezavisno od njihovih radioaktivnih osobina. Može se reći da resorpcija nekog dugoživećeg radionuklida od strane biljke zavisi u velikom stepenu od toga da li taj nuklid ostaje nadohvat korenovog sistema biljke i u kom hemijskom obliku se nalazi u zemljištu. Rastvoran oblik radionuklida može se adsorbovati na glinama, i staložiti kao oksid ili hidroksid i tako postati nepristupačan za biljku. Način na koji će se neki radionuklid rasporediti na različite frakcije zemljišta određuje koliko će dugo taj radionuklid biti na raspolaganju biljkama.

Zavisno od tipa zemljišta (kiselost i dr.), i hemijskog oblika uranijuma u mineralnom đubrivu, njegova asimilacija od strane biljaka je različita. To znači da hemijski sastav zemljišta, njegova struktura, pH i vlažnost znatno utiču na sposobnost vezivanja radionuklida u zemljištu tj. u delu u kome se nalazi korenov sistem biljke. Ukolko tlo sadrži više kalcijuma, utoliko će manje biljkama predati Sr-90 i Cs-137. Takođe i prisustvo kalijuma u zemljištu sprečava apsorpciju Cs u biljke.

4. ZAKLJUČAK

Uzimajući u obzir sve veće potrebe za energijom i hranom kao i procenu da će u sledećih deset godina upotreba uglja za proizvodnju električne energije i mineralnih đubriva porasti za faktor 10, mora se posvetiti daleko veća pažnja ispuštanju svih polutanata u životnu sredinu uključujući i tehnološki uslovljenu povišenu prirodnu radioaktivnost.

U radu je pokazano da je uticaj ova dva izovra povećanja prirodne radioaktivnosti značajan te je neophodno ovom problemu posvetiti daleko veću pažnju kako u naučnoistraživačkom i stručnom radu, tako i u pogledu zakonskog regulisanja tehnološki uslovljene povišene prirodne radioaktinosti.

LITERATURA

1. R.L.Kathren: Radioactivity in the environment: Sources, Distribution and Surveillance, Harwood Academic Publichers (HAP), New York, 1986.
2. G.Marović, A.Bauman: Radioaktivnost termoelektrana na ugljen. Kemija u industriji, 35(8) 427-434, 1986.
3. A.Bauman, J.Kovač: Tehnološki povišena prirodna radioaktivnost u termoelektranama na ugljen. čovek i životna sredina, 9(6) 49-51, 1984.
4. A.Mihalj, R.Kljajić, D.Samek: Natural Radioactivity in Coal and Its Solid Combustion Products in the "Kakanj" Termoelectric Power Plant. Proceeding of the Italian-Yugoslav Symposium on Radiation Protection, 353-357, Udine, Italy, ENEA, 1988.
5. A.Mihalj: Radioaktivnost u okolini termoelektrana na ugalj u Bosni i Hercegovini. Magistarski rad, Veterinarski fakultet, Sarajevo, 1988.
6. A.Mihalj, R.Kljajić, D.Samek, L.Saračević, E.Horšić: Godišnja emisija prirodnih radionuklida uslijed rada termoelektrana na ugalj. Savetovanje Energija i čovekova okolina, Zbornik radova, 127-133, Zagreb, 1989.
7. A.Mihalj, D.Samek, R.Kljajić: Procjena eksterne doze ozračivanja populacije u okolini termoelektrana na ugalj. Revija rada, 237-238/91, 55, Beograd, 1991.
8. A.Nokaoka, M.Fukushimi, Sh.Takagi: Environmental effects of natural radionuclides from coal-fired power plants. Health Physics, 47(3) 407-416, 1984.
9. UNSCEAR: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Sources and Effects of Ionizing Radiation. UN, New York, 1982.
10. H.L.Beck, C.V.Gogolak, K.M.Miller et al: Natural Radiation Environment III. CONF-780422, vol.2, 1980.
11. UNSCEAR-United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Sources and Effects of Ionizing Radiation. UN, New York, 1988.
12. G.D.Coles, C.R.Ragioni, J.M.Ondov: Environ. Sci. Technol.12, 442, 1978.
13. W.Jacobi: Umweltradioaktivitat und Strahlenexposition durch radioaktive Emissionen aus Kohlekraftwerken; GSF-Bericht S-760, Neuherberg, 1981.
14. W.Jockel: Radioaktive Emissionen aus Kohlekraftwerken. Bericht d. TUV Rheinland, Koln, Marz, 1980.
15. D.Antić, M.Šokčić-Kostić: Radiohemijski uticaj termoelektrana na okolinu. II Simpozijum "Hemija i zaštita životne sredine", VI-1, 547-548, Vrnjačka Banja, 1993.
16. D.Antić, J.Riznić, B.Maršićanin: Uporedna analiza zagađenja okoline od nuklearne elektrane i termoelektrane. XIV Simpozijum JDZZ, Zbornik radova, 201-204, Novi Sad, 1987.

17. B.Petrović, R.Mitrović: Radijaciona higijena u biotehnologiji, Naučna knjiga, Beograd, 1991.

UGLJEVI I VEŠTAČKA ĐUBRIVA KAO IZVOR TEHNOLOŠKOG POVEĆANJA PRIRODNE RADIOAKTIVNOSTI

Kljajić Ranko, Šipka Vojislava, Radenković Mirjana, Mitrović Radosav

Rezime

Razvojem novih tehnologija, koje treba da omoguće dovoljne količine energije i proizvodnju hrane dolazi do izmena nivoa prirodne radioaktivnosti. U ovom radu iznet je pregled uticaja rada termoelektrana na ugalj i upotrebe veštačkih djubriva na povećanje prirodne radioaktivnosti i zagadjivanje životne sredine prirodnim radionuklidima.

Ključne reči: tehnološki povišena prirodna radioaktivnost, termoelektrane na ugalj, veštačka djubriva

COAL AND FERTILIZERS AS A SOURCE OF TEHNOLOGICALLY ENHENCED NATURAL RADIOACTIVITY

Kljajić Ranko, Šipka Vojislava, Radenković Mirjana, Mitrović Radosav

Abstract

Natural radioactivity levels can be changed by development of new tehnologies. This paper is review about technologically enhanced natural radioactivity caused by wide-spread use of coal and fertilizers.

Key words: technologically enhanced natural radioactivity, coal power plants, fertilizers.

7.

NIVO AKTIVNOSTI PRIRODNIH RADIONUKLIDA NA ODLAGALIŠTU JALOVINE KOLUBARSKIH UGLJENOKOPA

Slobodanka Stanković, Ana Stanković
Institut za primenu nuklearne energije, INEP, Banatska 31b, Zemun

Radoman Benderać
Institut bezbednosti, P.O. Box 574, Beograd

1. UVOD

Deposoli (oštećene zemljišne površine nastale odlaganjem jalovine ugljenokopa) zahvataju znatne površine i uglavnom su poljoprivredne namene. Predvidja se da do 2000. godine bude obuhvaćena površina zemljišta od 150 km^2 rudarskim radovima i aktivnostima u rudarskom basenu "Kolubara".

Deposoli su siromašni u humusu, azotu, fosforu, bakru, kobaltu i mestimično kalijumu [1,2], dok je sadržaj pojedinih mikroelemenata u njima neujednačen [3].

Praktično, deposol predstavlja novoformirani supstrat u površinskom sloju kao mozaik osnovnih materijala iz geološkog profila iznad ugljenog sloja, sa minimalnim sadržajem organske materije [1].

Da bi se deposol "Kolubare" mogao primeniti u poljoprivredne i šumarsko biološke svrhe potrebno ga je oplemeniti sa većim količinama organske materije, kako bi se meliorativnim postupkom humizacije stvorili preduslovi za povećanje plodnosti deposola.

Mulj se, zbog visokog sadržaja ugljene prašine, može smatrati kao organski dodatak (djubrivo) deposolima, sadrži preko 50% ugljenika, 0,38% azota (zbog čega se u većim količinama može koristiti kao organsko azotno djubrivo). Sadržaj fosfora

u mulju je izuzetno nizak, prosečno 5,09 mg P_2O_5 /100g zemlje. Sadržaj kalijuma je, takodje, nizak (6,09 - 13,5 mg K_2O /100g).

Izrazito nepovoljni deposoli za biološku rekultivaciju su sivo-beli-ilovasti, zbog čega je za njihovu bolju snabdevenost mineralnim oblicima azota, neophodno unošenje većih količina i otpadnog mulja i mineralnog djubriva, što nije slučaj sa žutim i rudo-crvenim deposolima.

Topoljari su deposoli na kojima su zasadjene topole, koji prema reakciji tla (pH) od 7,3 - 8,0 pripadaju kategoriji slabo alkalnih zemljišta.

Od šezdesetih godina u svetu počinje kontrola koncentracije prirodnih radionuklida - potomaka urana i u neuranskim rudnicima. Pokazalo se da rasejanost urana u litosferi i u količinama koje nemaju značaja za eksploataciju, je moguće postojanje potomaka u koncentracijama koje su dovoljne da kontaminiraju radnu sredinu u uslovima podzemne rudarske eksploatacije. U našoj zemlji se već trideset godina prati koncentracija radona u rudnicima urana Kalna i Žirovski vrh (i to u 10 jama), a kasnije se to proširilo i na 13 jama neuranskih metaličnih rudnika [4].

Termoelektrane na ugalj, takodje, predstavljaju veoma značajne zagadjivače okoline prirodnim radionuklidima, jer se radionuklidi sadržani u uglju rasporedjuju na šljaku i pepeo, ili se direktno uključuju u gasovite produkte [5].

Tako su Barišić i saradnici, izmerili da je nivo aktivnosti ^{235}U i ^{238}U u uzorcima šljaka i pepela oko 100 puta viši nego u tlu [6].

Pored urana i torijuma u uglju se nalaze i drugi radionuklidi, medju kojima je značajan ^{40}K. Naši ligniti imaju oko 5 g/t urana, nešto više torijuma i 1000 g/t prirodnog kalijuma [7]. Na osnovu ovih podataka Antić i saradnici su proračunali da godišnje sa pepelom biva izbačeno u atmosferu oko 4500 kg urana, oko 9300 kg torijuma i oko 1300 kg ^{40}K uzimajući u obzir TE "Morava" [8].

Kako se deposoli, uglavnom, koriste kao poljoprivredno zemljište i to 70,6% neophodna je sistematska kontrola prirodnih radionuklida u njima, kako bi se zaštitila poljoprivredna proizvodnja od radiokontaminacije.

2. MATERIJAL I METODE

Nivoi aktivnosti prirodnih radionuklida: ^{226}Ra, ^{232}Th i ^{40}K, kao i ^{137}Cs, analizirani su u uzorcima deposola i topoljara kolubarskog ugljenokopa. Uzorci deposola su različiti zavisno od prisustva i sadržaja mulja i djubriva NPK, i veličine čestica. Uzorci topoljara su takodje sadržavali mulj.

Svi homogenizovani uzorci su sušeni na 150 C, zatim zatopljeni parafinom u Marinelli posudama i ostavljeni da odstoje preko 30 dana, kako bi se uspostavila radioaktivna ravnoteža izmedju ^{226}Ra i radonovih potomaka raspada ^{214}Pb i ^{214}Bi.

Gamaspektrometrijska analiza izvršena je korišćenjem spektrometrijskog sistema "ADCAM MCA - 350" (ORTEC) sa poluprovodničkim detektorom od čistog germanijuma, čija je rezolucija 1,85 keV za energiju 1,33 MeV ^{60}Co. Kalibracija detektora izvršena je sekundarnim etalonim izvorom, čija je merna neodredjenost bolja od 5% (Marinelli standard 1L, epoksi smola = 1,1 g/cm^3 na bazi ^{133}Ba + ^{137}Cs + ^{152}Eu). Marinelli posude u kojima su zatopljeni uzorci zemlje bile su iste zapremine

kao i standard, tako da su faktori za geometriju i samoapsorpciju smatrani da su jednaki jedinici. Vreme merenja uzoraka iznosilo je 86000s.

Osim gamaspektrometrijske analize uzoraka deposola i topoljara radjena je i rendgenfluorecsentna analiza na spektrometru TEFA 6110 (ORTEC). Ovaj uredjaj kao detekcioni sistem koristi poluprovodnički detektor Si(Li), čija je rezolucija 165 eV za energiju od 5,9 keV (Mn, Ca).

3. REZULTATI I DISKUSIJA

Analizirano je 18 uzoraka deposola i topoljara, ali su u tabelama 1, 2 i 3 prikazane samo vrednosti tipičnih uzoraka zemljišta.

Tabela 1. Nivo aktivnosti prirodnih radionuklida i ^{137}Cs u sivo-belom deposolu bez dodatka mulja

Radionuklid	Aktivnost (Bq/kg) ± SD
^{232}Th	42,9 ± 1,6
^{226}Ra	30,5 ± 0,9
^{40}K	166,3 ± 5,3
^{137}Cs	50,6 ± 0,8

Tabela 2. Nivo aktivnosti prirodnih radionuklida i ^{137}Cs u sivo-belom deposolu sa dodatkom 112 tona mulja/ha

Radionuklid	Aktivnost (Bq/kg) + SD
^{232}Th	44,4 ± 1,5
^{226}Ra	28,6 ± 2,0
^{40}K	122,1 ± 8,5
^{137}Cs	3,2 ± 0,7

Tabela 3. Nivo aktivnosti prirodnih radionuklida i ^{137}Cs u topoljaru sa dodatkom 112 tona mulja/ha

Radionuklid	Aktivnost (Bq/kg) + SD
^{232}Th	61,2 ± 3,5
^{226}Ra	43,9 ± 2,0
^{40}K	91,5 ± 1,5
^{137}Cs	60,4 ± 1,5

Analizirajući dobijene rezultate za nivoe aktivnosti svih gore navedenih očigledno je da su vrednosti ujednačene za sve radionuklide, izuzev ^{40}K i ^{137}Cs. Maksimalni nivo aktivnosti za ^{40}K je 166,4 Bq/kg, što je niže od nivoa aktivnosti ^{40}K u jezerskim sedimentima koji iznose 154,63 - 284,90 Bq/kg i u uzorcima priobalnog tla do 325 Bq/kg [10]. U šljaci ove vrednosti su još više, preko 444 Bq/kg [11].

Nivoi aktivnosti ^{232}Th su ujednačene, maksimalna izmerena vrednost iznosi 61,2 Bq/kg. Za nivo aktivnosti ^{232}Th u pesku dobijene su vrednosti do 58,4 Bq/kg [9], a vrednost koju smo mi dobili za sivo-beli deposol iznosi 42,9 Bq/kg. Sadržaj ^{226}Ra je od 28,6 do 43,9 Bq/kg. Za jezerske sedimente dobijeno je 98,2, a za priobalno tlo 193,39 [10], za šljaku 407 [11] i za crnicu 16,9 Bq/kg za ^{226}Ra [12]. Nivoi aktivnosti ^{137}Cs su neujednačeni i nalaze se u intervalu od 3,2 do 60,4 Bq/kg, što je posledica različite dubine uzorkovanja u tlu.

4. ZAKLJUČAK

U svim ispitivanim uzorcima zemlje: deposola i topoljara mogu se detektovati prirodni radionuklidi: ^{232}Th, ^{226}Ra i ^{40}K, kao i ^{137}Cs, čiji nivoi aktivnosti ne odstupaju od uobičajenih izmerenih aktivnosti za druge tipove zemljišta.

LITERATURA

1. Stojanović, D., Martinović, B., Vučković, M., Simić, S., Filipović, R.: *Hemijski sastav zemljišta oštećenih rudarskim radovima*, Zemljište i biljka, Vol.26, No.2, 141-146, 1977.
2. Filipović, R., Simić, S., Kotlajić, M., Lazarević, M., Mihajlović, N., Čanak, A.A.: *Analiza i rezultati dosadašnjih istraživanja rekultivisanih površina jalovina površinskih kopova basena Kolubara* , Zbornik radova VI Jugoslovenskog simpozijuma o površinskoj eksploataciji mineralnih sirovina, 359-370, 1986, Tuzla.
3. Djurdjeviš, M., Filipoviš, R., Kotlajić, M.: *Sadržaj mikroelemenata u jalovinama ugljenokopa kolubarskog basena u procesu agrobiološke rekultivacije*, Zemljište i biljka, Vol.37, No.2, 152-164, 1988.
4. Hajduković, D.: *Trideset godina merenja radona 222 u radnoj i životnoj sredini (1960.-1990.)*, Zbornik radova XVI Jugoslovenskog simpozijuma za zaštitu od zračenja, 39-44, 1991, Neum.
5. Lulić, S., Martak, M.: *Proračun doza radioaktivnog ozračenja uslijed rada TE Plomin 1. i 2.*, Zbornik radova XIII Jugoslovenskog za zaštitu od zračenja, 77-80, 1985, Pula.
6. Barišić, D., Lulić, S.: *Prirodni radionuklidi u šljakama i pepelima iz termoelektrana na ugljen*, Zbornik radova XV Jugoslovenskog simpozijuma za zaštitu od zračenja, 91-94, 1989, Priština.
7. Adžić, P.R., Kukoč, A.H., Stepić, R.: *Determination of Thorium, Uranium and Potassium in Some National Coals*, Fizika, 14/1, 1-5, 1981.

8. Antić, D., Riznić, J., Maršićanin, B.: *Uporedna analiza zagadjenja okoline od nuklearne elektrane i termoelektrane*, Zbornik radova XIV Jugoslovenskog simpozijuma za zaštitu od zračenja, 201-204, 1987, Novi Sad.
9. Trajić, I., Mijatović, Lj.D., Pantelić G.K.: *Sadržaj prirodnih radionuklda u gradjevinskom materijalu u Srbiji*, Zbornik radova II simpozijuma hemija i zaštita životne sredine, 575-576, 1993, Vrnjačka banja.
10. Kljajić R., Mihalj, A., Samek, D.: *Specifična aktivnost prirodnih i fisionih radionuklida u sedimentima veštačkih jezera*, Zbornik radova XVI Jugoslovenskog simpozijuma za zaštitu od zračenja, 51-54, 1991, Neum.
11. Marović, G., Bauman, A.: *Radioaktivnost termoelektrana na ugljen*, Zbornik radova XVI Jugoslovenskog simpozijuma za zaštitu od zračenja, 168-171, 1987, Novi Sad.
12. Mijatović, Lj., Vukotić, M.: *Distribucija olova-210 i radijuma-226 u različitim tipovima zemljišta*, Zbornik radova XV Jugoslovenskog simpozijuma za zaštitu od zrašenja, 70-73, 1989, Priština.

NIVO AKTIVNOSTI PRIRODNIH RADIONUKLIDA NA ODLAGALIŠTU JALOVINE KOLUBARSKIH UGLJENOKOPA

Slobodanka Stanković, Radoman Benderać, Ana Stanković

Rezime

Primenom gamaspektrometrije izmereni su nivoi aktivnosti prirodnih radionuklida: ^{232}Th, ^{226}Ra i ^{40}K, kao i veštačkog radionuklida ^{137}Cs u uzorcima deposola koji se uglavnom primenjuju u poljoprivrednoj proizvodnji.

Ključne reči: Deposol, topoljar, prirodni radionuklidi, gamaspektrometrija

THE LEVELS OF ACTIVITY OF NATURAL RADIONUCLIDES IN BARREN SOILSIN KOLUBARA COAL-MINES

Slobodanka Stanković, Radoman Benderać, Ana Stanković

Abstract

The levels of activity of natural radionuclides: ^{232}Th, ^{226}Ra, ^{40}K, and ^{137}Cs as the artificial radionuclide were determined in samples collected from barren soils used mostly for agriculture, using the method of gammaspectrometry.

Key words: barren soil, poplar stand, natural radionuclides, gammaspectrometry.

8.

KONTROLA PRIRODNE RADIOAKTIVNOSTI NA DEPONIJAMA ŠLJAKE I PEPELA TENT-A i TENT-B

Ljiljana Mijatović, Ivan Trajić

Klinički centar Srbije, Institut za medicinu rada
i radiološku zaštitu "Dr Dragomir Karajović", Beograd

1. UVOD

U periodu od 1990-1993. godine Institut za medicinu rada i radiološku zaštitu "Dr Dragomir Karajović" vršio je sistematsku kontrolu radioaktivnosti u radnoj i životnoj sredini TE Nikola Tesla u Obrenovcu i Ušću.

Povećana koncentracija prirodnih radionuklida na deponijama šljake i pepela spada u takozvanu "tehnološki povećanu prirodnu radioaktivnost". Tehnološki povećana prirodna radioaktivnost nastaje od prirodnih izvora kojih ne bi bilo da ne postoji ljudska aktivnost u tehnološkim procesima koji nisu vezani direktno za nuklearnu proizvodnju već za neku drugu vrstu delatnosti.

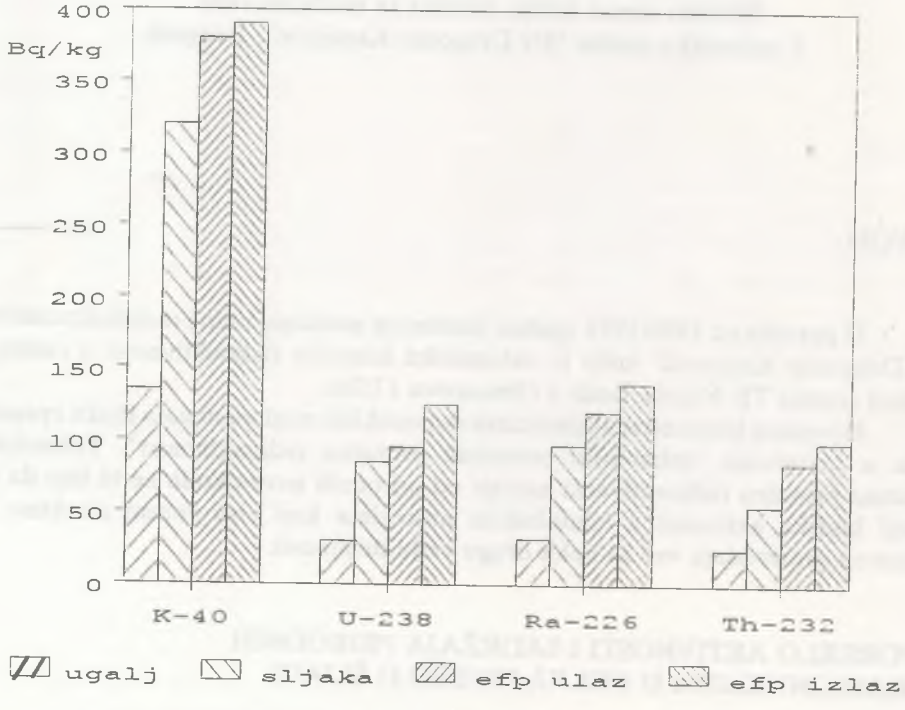
2. POREKLO AKTIVNOSTI I SADRŽAJA PRIRODNIH RADIONUKLIDA U UGLJU, PEPELU O ŠLJACI

Termoelektrana kao energent koristi ugalj. Svaki ugalj kao i ostali prirodni materijali sadrži u mikrokoličinama radionuklide uranovog i torijumovog niza i ^{40}K. Koncentracije u različitim vrstama uglja kreću se u širokom opsegu, mogu da se

razlikuju za dva reda veličine. U opštem slučaju najviše vrednosti se nalaze u kamenom uglju. Specifične aktivnosti u istim vrstama uglja mogu da se razlikuju za red veličine, naime distribucija aktivnosti nije uniformna. Sadržaj prirodnih radionuklida u uglju koji koriste termoelektane "Nikola Tesla" (ugalj iz Lazarevca) je u granicama koje se nalaze za ovu vrstu uglja kod nas i u svetu.

Pri radu termoelektrana ugalj sagoreva na visokoj temperaturi, organska komponenta uglavnom sagoreva, a radionukidi vezani za mineralni deo raspoređuju se i koncentrišu na šljaku i pepeo, sa izuzetkom radioaktivnih gasova i isparljivih mineralnih materija. Faktor obogaćenja zavisi od forme u kojoj su vezani radionuklidi u mineralnom delu uglja, od temperature sagorevanja, veličine čestica na kojima se vrši kondenzacija duž kotla i dimnjaka.

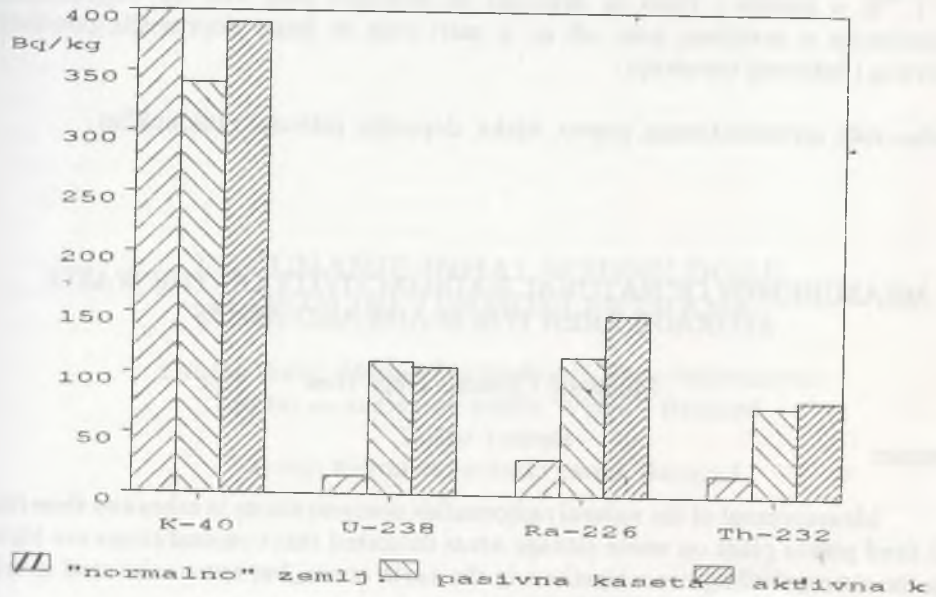
Rezultati merenja specifičnih aktivnosti radionuklida u uglju, kotlovskoj šljaci i elektrofilterskom pepelu dati su na slici 1 i pokazuje sledeće:
- u uzorcima uglja ^{238}U i ^{226}Ra su u ravnoteži
- kotlovska šljaka i pepeo su obogaćeni prirodnim radionuklidima
- obogaćenje je veće kod elektofilterskog pepela nego kod šljake u odnosu na početnu sirovinu ugalj. Najveće obogaćenje je za ^{226}Ra što je i očekivano jer se ^{238}U većim delom stapa sa alumosilikatima i pada na dno.



Slika1: Sadržaj prirodnih radionuklida u uglju, šljaci i EFP

Vrlo mali deo od ukupno proizvedenog pepela pri radu moderne termoelektrane ispušta se kroz dimnjak u okolinu. Ostatak se odlaže hidrauličkim putem

na deponije, tako da zemljište na njima sadrži nekoliko puta veće koncentracije prirodnih radionuklida od "normalnog zemljišta". Na slici 2 prikazan je sadržaj prirodnih radionuklida u uzorcima šljake i pepela sa deponija TENT-A i TENT-B. Izmerene koncentracije ^{40}K kretale su se oko prosečnih koncentracija u zemljištu, dok su koncentracije ^{238}U, ^{226}Ra i ^{232}Th nekoliko puta više. Razlika u sadržaju radionuklida na pasivnim i aktivnim kasetama nije značajna, što potvrđuje ranije proračunate vrednosti koeficijenata transfera radionuklida iz zemljišta u biljku preko korenovog sistema.



Slika 2: Sadržaj prirodnih radionuklida u uzorcima šljake i pepela sa deponija

3. TEHNIČKA KONTROLA

Za analiziranje aktivnosti uzorci su sakupljani nekoliko puta u toku godine. Uzorci su sakupljani i obrađivani standardnim metodama propisanim od strane IAEA. Aktivnost uzoraka je određivana gamaspektometrijskom analizom na čistom germanijumskom detektoru firme ORTEC, relativne efikasnosti 25 % i rezolucije 1,85 keV.

LITERATURA:

1. Marović G., Bauman A. *Radioaktivnost TE na ugalj*, IV Simpozijum JDZZ Novi SAd, 1987
2. Mihalj A. *Radioaktivnost u okolini TE na ugalj u BiH*, magistarski rad, Sarajevo, 1988
3. Santis V., Longo I. *Coal energy vs nuclear energy*, Health Physics, Vol.46, No.1, pp 73-84, 1984

KONTROLA PRIRODNE RADIOAKTIVNOSTI NA DEPONIJAM ŠLJAKE I PEPELA TENT-A i TENT-B

Mijatović Ljiljana, Trajić Ivan

Rezime:

Izmerene specifične aktivnosti prirodnihradionuklida uranovog i torijumovog niza i ^{40}K u pepelu i šljaci sa deponija su nekoliko puta više od odgovarajućih koncentracija u zemljinoj kori, ali ne u meri koja bi bitno doprinosila povećanju eksternog i internog ozračenja.

Ključne reči: termoelektrana, pepeo, šljaka, deponija, prirodni radionuklidi

MEASUREMEN OF NATURAL RADIOACTIVITY ON THE WASTE STORAGE AREA FOR SLAGS AND ASHES

Mijatović Ljiljana, Trajić Ivan

Abstract:

Measurement of the natural radionuclide concentrations in ashes and slags from coal-fired power plant on waste storage areas indicated that concentrations are higher than the corresponding concentrations in the earth crusts, but not so elevated to arise significantly internal and external exposure.

Key words: coal-fired power plant, ashes, slags, waste storage area, natural radionuclides

9.

RAČUNANJE INHALACIONE DOZE U OKOLINI TERMOELEKTRANA

Dragan Antić, Marina Šokčić-Kostić, Sava Milovanović
Institut za nuklearne nauke "Vinča", Beograd
Boško Telenta
Savezni hidrometeorološki zavod, Beograd

1. UVOD

Ugalj koji sagoreva u termoelektranama sadrži sumpor, čijim sagorevanjem nastaje sumpordioksid (u atmosferi stvara efekat kiselih kiša), razne teške metale i druge materije štetne po zdravlje štanovništva, kao i prirodne radionuklide iz lanaca raspada uranijuma i torijuma i radioaktivni ^{40}K. Oni se delimično ispuštaju u okolinu kroz dimnjak, a većim delom ostaju u pepelu. Udisanjem i kroz lance ishrane ovi polutanti dospevaju u ljudski organizam i izazivaju štetne efekte. Procena štetnog uticaja ovih polutanata je vrlo složena zbog postojanja velikog broja raznorodnih fizičkih, hemijskih i bioloških procesa i zbog potrebe da se svi ti raznorodni efekti dovedu u mogućnost uzajamnog poredjenja i prikaz kroz neposredni zdravstveni efekat po izloženo stanovništvo, [1].

Ovaj rad je posvećen analizi transporta prirodnih radionuklida iz uglja u atmosferi u okolini termoelektrana pri različitim meteorološkim uslovima. Analizirani su slučajevi termoelektrana u blizini Beograda, na osnovu raspoloživih merenih podataka o sadržaju radionuklida u pepelu koji se ispušta u atmosferu, uz korišćenje realnih meteoroloških parametara. Za proračune transporta polutanata u okolini termoelektrane korišćen je meteorološki model oblaka koji uključuje fizičke procese u atmosferi i modeluje kretanje polutanta.

2. KARAKTERISTIKE I MOGUĆNOSTI KORIŠĆENOG MODELA

Modeli za analizu radiološkog uticaja energetskih izvora na okolinu razvijani su uglavnom za analizu radiološkog uticaja nuklearnih elektrana i postrojenja. Takvi su Gaussovski modeli za perjanicu sa usrednjavanje po sektorima ruže vetrova, koji su pogodni za analize dugotrajnih emisija radionuklida, modeli urbane difuzije, gradientni transportni modeli, modeli oblaka itd., [2]. Svaki od ovih modela ima neke pogodnosti za korišćenje, ali su mnogi od njih primenljivi samo na analize ograničene klase problema u okviru sigurnosnih analiza.

Trodimenzioni model oblaka, [3], pruža velike mogućnosti za analizu transporta polutanata u atmosferi. Model je adaptiran za potrebe analize radiološkog uticaja energetskih izvora na okolinu, [4], kao deo jednog opšteg generalizovanog modela za uporedne analize uticaja energetskih izvora na okolinu. Zasnovan je na na modelu hidrodinamike iz reference [5] i modelu termodinamike i mikrofizike iz reference [6], a detaljnije o modelu dato je u referenci [7].

Adaptirana dvodimenziona verzija modela oblaka sadrži deset prognostičkih jednačina: dve jednačine momenata količine kretanja; jednu termodinamičku jednačinu; jednu jednačinu za pritisak; četiri jednačine kontinuiteta za vodenu supstancu; jednu jednačinu za koncentraciju polutanta (radionuklid ili hemijski polutant) i jednu jednačinu za turbulentnu kinetičku energiju.

Model simulira transport radionuklida, uz vremensku promenu meteoroloških parametara, tako da je moguće praćenje prostorne raspodele karakterističnih fizičkih veličina, npr. konture oblaka vodene pare, koncentracije vode, snega i leda u oblaku, raspodela pravaca, smerova i intenziteta vetra itd. Ispuštanje efluenata se može simulirati kao konstantno ili kao pojedinačno u obliku tzv. "pufova". Visina i temperatura dimnjaka se simulira visinom tačke u kojoj se ispuštaju efluenti. Korišćenjem različitih setova meteoroloških parametara je moguće simuliranje različitih vremenskih prilika u okolini energetskog izvora (dugoročne karakteristike, koje bi odgovarale podacima koji se koriste kod primene Gaussovskih modela, kao i simulacija posebnih meteoroloških situacija, kao sto su razvoj oblaka u blizini energetskog izvora, razvoj oluje itd.).

U odnosu na prostornu mrežu modela oblaka, emitovani efluent se oslobadja u podmrežnim razmerama (mreža je reda nekoliko stotina metara, a efluent se oslobadja u prostoru reda desetak metara), zbog čega se njegova advekcija i turbulentna difuzija moraju parametrisati. U cilju adekvatnijeg modelovanja transporta, difuzije i uklanjanja efluenata (radionuklidi ili dugi polutanti), emisija efluenata se može aproksimiranati ispuštanjem pojedinačnih oblačića u ograničenoj zapremini konstantne koncentracije, tzv. "pufovima". Moguće je razmatrati pojedinačne pufove, ili kontinualno ispuštanje polutanata simulirati povorkom pufova. Posle emitovanja iz dimnjaka elektrane, dalje širenje efluenta u atmosferi simulira se kretanjem i širenjem svakog pojedinačnog pufa. Svaki puf se u modelu tretira odvojeno i uključuje u prostornu mrežu za proračun po modelu (proračunato polje vetra se interpolira u poziciju centra pufa).

Advekcija pojedinačnog pufa računa se na osnovu vrednosti vetra bilinearno interpolisanog iz četiri najbliže tačke mreže. Turbulentno širenje pufa opisuje se rastom njegovog poluprečnika, koji je funkcija vrednosti koeficijenta turbulentne difuzije, [8].

Kada se dimenzije pufa prošire do veličine koraka u mreži modela, dalji transport efluenta se prati pomoću jednačine kontinuiteta. Do ovog trenutka posmatrani puf je se kretao samo nošen vetrom i širio se usled turbulencije, a sada se u modelovanje procesa uključuje i advekcija.

Modelovanje kretanja efluenata u obliku ovakvih pufova pruža mogućnost za simulaciju putanja emitovanih polutanata koja je u velikoj meri bliža realnom slučaju, nego što je to moguće korišćenjem uobičajenih modela koji računaju sa usrednjenim podacima i zasnivaju se na ruži vetrova. Tretman polutanata u formi pufa omogućava stalno praćenje njihovog položaja tokom složenih procesa u atmosferi, koji nastaju kao posledica odabranih meteoroloških parametara. Na taj način se omogućava tačnost modelovanja kretanja efluenata u granicama mogućnosti modelovanja meteoroloških fizičkih procesa, što sadrži neuporedivo više podataka od analize samo na osnovu pravaca i učestalosti vetrova u nekom vremenskom intervalu.

Prethodno opisani numerički model iskorišćen je za simulaciju transporta efluenata u okolini termoelektrane. Korišćen je dvodimenzioni prostorni domen visine 12 km i širine 35 km. Duži vremenski korak je bio 5 s a kraći 1 s. Prostorni korak je 0,5 km u horizontalnom i 0,25 km u vertikalnom pravcu.

3. NEKI REZULTATI ANALIZA

3.1. Podaci korišćeni za proračune

Sastav uglja je vrlo promenljiv, čak i za slučaj jednog rudnika, odnosno površinskog kopa. Sadržaj prirodnih radionuklida varira u širokom opsegu, pa su i doze u okolini termoelektrane promenljive iz ovih razloga (pored normalne zavisnosti od meteoroloških parametara), kako je pokazano u referenci [9] na primerima ugljeva iz različitih rudnika iz Srbije i Bosne.

Za četiri termoelektrane u okolini Beograda (Kolubara A i B i Nikola Tesla A i B), korišćeni su za analize mereni podaci o sastavu uglja i pepela, [10,11]. Dimnjak termoelektrane je kod proračuna postavljen u centar prostornog domena. Računato je sa visinom dimnjaka od 200 m, temperaturom gasova na izlazu iz dimnjaka od 200 °C i sa 1% emisije pepela. U tabeli 1. je prikazan udeo pepela i podaci o sadržaju prirodnih radionuklida u uglju kod analiziranih termoelektrana, koji su korišćeni za računanje emisija radionuklida iz analiziranih termoelektrana.

Tabela 1. Podaci o uglju i proračunate inhalacione doze na mestima maksimalne koncentracije prirodnih radionuklida

Ime TE	Udeo pepela [%]	Sadržaj u uglju [Bq/kg]			Jačina ekv. doza [nSv/h]	
		^{40}K	U	Th	Br.1.	Br.2.
Kolubara A	18	160.9	36.0	29.3	2.22	4.87
Kolubara B	15	80.8	34.9	29.9	1.50	3.32
N. Tesla A	12	140.8	50.2	38.1	1.42	3.01
N. Tesla B	12	140.8	50.2	38.1	1.90	4.20

Računate su koncentracije prirodnih radionuklida (uranijum i torijum i njihovi potomci iz lanaca radioaktivnog raspada, kao i radioaktivni nuklid kalijuma) u prizemnom sloju vazduha u okolini elektrane. Na osnovu izračunate koncentracije radionuklida na 1 m iznad tla (niz vetar u odnosu na dimnjak elektrane) računata je inhalaciona doza za odraslu osobu, korišćenjem konverzionih faktora iz literature, [12,13].

Za pomenute termoelektrane računata su dva slučaja dugoročnih ispuštanja efluenata, sa usrednjenim meteorološkim parametrima, koji su korišćeni kod nekih ranijih analiza na primeru termoelektrane sa pretpostavljenim sadržajem prirodnih radionuklida u uglju, [1,9].

Korišćeni setovi realnih meteoroloških podataka sadrže sve bitne parametre za karakteristične meteorološke prilike (različiti sadržaji vlage u atmosferi, različiti intenziteti vetra i profili brzine vetra po visini, stabilne i promenljive situacije itd.). Dugotrajna ispuštanja efluenata su simulirana stabilnom meteorološkom situacijom bez padavina sa pravcima i intenzitetima vetra koji odgovaraju realnim prosečnim vrednostima za posmatrani vremenski interval.

Težište ovog rada bilo je na analizama uticaja brzih promena meteoroloških parametara na raspodelu prirodnih radionuklida u okolini termoelektrane Kolubara A. Analizirana su tri slučaja brzih promena meteoroloških parametara:

Slučaj 1. odgovara *razvoju jedne realne sondirane konvektivne oluje*, koja se inicira unošenjem temperaturske perturbacije 6 km levo od dimnjaka i 0,5 km iznad tla, istovremeno sa početkom emitovanja radionuklida iz dimnjaka;

Slučaj 2. odgovara istoj meteorološkoj situaciji, ali *sa razvojem konvektivne oluje bez temperaturske perturbacije*, tako da se oblak sporije razvija;

Slučaj 3. odgovara slučaju 1. *bez sadržaja vlage ("suvi slučaj")*, tako da ne dolazi do formiranja oblaka.

Na slikama 1. do 3. prikazani su realni sondirani meteorološki parametri, koji su korišćeni u primenjenom modelu prilikom proračuna (vertikalni profil brzine vetra na slici 1., vertikalni profil sadržaja vodene pare na slici 2. i vertikalni profil potencijalne temperature na slici 3.).

3.2. Rezultati proračuna pri odabranim meteorološkim uslovima

Kod slučajeva dugoročnih ispuštanja radionuklida kod analiziranih termoelektrana dobijene su maksimalne koncentracije radionuklida rastojanju 9,5 km i 1 km od elektane na površini tla niz vetar. U tabeli 1. prikazane su vrednosti izračunatih brzina inhalacionih doza za odraslu osobu na mestima maksimuma.

Izračunate godišnje inhalacione doze za odraslu osobu od prirodnih radionuklida iz uglja za pomenute termoelektrane kreću se u opsegu 20-60 μSv, što je znatno ispod dozvoljenih nivoa izloženosti stanovništva zračenju, ali je višestruko veće od ukupne godišnje doze u okolini nuklearne elektrane iste električne snage u normalnom radnom režimu. Naravno, treba odmah napomenuti da je radijaciona opasnost usled udesnog stanja nuklearne elektrane mnogo puta veće od opasnosti u normalnom radnom režimu, što ne važi za slučaj termoelektrane.

Kod analiza navedena tri slučaja brzopromenljivih meteoroloških stanja potvrdjen je očekivani veliki uticaj meteoroloških parametara (formiranje i kretanje oblaka i njegova interakcija sa perjanicom iz dimnjaka elektrane, padavine i ispiranje radionuklida, brzina vetra itd.) na trajektorije kretanja radionuklida posle emitovanja iz dimnjaka elektrane, tako da postoje velike varijacije koncentacije radionuklida i brzine doze u odnosu na neku usrednjenu dugotrajnu vrednost.

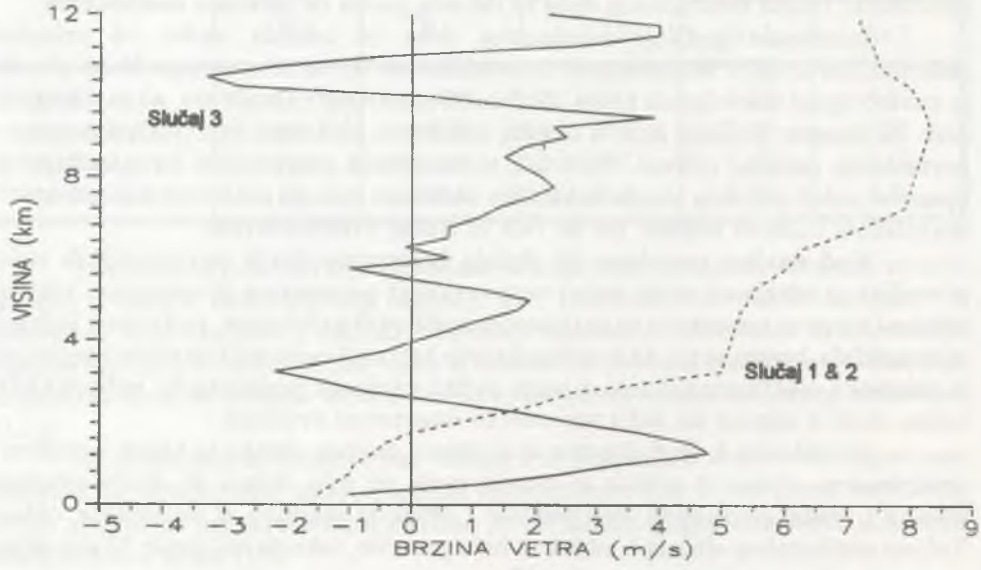
Na slikama 4. do 9. ilustrovan je razvoj olujnog oblaka sa kišom i gradom u analiziranom slučaju 2. Oblak se razvija posle 60 min, dolazi do desetominutnog pljuska i grada, posle čega kiša prestaje i oblak se udaljava iz analizirane oblasti. Tokom analiziranog slučaja 1. oblak se brže generiše, tako da već posle 30 min dolazi do pljuska, što je prikazano na slici 10.

Tokom analiziranih meteoroloških situacija sa razvojem olujnog oblaka, uz korišćenje modelovanja ispuštanja efluenata u formi "pufova", dobijene su u nekim periodima analiziranog procesa brzine doza koje su višestruko veće od brzina doze koje odgovaraju izračunatim dugoročnim dozama. To znači da postoji mogućnost da u nepovoljnoj kombinaciji udesa na elektrani i meteorološke situacije može da dodje do deponovanja veće količine radionuklida na površini manjih razmera (npr. u urbanoj zoni u blizini elektrane).

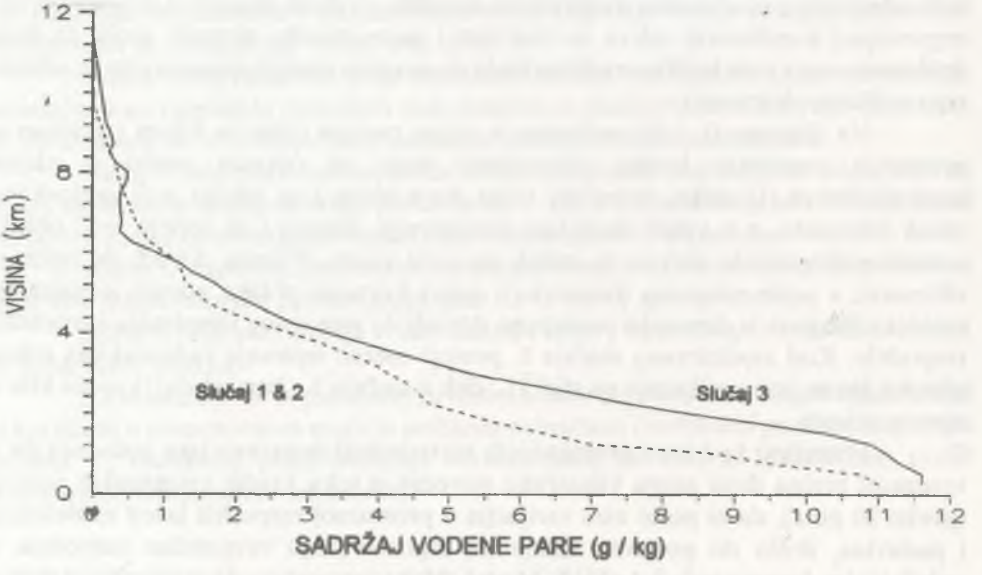
Na slikama 11. i 12. prikazan je uticaj razvoja oluje sa kišom i gradom na prostornu raspodelu brzine inhalacione doze za odraslu osobu u okolini termoelektrane. U nižim slojevima vetar duva ulevo i sa sobom nosi radioaktivni oblak efluenata, a u višim slojevima intenzivnije udesno i sa sobom nosi oblak i ostatak radionuklida koji su se izdigli na veću visinu. Pljusak dovodi do ispiranja efluenata, a posle njegovog prestanka i daljeg kretanja oblaka udesno kontinualna emisija efluenata iz dimnjaka postepeno dovodi do ponovnog formiranja ravnotežne raspodele. Kod analiziranog slučaja 2. postoji osetno ispiranje radionuklida tokom pljuska, što se jasno pokazuje na slici 11., dok u slučaju 3. ("suvi slučaj") nema kiše ni njenog uticaja.

Proračuni kod brzo promenljivih meteoroloških parametara pokazuju da se vrednosti brzina doza mogu višestruko povećati u toku kraćih vremenskih perioda (preko 20 puta), da bi posle niza varijacija u prostornoj raspodeli usled turbulencija i padavina, došlo do ponovne težnje ka uspostavljanju ravnotežne raspodele sa uobičajenim dozama reda 3-4 nSV/h. Model oblaka omogućava da se simuliraju složeni

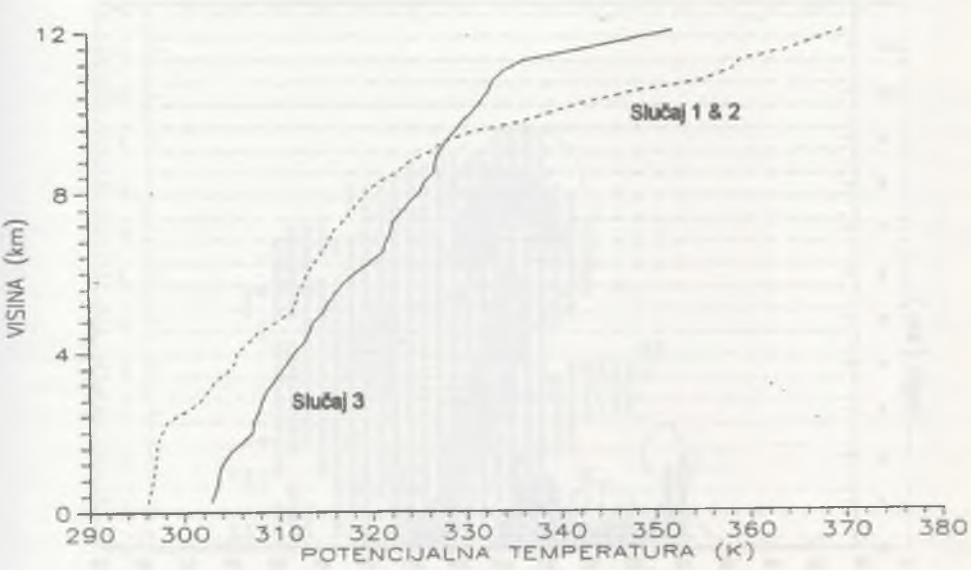
procesi tokom ove brze promene i da se prati kretanje radionuklida mnogo vernije nego što to omogućava Gaussov model, koji se mnogo koristi kod sigurnosnih analiza.



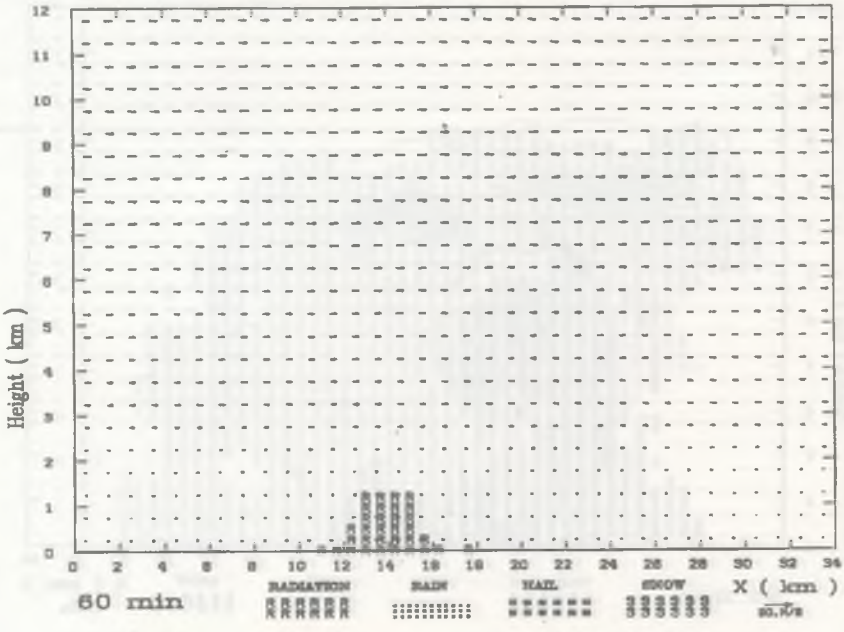
Slika 1. Vertikalni profil brzine vetra



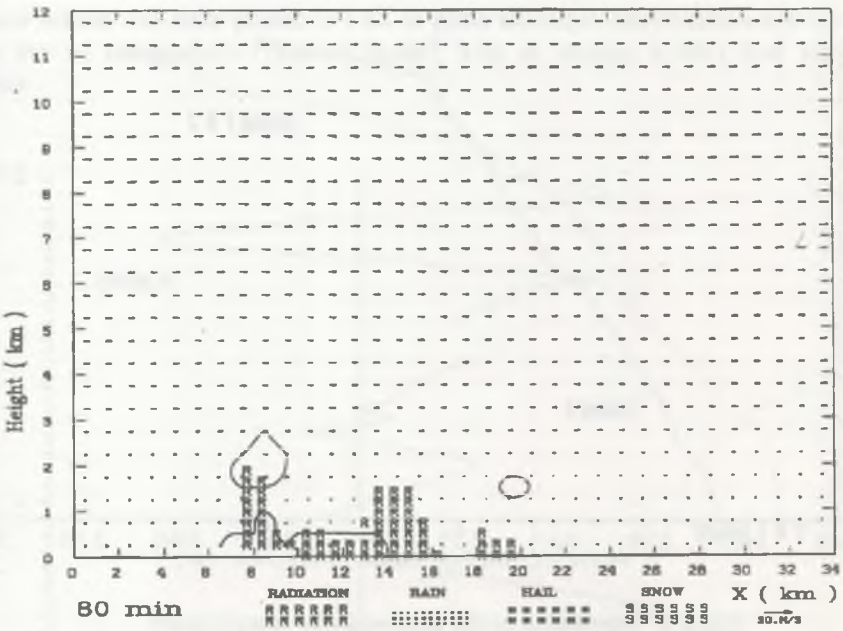
Slika 2. Vertikalni profil sadržaja vodene pare



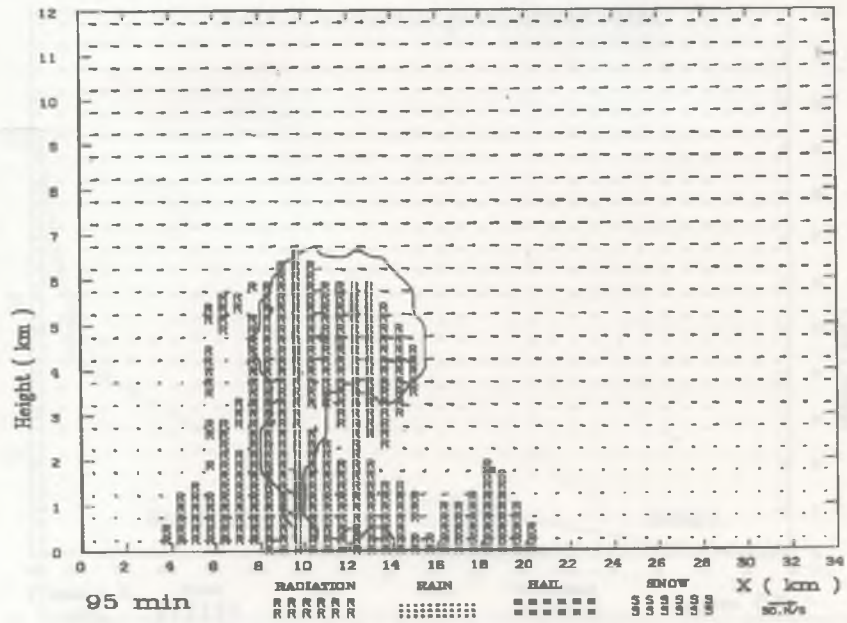
Slika 3. Vertikalni profil potencijalne temperature



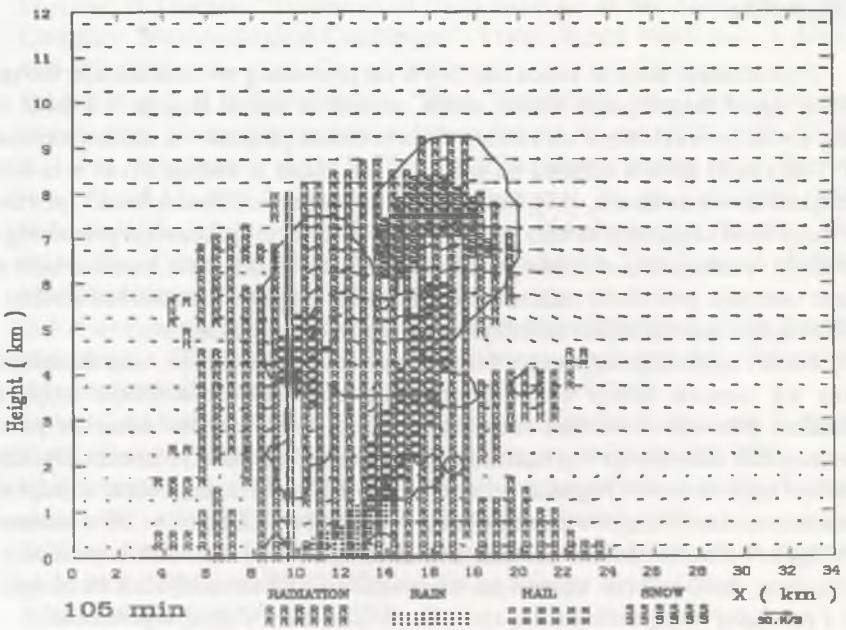
Slika 4. Analizirani slučaj 2. - razvoj oblaka posle 60 min



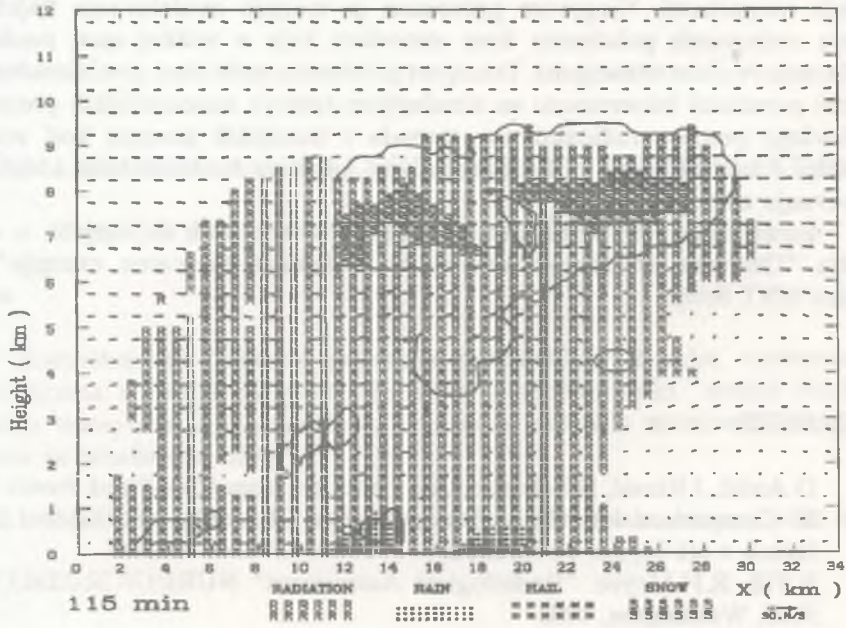
Slika 5. Analizirani slučaj 2. - razvoj oblaka posle 80 min



Slika 6. Analizirani slučaj 2. - razvoj oblaka posle 95 min



Slika 7. Analizirani slučaj 2. - razvoj oblaka posle 105 min



Slika 8. Analizirani slučaj 2. - razvoj oblaka posle 115 min

4. ZAKLJUČCI

Proračunate doze se kreću oko 3-4% od prirodnog nivoa zračenja, što znači da su znatno ispod dozvoljenih nivoa, mada se radi o nivou koji je 3-4 puta viši od najvišeg nivoa za nuklearnu elektranu u normalnom pogonu - u njenoj neposrednoj blizini. Tako mali nivo u odnosu na prirodni fon bitan je razlog što se u izveštajima o merenjima nivoa zračenja, [11], konstatuje da "nema povišenog fona" (povišenje bi moglo da se uoči samo ako bi bilo iznad nivoa statističkih fluktuacija prirodnog fona). Proračunate vrednosti su oko dva puta više od sličnih rezultata u literaturi, jer se radi i o višem sadržaju prirodnih radionuklida u našem uglju (u literaturi se obično radi o kamenim ugljevima sa nižim sadržajem uranijuma i torijuma).

Sastav uglja koji sagoreva u termoelektrani promenljiv je, tako da svi zaključci izvedeni na osnovu nekih eksperimentalnih podataka o sadržaju uglja (kao i pojedinačna merenja u okolini elektrane) mogu da se koriste samo za procene u okviru mogućih fluktuacija tog sadržaja. Proračuni prikazani u referenci [9] odnose se na različite ugljeve iz SR Jugoslavije i bivše SR Bosna i Hercegovina, a radjeni su za neke meteorološke slučajeve analizirane u ovom radu. Pokazuje se da u zavisnosti od sastava uglja i meteoroloških parametara može da dodje do velikih razlika u nivou kratkotrajnog radiološkom uticaju na stanovništvo. Sličan zaključak bi mogao da se izvede i za slučaj sumpordioksida, azotnih oksida, čadji i drugih polutanata.

Uobičajeni modeli za analizu transporta radionuklida i drugih efluenata u okolini elektrana pružaju niz mogućnosti za procene uticaja elektrane na stanovništvo, ali model koji je korišćen za analize prikazane u ovom radu pruža niz dodatnih mogućnosti. Njegovom primenom je moguće modelovanje trajektorija kretanja emitovanih polutanata kroz atmosferu koje u velikoj meri predstavlja približavanje realnim situacijama. Transport polutanata može da se prati i izračunavaju potrebni parametri istovremeno sa simulacijom razvoja meteoroloških procesa, uz modelovanje procesa radioaktivnog raspada i hemijskih procesa koji vode ka razgradnji i transformaciji polutanata tokom njihovog kretanja kroz atmosferu i deponovanja na tle.

Istraživanja čiji su rezultati prikazani u ovom radu su radjena u okviru projekta "Osnovna istraživanja vezana za korišćenje nuklearne energije", koji finansira MNT Srbije.

REFERENCE:

[1] D.Antić, J.Riznić, B.Telenta: "Air Pollution from Coal-Fired Power Plants in Comparison with Other Energy Sources", Int. Journal of Global Energy Issues, v.4(1-2), pp. 74-78, 1992.

[2] E.Till, R.H.Meyer: "Radiological Assessment" NUREG/CR-3332,ORNL-5968, Washington, 1983.

[3] B.Telenta, N.Aleksić: "A Thre-Dimensional Simulation of the 17 June 1978 HIPLEX Case with Observed Ice Multiplication" 2nd Int.Cloud Modeling Workshop, Touluse, France, 1988.

[4] D.Antić, B.Telenta: "Transport of Radionuclides in the Atmosphere During Complex Meteorological Conditions". Trans. Amer. Nucl. Soc., v. 64(1), pp. 451-453, 1991.
[5] B.J.B.Klemp, R.B.Wilhelmson: "The Simulation of Three-Dimensional Convective Strom Dynamics" J.Atmos.Sci., v. 35, pp. 1070-1096, 1978.
[6] Y.-L.Lin, R.D.Farley, H.D.Orville: "Bulk Parameterization of the Snow Field in a Cloud Model" J. Climate Appl. Meteor, v. 22, pp. 1065-1092, 1983.
[7] N.Aleksić, B.Telenta, S.Petković: "Model Simulation of Seeding Repeat Rates for Direct Injection Seeding by Rockets". The Journal of Weather Modification, v. 24(1), pp. 84-88, 1992.
[8] G.P. Georgopoulos, H.J.Seinfeld: "Mathematical Modeling of the Tuurbulent Reacting Plumes - 1. General Theory and Model Formulation". Atmospheric Environment, v. 20, pp. 1791-1807, 1986.
[9] D.Antić, M.Šokčić-Kostić: "Dose Assessment for Various Coals in the Coal-Fired Power Plant", Trans.Amer.Nucl.Soc., v. 69(1), pp.56, 1993.
[10] Lj.Knežević i dr.: "Radioaktivnost uglja i pepela za rudnik Tamnava i radiološki uticaj TE Kolubara B", Institut "Vinča", 1990.
[11] Izveštaji Instituta "D.Karajović" o kontroli radioaktivnosti za razmatrane elektrane, Beograd, 1992., 1993.
[12] ICRP Publication No 23 (1975)
[13] Safety Series No 90 (1989) IAEA, Vienna

RAČUNANJE INHALACIONE DOZE U OKOLINI TERMOELEKTRANA

Dragoljub Antić, Boško Telenta, Marina Šokčić-Kostić, Sava

Rezime

Razmatran je transport prirodnih radionuklida iz uglja, emitovanih iz termoelektrana u blizini Beograda. Korišćen je meteorološki model oblaka za simulaciju transporta kroz atmosferu, uz analizu različitih meteoroloških uslova. Računate su inhalacione doze.

Ključne reči: prironi radionuklidi, ugalj, atmosfera, model oblaka, meteorološki uslovi,

NATURAL RADIONUCLIDES FROM THE COALIN ATMOSPHERIC ENVIRONMENT OF THE COAL FIRED POWER PLANTS

Dragoljub Antić, Boško Telenta, Marina Šokčić-Kostić, Sava Milovanović

Abstract:

The inhalation radiation exposure of the public in the vicinity of the selected coal fired power plants near from Belgrade (30-50 km) has been studied, using a set of data for natural radionuclides from the analysed power plants. A generalised model for analysis of radiological impact of an energy source, that includes the two-dimensional version of the cloud model, has been used for simulation of the transport of radionuclides released to the atmosphere. The inhalation dose rates for an adult are assessed and analysed during fast changeable meteorological conditions. A set of realistic meteorological conditions (wind, radiosonde sounding temperature, pressure, and humidity data) has been used for the numerical simulations.

Key words: Natural radionuclides, coal, atmosphere, cloud model, meteorological conditions

10.

OBRADA I ODLAGANJE RADIOAKTIVNOG OTPADNOG MATERIJALA KOJI EMANIRA ^{222}Rn

Aleksandar Perić, Ilija Plećaš i Radojko Pavlović,
Institut za nuklearne nauke "Vinča", Beograd, Jugoslavija

1. UVOD

Potomci uranovog radioaktivnog raspada predstavljaju zdravstveno radiološki rizik, koji je u većini slučajeva mali u odnosu na druge, rutinske rizike koji se javljaju u radu sa radoiaktivnim materijalima. Kontrola radioaktivnog otpadnog (RAO) materijala koji nastaje u tehnološkom procesu obrade uranove rude ili kao posledica primene radionuklida koji su članovi uranovog niza u medicini i industriji, u formi zatvorenih izvora zračenja, mora se razmatrati za vreme koje je mnogo puta veće od prosečenog ljudskog veka. U ovom radu će bite razmotrene preporuke, načini i postupci koji se predvidjaju u radu sa radioaktivnim materijalima koji emaniraju ^{222}Rn.

2. ^{222}Rn KOJI NASTAJE U TEHNOLOŠKOM POSTUPKU OBRADE URANOVE RUDE

Inertni radioaktivni gas ^{222}Rn, kontinualno izlazi u atmosferu iz zemlje, zbog prisustva ^{226}Ra u lancu radioaktivnog raspada prirodnog urana, kao i svugde gde je

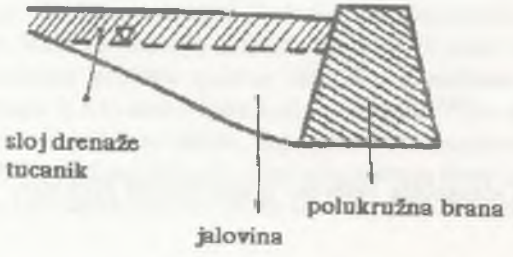
^{226}Ra prisutan. Prilikom tehnološkog procesa obrade uranove rude nastaju velike količine jalovine, s obzirom da se od svake tone uranove rude ekstrahuje ne više od 2 kg urana, uz korišćenje najsavremenijih tehnoloških postupaka pri ekstrakciji. Jalovišta sama po sebi predstavljaju radioaktivni otpadni materijal, pri čemu je doprinos ^{226}Ra ukupnoj aktivnosti jalovišta oko 75%. Prosečno jalovište rude urana kapaciteta od 100.000 t sadrži oko 100g ^{226}Ra, već u zavisnosti od primenjenog tehnološkog procesa ekstrakcije urana i moguće reekstrakcije ^{226}Ra iz jalovine. Shodno prisustvu ^{226}Ra u jalovini, koncentracija ^{222}Rn u blizini jalovišta uranove rude može biti nekoliko puta viša od prosečne vrednosti na datoj lokaciji u neposrednoj oklini jalovišta. Rizik po pojedinca, koji živi u blizini jalovišta uranove rude, s obzirom na činjenicu da je posledica ^{222}Rn i njegovih potomaka, može sa zadovoljavajućom pouzdanošću proračunavati. Na primer, životni rizik od raka pluća pojedinca koji živi na udaljenju od 1 km, na dominantnom pravcu vetra, od jalovišta koje ispušta 500 TBq ^{222}Rn godišnje je 0,2% [1]. Procenjena vrednost je ista kao i životni rizik od raka pluća pojedinca koji proističe od izlaganja prosečnim nivoima ^{222}Rn u kućama Evrope i Amerike. Na udaljenju od nekoliko kilometara od područja jalovišta uranove rude, bilo kakvo povećanje nivoa koncentracije ^{222}Rn, kao posledice njegovog ispuštanja sa jalovišta se ne može uočiti, odnosno, koncentracije ^{222}Rn su u granicama prirodnih varijacija za širu lokaciju. Prema važećim propisima i preporukama američke nuklearne komisije za radiološku zaštitu (NCRP), tolerantni nivo koncentracije ^{222}Rn u vazduhu je 110 Bq/m^3 [2]. S obzirom da ^{222}Rn u nizu radioaktivnog raspada urana nastaje radioaktivnim raspadom ^{226}Ra, na mestima predvidjenim za jalovišta uranove rude, potrebno je pratiti migraciju radionuklida koji prethode ^{222}Rn u nizu uranovog raspada. Od radionuklida posebnu pažnju pri detekciji eventualne migracije sa lokaliteta jalovišta treba obratiti na ^{226}Ra, čije su tplerantne koncentracije u vazduhu 0,11 Bq/m^3 i vodi 1100 Bq/m^3. Praćenje disperzije rastvorljivog materijala sa jalovišta je stoga neophodna mera, kojom se obuhvata i detekcija radionuklida koji mogu biti izluženi sa odlagališta jalovine: ^{230}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb i ^{210}Po. Akvatički putevi ekspozicije ovim radionuklidima su izraženiji u regionima sa vlažnim klimatom i to u neposrednoj blizini lokacije jalovišta. Ukoliko je jalovište uranove rude nekondicionirano i nepokriveno, pored akvatičkih, mora se pratiti i disperzija radionuklida iz sastava jalovišta koja se vrši vetrom i dejstvom erozije tla u okolini jalovišta. Ipak treba napomenuti da ukupni doprinos svih jalovišta uranove rude u svetu, koja su deo nuklearnog gorivnog ciklusa, sa procenjenom ukupnom emanacijom radona do 2000 godine od 92 PBq, predstavlja mali deo ukupno procenjene emanacije radona od 59 EBq samo sa površine zemlje [3].

S obzirom na činjenicu da je i na području Srbije vršena eksploatacija uranove rude na području rudnika Kalna, kao i da postoji jalovište uranove rude na području rudnika, potrebno je izvršiti radove u cilju njegovog saniranja, vodeći računa o rezultatima prethodno izvršenih geoloških istražnih radova i klimatskim karakteristikama područja. Prema klimatu za region na kome se pravi odlagalište jalovine uranove rude, predvidjena su tri opšta tipa odlagališta jalovine:

a. za tropsko monsunski klimat - kružna brana sa pokrivkom od tucanika;
b. za umereni, kontinentalni klimat - dolinasta brana sa vegetacijom preko odlagališta;

c. za polusušni klimat - neogračeno odlagalište sa nepropusnom branom na jednom kraju odlagališta.

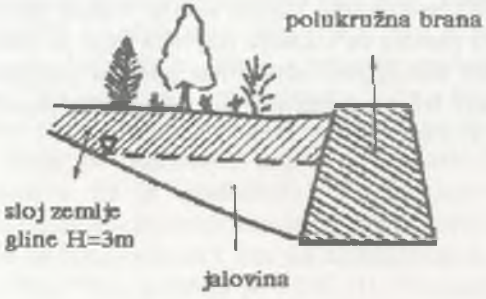
Pokrivanje odlagališta se vrši u cilju sprečavanja emanacije volatilnog radionuklida ^{222}Rn iz sastava jalovišta. U tom smislu se prekrivanje jalovišta vrši niskopropustljivim sintetičkim folijama, slojem zemlje bogate glinom ili jednostavno vlaženjem jalovišta. Fluks radona sa lokacije jalovišta koje je niskog sadržaja vode, može opasti za faktor 100, ukoliko se odlagalište jalovine potpuno prekrije slojem vode [6]. Grafički prikazi tri predvidjena tipa odlagališta jalovine uranove rude prikazani su na Slikama 1, 2 i 3.



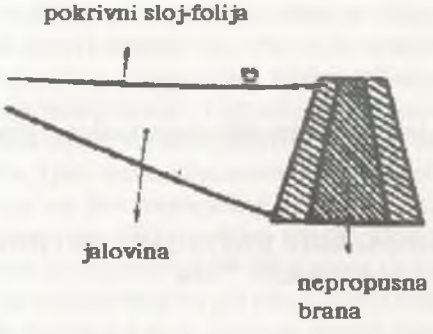
Slika 1.Odgajalište jalovine u tropsko-monsunskom klimatu

3. TRETMAN, OBRADA I ODLAGANJE KAPSULIRANIH RADIOAKTIVNIH MATERIJALA KOJI EMANIRAJU ^{222}Rn

Radijum je korišćen u zatvorenim izvorima zračenja u industriji i medicini, ali je sada zamenjen drugim radionuklidima, kao što su: ^{137}Cs, ^{192}Ir, ^{3}H ili ^{241}Am. Ipak, veliki broj zatvorenih izvora ^{226}Ra, koji se više ne koriste: medicinske igle i tube, kao i kontaminirani materijal, zaostao u celom svetu, treba da se odloži na siguran način. ^{226}Ra je obično kapsuliran u leguri platine i iridijuma, Pt-Ir, a u nekim slučajevima i u zlatu, Au. Medjunarodna agencija za atomsku energiju MAAE (IAEA), procenila je da u svetu treba odložiti 1250 ^{226}Ra igala i 400 tuba godišnje. U svrhe medicinske terapije, aktivnost ^{226}Ra retko prelazi 3.7 GBq (100 mg), pri čemu je prosečna aktivnost po izvoru oko 0.21 GBq (5,6 mg), za igle, i oko 0.26 GBq (7 mg), za tube. Preko 90%



Slika 2. Odgajalište jalovine u umerenom klimatu



Slika 3. Odgajalište jalovine u sušnom klimatu

^{226}Ra igala i 78% ^{226}Ra tuba imaju aktivnost u granicama od oko 37-370 MBq (1-10 mg ^{226}Ra), dok je aktivnost izvora koji se koriste u brahiterapiji u opsegu od 30-300 MBq. Neutronski izvori sa ^{226}Ra, koji se koriste u industriji, najčešće za merenje vlažnosti medija, imaju vrlo različite aktivnosti, pri čemu oko 30% ^{226}Ra-Be neutronskih izvora ima preko 500 mg ^{226}Ra, a pojedini izvori i preko 1000 mg ^{226}Ra [3]. Ukupno procenjena količina ^{226}Ra u svetu je, prema IAEA, nekoliko kilograma, aktivnosti reda veličine nekoliko stotina TBq. U našoj zemlji su u medicinkoj terapiji radijumski izvori korišćne u periodu od 1937 do 1977. Korišćene su ^{226}Ra igle i tube, pri čemu je aktivnost igala bila oko 0,74 GBq (20 mg ^{226}Ra), a tuba oko 1,5 GBq (40 mg ^{226}Ra). Procenjena ukupna aktivnost ^{226}Ra zatvorenih izvora zračenja, privremeno stokiranih na Institutu za onkologiju u Beogradu je oko 148 GBq ^{226}Ra (4 g ^{226}Ra) [4]. Odredjeni broj ovih kapsuliranih izvora je oštećen, te emanira ^{222}Rn u atmosferu sefa u kojem su izvori smešteni. Radioaktivnim raspadom ^{226}Ra se dobija 5 atoma helijuma (He), koji se formiraju od α-čestica emitovanih u lancu raspada. Pri tome, 1 g ^{226}Ra emanira 0,061 ml ^{222}Rn. Ako je kapsula u koju ^{226}Ra smešten neoštećenja, razvijanje gasa povećava unutrašnji pritisak u zatvorenom izvoru sa 1 g ^{226}Ra za oko 20 kPa godišnje. U slučaju da je u formulaciji radijumskog izvora prisutna kristalna voda, α-čestice koje se emituju u raspadu, razlažu vodu na H_2 i O_2, što dovodi do dodatnog povećanja pritiska unutar zatvorenog sistema. Zbog svega navedenog, problem tretmana RAO materijala koji emaniraju ^{222}Rn se razmatra u okviru grupe specijalnih formi RAO materijala, koja mora biti zaptivena u nosaču otpornom na dejstvo spoljašnjih mehaničkih sila. Sam nosač mora imati bar jednu fizičku dimenziju veću od 5 mm, i po zatvaranju se može otvoriti ponovo jedino fizičkom destrukcijom [5].

U radu sa dugoživećim radionuklidima koji se koriste kao kapsulirani izvori jonizujućeg zračenja, kao što je ^{226}Ra, preporučljivo je da se izvor kondicionira na način da je sam izvor osiguran od dejstva spoljašnjih mehaničkih i hemijskih sila i agenasa. Ovo se postiče smeštanjem radionuklida u oblogu koja mu pruža dugoročnu zaštitu tokom vremena skladištenja, pre konačnog trajnog odlaganja u neki od predvidjenih sistema trajnih odlagališta RAO materijala.

3.1. Kondicioniranje ^{226}Ra igala i tuba u betonu

Imobilizacija ovih zatvorenih izvora jonizujućeg zračenja se vrši njihovim ulaganjem ili umešavanjem u neaktivne matriksne materijale, obično beton. Imobilisana RAO forma očvršćava u betonskim ili metalnim kontejnerima, koji imaju betonsku ispunu. Kondicioniranje se vrši uz korišćenje aktivnog uglja (praha ili granula), koji se dodaje zbog visokog afiniteta za adsoprciju ^{222}Rn, što je neophodno obezbediti za slučaj da tokom skladištenja ili odležavanja izvora dodje do curenja ^{222}Rn iz ^{226}Ra igala ili tuba. Proces imobilizacije se deli u dva stepena. Prvi stepen je pakovanje ^{226}Ra izvora, koji su, u malim olovnim oblogama - kontejnerima, smešteni u veći, limeni, kontejner. Sadržaj limenke sa izvorima se do vrha ispunjava aktivnim ugljem, uz pešanenje-zaptivanje poklopca limenke. Kao zaptivno sredstvo se koristi legura metala niske tačke topljenja. Pri transportu ovako kondicioniranog izvora zračenja, kontaktna doza zračenja na prenosnom kontejneru ne sme preći 5 mSv/h. Drugi stepen u procesu imobilizacije je ulaganje metalnog kontejnera, limenke, sa

radioaktivnim sadržajem u 200 l betonski ili metalni kontejner, koji je obložen betonom. Kontejner za smeštaj izvora je napunjen do polovine zapremine betonom. U njega se ulažu armature po obodu. Po početku očvršćavanja betona, u centar kontejnera se ulaže prethodno dobro zapečaćena limenka, tako da uroni u svež beton do oko 5 cm svoje visine. Po očvršćavanju betona u toku nekoliko sati, u tako pripremljen kontejner se dodaje svež beton, sve dok ne ispuni kontejner do oko 2,5-3 cm od vrha kontejnera. Beton se po nasipanju dobro pritisne i vibrira, u cilju izbacivanja viška vazduha, prisutnog u betonskoj smeši. Na taj način se smanjuje propustljivost betona, pa time i prolaz ^{222}Rn, u slučaju njegovog eventualnog curenja iz zapečaćenog limenog kontejnera. Limenka treba da je takvih gabarita da zauzima mali deo ukupne zapremine 200 litarskog kontejnera. U zavisnosti od nivoa aktivnosti ^{226}Ra izvora koji se kondicionira, nekoliko limenih kontejnera se smešta u ojačani kontejner. Broj limenki i u njima odloženih izvora jonizujućeg zračenja, odredjuje nivo doze zračenja, koja se meri na spoljašnjoj površini kontejnera, i koja ne sme premašiti 2 mSv/h kontaktno ili 0,1 mSv/h mereno na udaljenju od 1 m od površine kontejnera [1,5]. Na slici 4. dat je prikaz preseka kontejnera, betonskog ili metalnog, u kome je smešten imobilizirani RAO materijal koji može emanirati ^{222}Rn.

Privremeno skladištenje ovako kondicioniranih izvora zračenja zahteva objekat koji ima unutrašnji pritisak niti od atmosferkog, uz korišćenje ventilacionog sistema, koji smanjuje verovatnoću pojave korozije na metalnim delovima kontejnera i razvoj anaerobnih bakterija [6].

Slika 4. Presek kontejnera sa RAO materijalom koji emanira ^{222}Rn

[8]. D. M. Levins and D. R. Davy, Management of Wastes from Uranium Mining and Milling, IAEA - CEN - 43/147.

OBRADA I ODLAGANJE RADIOAKTIVNOG OTPADNOG MATERIJALA KOJI EMANIRA ^{222}Rn

Aleksandar Perić, Ilija Plećaš i Radojko Pavlović,

Rezime

U ovom radu dat je prikaz nastajanja, kondicioniranja, skladištenja i trajnog odlaganja radioaktivnog otpadnog materijala, nastalog u nuklearnom gorivnom ciklusu, koji emanira ^{222}Rn. Kao mesta sa povišenom koncentracjom ^{222}Rn, naznačena su jalovišta uranove rude. Rad razmatra tretman i odlaganje zatvorenih izvora jonizujućeg zračenja, koji nalaze primenu u medicini i procesnoj industriji, a koji mogu da emaniraju ^{222}Rn. Povišena koncentracija ^{222}Rn u atmosferi oko zatvorenih izvora jonizujućeg zračenja, posledica je njihovog oštećenja ili nepotpune zaptivenosti, obično medicinskih igala ili tuba, koje sadrže izotop ^{226}Ra, ili uredjaja za merenje vlažnosti vazduha sa neutroskim, ^{226}Ra-Be izvorom. U radu je dat pregled stanja dela ovakvog radioaktivnog otpadnog materijala na teritoriji SR Jugoslavije, kao i predlozi rešenja za njegovo sigurno rukovanje, skladištenje i trajno odlaganje.

Ključne reči:radon, jalovište, radijum, emanacija, tretman, odlaganje.

CONDITIONING AND DISPOSAL OF THE RADIOACTIVE WASTE MATERIALS EMANATING ^{222}Rn

Aleksandar Perić, Ilija Plećaš and Radojko Pavlović,

Abstract

In this paper, conditioning, storing and final disposal of the radioactive waste materials, generated in the nuclear fuel cycle, emanating ^{222}Rn are presented. As the spots with the increased ^{222}Rn concentration, tailings of the uranium ore are marked. In this paper, treatment of the encapsulated radioactive sources, applicated in medicine and industry, and that might emanate ^{222}Rn is presented, as well. Increased radon concentration in the atmosphere in the vicinity of the radiation sources has its cause in the inadequated sealing of the encapsulated sources, that contain ^{226}Ra. In this paper, overview of the present status of the radioactive waste materials, that might and are emanating ^{222}Rn, presence, conditioning and storing are presented, as well as proposal for the safety procedure of such radwaste materials treatment, storing and final disposal.

Key words:radon, tailings, radium, emanation, treatment, disposal

Glava III

Radon

11.

RADON - GLAVNI RADIOAKTIVNI KONTAMINANT ČOVEKOVE OKOLINE

Dragoslav Nikezić
Prirodno matematički fakultet, Kragujevac

1. UVOD

U poslednjih desetak godina pažnju javnosti povremeno privuku napisi u dnevnim/nedeljnim novinama, koji se odnose na *radon*. Kako na našem jeziku ne postoje šire publikovani tekstovi koji bi ovu problematiku osvetlili sa stručnog stanovišta, autor ovog rada je preuzeo obavezu da u okviru raspoloživog prostora da pregled postojećih znanja u vezi sa radonom.

Postoji veći broj monografija, preglednih, naučnih i stručnih radova, zbornika sa različith konferencija, kongresa i simpozijuma, a koji se u manjoj ili većoj meri odnose na radon, pisanih uglavnom na engleskom jeziku, [1], [2], [3].

Da odmah damo neke osnovne informacije o radonu. To je radioaktivni plemeniti gas. Kao takav skoro da ne gradi nikakva jedinjenja u prirodi. On je član prirodnih radioaktivnih nizova; u svakom od tri prirodna radioaktivna niza nalazi se po jedan izotop radona. Prvi elementi prirodnih radioaktivnih nizova su prisutni u zemljinoj kori, a u većoj ili manjoj meri i u svim ostalim materijalima. Tako se i atomi ostalih članova radioaktivnih nizova nalaze u velikom broju materijala. Atom radijuma, koji je neposredni prethodnik radona (u sva tri radioaktivna niza) je vezan u kristalnoj rešetki materijala u kome se nalazi. Pri raspadu jezgra atoma radijuma

stvori se atom radona, koji, budući da je hemijski inertan gas, napušta mesto formiranja. Atom radona može napustiti komad materijala u kome je formiran i preći u atmosferu. Tako postoji stalan "dotok" radona, iz tla i ostalih materijala prisutnih na zemlji, u vazduh. Radon je stalno (i oduvek je bio) prisutan u atmosferi, kako u prostorijama, tako i na otvorenom prostoru.

Zato je interesovanje za radon poraslo u poslednjih desetak godina i zašto je poznavanje radona toliko značajno?

Postoje najmanje tri razloga koji su doprineli povećanju interesovanja za radon i zbog kojih je "tema" *radon* postala aktuelna.

Prvi i najznačajniji, razlog je negativni zdravstveni efekat koji radon ima na čoveka. Početkom protekle decenije izvršene su procene doza koje stanovništvo primi od raznih izvora zračenja [3], [4]. Doprinos raznih izvora zračenja ukupnoj ozračenosti stanovništva je šematski predstavljen na slici 1. [5].

Slika 1. Karta doza; Godišnja ekvivalentna doza=2.4 mSv

Kao što se može videti sa slike 1, oko 40 % ukupnog ozračenja populacije potiče od udisanja radona i njegovih kratkoživećih potomaka. Ovako veliki udeo radona u ukupnoj dozi znači mogućnost izazivanja plućnog kancera, što je izazvalo znatan interes sredinom protekle decenije, a koji i sada traje. Ovoj tvrdnji, da radon može izazvati rak pluća, može se suprostaviti kontra-argumentom u sledećem smislu: radon je oduvek bio prisutan u atmosferi, ljudi su ga oduvek unosili u pluća zajedno sa njegovim potomcima, i to "nije" izazivalo nikakve štetne efekte. Zbog čega bi zdravstveni aspekt problema sada postao značajniji? Odgovori na ovo pitanje su u vezi sa izvesnim ljudskim aktivnostima. To je, pre svega, smanjenje prirodne ventilacije zatvorenih prostorija u cilju uštede toplotne energije; ovo dovodi do povećanja koncentracije radona i njegovih potomaka u kućama. Pored toga, koriste se prefabrikovani otpadni materijali iz industrije i rudarstva u gradjevinske svrhe. Ovi materijali često sadrže povećane koncentracije prirodnih radioaktivnih elemenata, pa i radijuma, koji je "roditelj" radona, što opet dovodi do povećanja koncentracije

radona u prostorijama. Uz ovo, postoji tendencija da čovek sve veći deo svog vremena provodi u zatvorenim prostorijama, što sve zajedno dovodi do povećanog ozračivanja čoveka radonom i njegovim kratkoživećim potomcima.

Pored štetnih zdravstvenih efekata koje radon i njegovi kratkoživeći potomci izazivaju, poznavanje ponašanja radona je značajno iz još nekih razloga.

Prvi razlog je prospekcija uranijuma; ^{222}Rn je član prirodnog radioaktivnog niza ^{238}U i nalaženje povećanog fluksa radona iz tla u nekim oblastima upućuje na mogućnost postojanja uranijumove rude u tim oblastima [6] .

Drugi razlog je povećanje koncentracije radona u atmosferi i u podzemnim vodama pre zemljotresa i vulkanskih erupcija. Ovaj efekat je primećen više puta i opaža se na vrlo velikim udaljenostima od epicentra, čak i preko 1000 km. Pregled dostignuća u ovoj oblasti je dat u radu [7] .

Iz iznetog je jasno da je potrebno što bolje poznavati ponašanje radona u vazduhu, u vodi i u tlu. Sve ovo je rezultiralo u objavljivanju velikog broja radova koji se odnose na radon. Radovi objavljeni na ovu temu, a to znači i celokupna oblast, mogu se podeliti u više grupa, prema problemima koje tretiraju. To su:

- tehnike i metode za merenje radona i njegovih kratkoživećih potomaka;
- nivoi koncentracije radona i potomaka u zatvorenim i na otvorenim prostorima;
- izvori radona u zatvorenim prostorijama;
- ponašanje radonovih potomaka u atmosferi;
- dozimetrija radona, modeli ljudskih pluća, procene doza i rizika;
- epidemiološke studije nad delom stanovništva (rudari u uranijumskim i drugim rudnicima) koje je izloženo visokim koncentracijama radona sa ciljem odredjivanja faktora rizika;
- epidemiološke studije velikih populacija u cilju otkrivanja uzročno posledične veze izmedju izlaganja radonu i pojave plućnog kancera;
- studije radona u vezi sa seizmologijom, vulkanologijom, naukom o tlu i zemlji i dr.

2. OSOBINE RADONA VAŽNE U RADIOEKOLOGIJI I DEFINICIJE NEKIH RELEVANTNIH FIZIČKIH VELIČINA

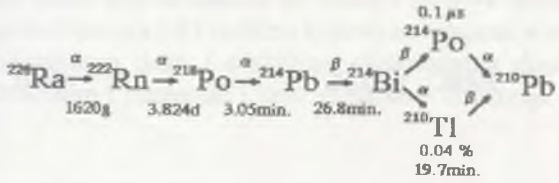
Radon nastaje raspadom radijumovih jezgara. Sva tri prirodna radioaktivna niza sadrže po jedan radonov izotop. Pri tome u nizu ^{232}Th je ^{220}Rn, a u nizu ^{238}U je ^{222}Rn; dok se ^{219}Rn nalazi u nizu ^{235}U. U Tabeli 1. date su bitne karakteristike izotopa radona i njihovih kratkoživećih potomaka. Navedene osobine radonovih izotopa i njihovih kratkoživećih potomaka, (vreme poluraspada, vrsta zračenja, energija emitovanih čestica i dr) odredjuju njihovo sveukupno ponašanje u prirodi, ali i bitno utiču na merne tehnike i razne modele koji se u vezi sa njima prave.

Za ^{220}Rn, koristi se specijalni naziv Toron, a za ^{219}Rn Aktinon. Poredjenjem vremena poluraspada, vidi se da je ^{222}Rn najznačajniji od radonovih izotopa (mada ne uvek i svuda); ovo tvrdjenje je pojačano činjenicom da je izotopska obilnost ^{238}U, u čijem je nizu ^{222}Rn, veša od izotopskih obilnosti ^{232}Th i ^{235}U. Toron (^{220}Rn) se ponekada uzima u obzir; postoje situacije kada on ili njegovi potomci dostižu veće

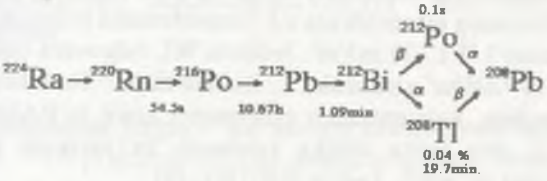
Tabela 1. Karakteristike izotopa radona i njihovih kratkoživećih potomaka

Izotop	Simbol	Vreme poluraspada s	Konstanta rad. raspada 1/s	Tip Zračenja MeV	Energija E(gama) MeV
Radon	Rn-222	3.3×10^{5}	2.097×10^{-6}	α 5.486	---
RaA	Po-218	183	3.788×10^{-3}	α 5.998	---
RaB	Pb-214	1608	4.310×10^{-4}	β, γ 0.7	0.350; 0.294
RaC	Bi-214	1182	5.864×10^{-4}	β, γ 1.65 (77 %) 3.17	0.609; 1.764 1.120
RaC′	Po-214	0.00016	4.23×10^{-3}	α 7.68	---
RaD	Pb-210	6.94×10^{8}	9.98×10^{-10}	β 0.027	---
RaE	Bi-210	433036	1.608×10^{-6}	β 1.17	---
RaF	Po-210	1.19×10^{7}	5.8×10^{-6}	α 5.298	---
Toron	Rn-220	54.5	1.27×10^{-2}	α 6.282	---
ThA	Po-216	0.158	4.387	α 6.774	---
ThB	Pb-212	3.83×10^{4}	1.816×10^{-5}	β 0.37	0.3; 0.238
ThC	Bi-212	3816	1.766×10^{-4}	α 6.05 (66.3 %) β 2.25	0.81 1.81
ThC′	Po-212	1.0×10^{-7}	10^{6}	α 8.476	---
ThC″	Tl-208	186	3.73×10^{-3}	β 1.792	2.62; 0.58
Aktinon	Rn-219	3.92	0.1767	α 6.41	0.622; 0.203 0.397
AcA	Po-215	1.78×10^{-3}	561	α 7.365	---
AcB	Pb-211	2166	3.2×10^{-4}	β 1.23	0.829 0.425
AcC	Bi-211	127.8	7.825×10^{-3}	α 6.56	---
AcC″	Tl-207	287.4	2.412×10^{-3}	β 1.5	---

koncentracije; oni često komlpikuju merenja ^{222}Rn. Treći radonov izotop ^{219}Rn se ne uzima u obzir zbog kratkog vremena poluraspada od 3,92 s. Raspade ^{222}Rn je data u šemi (2.1), a šema raspada ^{222}Rn u (2.2):



(2.1)



(2.2)

Zbog male verovatnoće raspada preko ^{210}Tl (RaC´´), ova grana se pri proučavanju radona može zanemariti.^{210}Pb(RaD) ima veliko vreme poluraspada i zbog procesa taloženja ne može se nagomilati u atmosferi u značajnijim količinama. Zbog vrlo kratkog vremena poluraspada ^{214}Po je uvek u ravnoteži sa svojim prethodnikom ^{214}Bi. Tako je čemu (2.1) moguće uprostiti na sledeći način:

$$^{222}Rn \rightarrow {}^{218}Po \rightarrow {}^{214}Pb \rightarrow {}^{214}Bi(^{214}Po) \rightarrow {}^{210}Pb \qquad (2.3)$$

Sličnim razmišljanjem je moguće šemu raspada ^{220}Rn predstaviti na prostiji način:

$$^{220}Rn \rightarrow {}^{216}Po \rightarrow {}^{212}Pb \rightarrow {}^{212}Bi(^{212}Po) \rightarrow {}^{208}Pb \qquad (2.4)$$

U šemama raspada (2.3) i (2.4) uokvireni su kratkoživeći radonovi potomci.

Kao što je već rečeno ^{226}Ra je član radioaktivnog niza ^{238}U, koji je u tragovima prisutan skoro u svim materijalima. Raspadom ^{226}Ra formira se ^{222}Rn. Pošto su atomi ^{222}Rn hemijski inertni oni su slobodni i mogu da difunduju kroz materijal u kome su stvoreni. Jedan deo atoma ^{222}Rn uspe da predje u atmosferu, dok se drugi deo raspadne pre prelaska u atmosferu. Tako, u atmosferi uvek postoji odredjena koncentracija radona i njegovih kratkoživećih potomaka. Može se reći da je atmosfera prirodno "kontaminirana" radonom.

Za karakterizaciju kontaminacije atmosfere radonom i njegovim kratkoživećim potomcima koristi se nekoliko fizičkih veličina. To su:

- Zapreminska aktivnost radona, koja predstavlja aktivnost radona u jedinici zapremine i izražava se u Bq/m^3 .
- Koncentracija potencijalne alfa energije (potential alpha energy concentration, PAEC). PAEC predstavlja sumu potencijalnih alfa energija

svih atoma u metru kubnom vazduha bilo koje smeše kratkoživećih radonovih ili toronovih potomaka, [8]. PAEC se može izraziti na sledeći način:

$$PAEC=\sum_1^3 C_i E_i \qquad (2.5)$$

gde je C_i broj atoma i-tog radonovog kratkoživećeg potomaka po m^3 vazduha, a E_i je odgovarajuća energija emitovanog alfa zračenja u J. Vansistemska jedinica za PAEC je Working Level ili WL i iznosi 1 WL=21 mJ/m^3. Jednom WL odgovara oslobodjena energija alfa zračenja od $1.3\ 10^{14}$ eV/m^3 u vazduhu. U slučaju da je ^{222}Rn u ravnoteži sa svojim kratkoživećim potomcima, koncentracija radona pri kojoj je PAEC=1 WL, iznosi 3,7 kBq/m^3. Kako je ovo dosta visoka vrednost, za merenja radona u zatvorenim prostorijama koristi se mWL koji je 0,001WL [9].

PAEC za ^{222}Rn i ^{220}Rn se mogu izračunati iz sledećih formula:

$$PAEC(^{222}Rn)=(134C(^{218}Po)+659C(^{214}Pb)+485C(^{214}Bi))/1{,}3\ 10^5 \qquad (2.6)$$

$$PAEC(^{220}Rn)=(1590C(^{212}Pb)+1510C(^{212}Bi))/1{,}3\ 10^5 \qquad (2.7)$$

gde su C koncentracije odgovarajućih radonovih kratkoživećih potomaka.

-Izlaganje radonovim potomcima predstavlja proizvod PAEC-a i vremena provedenog u atmosferi sa tim PAEC-om. Sistemska jedinica za ovu veličinu je Js/m^3. Vansistemska, tradicionalna, jedinica je Working Level Month ili skraćeno WLM. Osoba koja provede $6{,}228\ 10^5$ s (173 sati) u atmosferi u kojoj je PAEC=1WL, izložena je radonovim potomcima od 1WLM. Veza WLM i sistemske jedinice je:

$$1\ WLM = 12{,}96\ J\ s/m^3 \qquad (2.8)$$

-Ravnotežna ekvivalentna koncentracija radona (equilibrium equivalent concentration) EEC, neravnotežne smeše kratkoživećih radonovih potomaka u vazduhu je ona koncentracija radona u radioaktivnoj ravnoteži sa njegovim potomcima koji imaju isti PAEC kao i neravnotežna smeša na koju se EEC odnosi. Skraćena oznaka za EEC je C_e.

-Faktor ravnoteže (ili neravnoteže u pojedinim referencama) F se definiše kao količnik ravnotežne ekvivalentne koncentracije radona i stvarne koncentracije radona C_0 u vazduhu, to jest:

$$F=C_e/C_o \qquad (2.9)$$

Pored ovih, napred nabrojanih veličina, koje su karakteritične za deo radijacione fizike koji se odnosi na radon i njegove kratkoživeće potomke, u ovom radu se upotrebljavaju još i veličine koje su uobičajene u zaštiti od zračenja. To su, pre svega ekvivalentna doza i efektivna ekvivalentna doza. Ove veličine smatramo opšteprihvaćenim i poznatim i zato se njihove definicije ovde ne daju.

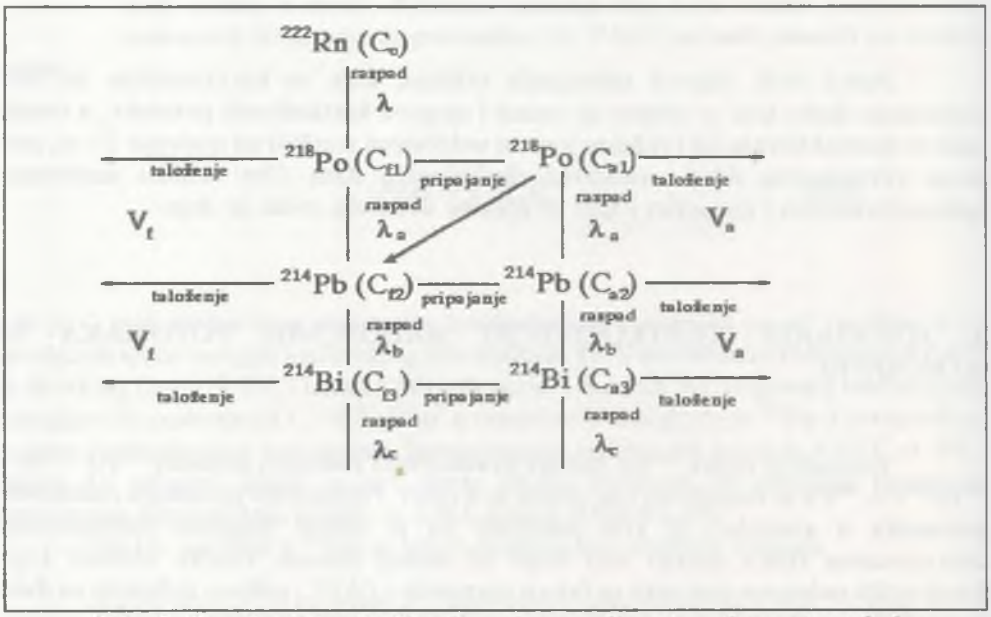
3. PONAŠANJE KRATKOŽIVEĆIH RADONOVIH POTOMAKA U ATMOSFERI

Raspadom jezgra ^{222}Rn nastaju kratkoživeći radonovi potomci ^{218}Po, ^{214}Pb i $^{214}Bi/^{214}Po$. ^{210}Pb je dugoživeći i ne uzima se u obzir. Poznavanje ponašanja radonovih potomaka u atmosferi je vrlo značajno, jer je njihov doprinos radijacionom zdravstvenom riziku znatno veći nego od samog radona. Fizičke veličine koje karakterišu radonove potomke su faktor ravnoteže i PAEC; njihove definicije su date u prethodnom tekstu.

U atmosferi je veliki deo radonovih i toronovih potomaka pripojen prirodnim atmosferskim aerosolima. Manji deo je slobodan-nepripojen. Termin "slobodni-odnosno nepripojeni" uveden je u radu [10] da bi se opisala visoko difuzivna komponenta radioaktivnih aerosola. Sada se pod tim terminom podrazumevaju klasteri od svega nekoliko molekula koji lebde u vazduhu. Stalnim medjusobnim sudaranjima dolazi do njihovog spajanja i povećavanja. Jasno je da granica izmadju slobodne i pripojene frakcije nije strogo definisana.

Šema procesa koji se odigravaju u atmosferi, a u kojima učestvuju radonovi potomci je prikazana na slici 2: oznake na slici su: C_{fi} - koncentracije i-tog potomka u slobodnoj formi,C_{ai} - koncentracije i-tog potomka u pripojenoj formi, l su konstante radioaktivnog raspada, V_f i V_a su brzine taloženja slobodnih i pripojenih potomaka, respektivno, p_1 je verovatnoća odvajanja od aerosola pri alfa raspadu ^{218}Po. Predstavljeni procesi se mogu opisati u matematičkoj formi skupom linearnih diferencijalnih jednačina, koje povezuju koncentracije svih pripojenih i slobodnih potomaka sa parametrima kao što su brzina pripajanja i verovatnoća odvajanja, brzina taloženja, jačina ventilacije zatvorene prostorije i ukupna jačina fluksa svih izvora radona. Rezultati dobijeni primenom ovih modela se mogu uporedjivati sa rezultatima odgovarajućih eksperimenata. "Fitovanjem"rezultata dobijaju se tačnije vrednosti za veličine koje nisu dovoljno dobro poznate; to su pre svega brzine pripajanja i taloženja radonovih potomaka. Vrednosti koje se mogu naći u literaturi za ove veličine se razlikuju i za red veličine, [11].

Novoformirani radonovi potomci su u većini slučajeva pozitivno naelektrisani, od 80 do 85 % njih, i hemijski su aktivni. Oni interaguju sa negativnim jonima prisutnim u atmosferi i u procesu izmene naelektrisanja dolazi do njihovog pripajanja prirodnim aerosolima. Tako nastaju prirodno radioaktivni aerosoli. Nepripojeni radonovi potomci difunduju kroz vazduh, do pripajanja, raspada ili taloženja.



Slika 2. Ponašanje kratkoživećih radononovih potomaka u atmosferi

Verovatnoća taloženja potomaka u ljudskim plućima je znatno veća za slobodne nego za pripojene.Tako slobodna frakcija, iako je u normalnim uslovima ima znatno manje nego pripojene, doprinosi znatnom delu doze. Deo radonovih potomaka koji je u prirodi u slobodnoj formi zavisi od više različitih parametara i kreće se od 0,3 do do 33 %, [12].

Bitna karakteristika radioaktivnih aerosola, koja odredjuje njihovo ponašanje ali i njihov značaj za dozimetriju, je njihova raspodela po veličinama. Uveden je pojam

$$C_j = \sum_{d=0}^{\infty} \Delta C(d) \qquad (3.1)$$

"relativna raspodela radioaktivnih aerosola", koja daje deo radioaktivnih aerosola sa odredjenim dijametrom i označava se sa $\Delta C_{j(d)}/C_j$. Pri tome je

$$\frac{\Delta C_j(d)}{C_j} = \frac{\Delta Z(d)\beta(d)}{Z} \qquad (3.2)$$

Može se dokazati da je:

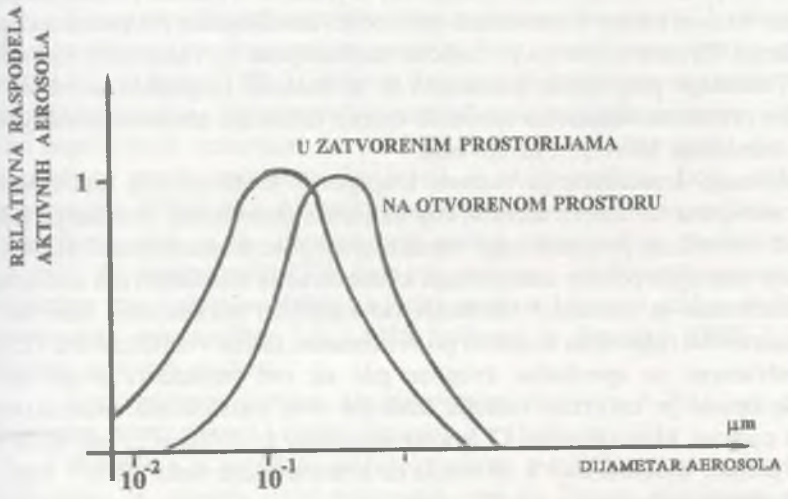
U gornjim jednačinama oznake imaju sledeće značenje:

- d dijametar aerosola u (m)

- $\Delta C_j(d)$ koncentracija radioaktivnih aerosola dijametra d koji nose j-ti radonov kratkoživeći potomak, u m^{-3},
- Z je ukupna koncentracija aerosola, u m^{-3},
- C_j je ukupna koncentracija radioaktivnih aerosola koji nose j-ti radonov kratkoživeći radonov potomak (j=1,2,3), u m^{-3}
- b(d) je koeficijenat pripajanja i funkcija je veličine aerosola.

Vrednosti koje se mogu sresti u literaturi za srednji koeficijenat pripajanja su od $0,5x10^{-12}$ do $2,3x10^{-12}$ m^3/s (odnosno $1,8x10^{-3}$ do $8,3x10^{-3}$ cm^3/h), [13].

Relativna raspodela radioaktivnih aerosola po dijametrima je data na slici 3.



Slika 3. Relativna raspodela radioaktivnih aerosola po dijametrima

Dijametri aerosola su u intervalu od(0,1-10)mm. Medijana vrednosti dijametra aerosola "AMAD" je 0,17mm za atmosferu zatvorenih prostorija. Raspodela dijametara aerosola na otvorenom prostoru je jako pomerena prema većim vrednostima kako se to vidi na slici 3; srednja vrednost je 0,4mm.

Pored pripajanja potomaka aerosolima postoji i obrnuti proces, odvajanje. Pri raspadu jezgro ^{218}Po emituje alfa česticu. Novonastalo jezgro doživljava uzmak. Ovaj uzmak je dovoljan da dodje do odvajanja atoma od aerosola. Verovatnoća da dodje do odvajanja se zove "faktor uzmaka" i označava se sa p_1. Izračunata vrednost za p_1 je 0,81 i odlično se slaže sa izmerenom vrednošću 0,83 za ^{218}Pb, [14]. Ovako visoka verovatnoća odvajanja je razumljiva ako se zna da energija uzmaknutog atoma ^{214}Pb iznosi 117 keV, a energija veze atoma u aerosolu je reda eV. Do odvajanja ne dolazi jedino u slučaju kada je uzmaknuti atom usmeren prema samom aerosolu za koji je pripojen i kada je dijametar aerosola veći od dometa atoma u njemu.

Pripojeni i nepripojeni radonovi potomci se talože na površinama u unutrašnjosti zatvorenih prostorija (zidovi, nameštaj). Proces taloženja, koji se naziva i plate out je značajan mehanizam smanjivanja koncentracije radonovih potomaka u atmosferi zatvorenih prostorija. Jačina taloženja se može dati izrazom C_jSv, gde je S površina na raspolaganju za taloženje u m^2, a C_j je koncentracija j-tog radonovog potomka u Bq/m^3, v je brzina taloženja u m/s. Jačina taloženja se dobija u Bq/s i predstavlja nataloženu aktivnost u jedinici vremena u zatvorenoj prostoriji. Deo nataloženih potomaka se može dobiti ako se količina nataloženih potomaka podeli ukupnim brojem postojećih potomaka u atmosferi C_jV, gde je V zapremina zatvorene prostorije. Dobija se da je

$$C_j\ vS/C_jV=vS/V. \qquad (3.3)$$

Odavde se vidi da je deo nataloženih potomaka u jedinici vremena proporcionalan odnosu površine S i zapremine V zatvorene prostorije. Koeficijenat proporcionalnosti je brzina taloženja. Brzina taloženja je različita za pripojene v_a, i slobodne radonove potomke v_f. Taloženje pripojenih potomaka je u funkciji raspodele aerosola po dijametrima. Sa porastom dijametra aerosola brzina taloženja aerosola prvo opada, a zatim raste; minimum krive je oko 0,5 mm.

Odredjivanje koncentracije radona i njegovih kratkoživećih potomaka u zatvorenim prostorijama na osnovu modela koji uključuju samo jačinu ventilacije, jačinu izvora i raspad, dovodi do precenjivanja vrednosti njegove koncentracije. Razlog je taloženje, kojeje značajan proces smanjivanja koncentracija radioaktivnih aerosola u atmosferi. Proučavana je zavisnost taloženja od različitih parametara, kao što su koncentracija aerosola, raspodela aerosola po veličinama, jačina ventilacije itd, [15]. U tu svrhu konstruisane su specijalne komore gde su ovi parametri mogli da se kontrolišu. Zapamena je inverzna relacija izmedju *dela* nataloženih radioaktivnih aerosola "y" i njihove koncentracije C, prema jednačini y=A-BlogC., gde su A i B konstante. Na primer nataloži se 4% aerosola za koncentracije veše od 10^{11} $1/m^3$, a čak 86 % za koncentracije manje od 10^9 $1/m^3$.

Rezultati merenja u ovim komorama su uporedjeni sa predvidjanjima modela ponašanja radonovih potomaka u atmosferi zatvorenih prostorija, [16]. Rezultati merenja i predvidjanja ovih modela su dosta nesaglasni. Jakobijev model predvidja brzine taloženja od 0,01 m/s i 0,0001 m/s za slobodne i pripojene potomke respektivno. Difuzioni koeficijenat slobodnih potomaka u vazduhu je na osnovu ove brzine taloženja procenjen naD=0,054x10m^2/s. Eksperimenti u pomenutim komorama su pokazali da su brzine taloženja znatno manje. Optimalne vrednosti su v_f=0,0005 m/s i v_a=0,75x10^{-5} m/s. Izračunat je koeficijent difuzije na osnovu ove manje vrednosti za v_f, i iznosi D =2,5x10^{-5} m^2/s.

4. KONCENTRACIJE RADONA U ZATVORENIM PROSTORIJAMA I NA OTVORENOM PROSTORU

Postoji veliki broj radova i referata objavljen na ovu temu. U mnogim zemljama doneti su programi merenja radona u zatvorenim prostorijama na

nacionalnom nivou, ili bar u kritičnim oblastima. U našoj zemlji postoji duga tradicija merenja radona. Posebno treba istaći merenja radona u banjama i u uranijumskim i neuranijumskim rudnicima [17], [18], [19], [20], [21], [22] i dr. Ova merenja imaju značaja za zaštitu osoblja zaposlenog u rudnicima i banjama, kao i za uspostavljanje veze izmedju ozračenja pri niskim dozama i krajnjih efekata.

U referenci [3] data je procena srednje vrednosti koncentracije radona u zatvorenim prostorijama i to za ceo svet; ova procena je 37 Bq/m^3. U mnogim zemljama postoji obilje podataka o koncentraciji radona i njegovih potomaka, kako na otvorenom prostoru, tako i u zatvorenim prostorijama. Istražuju se različiti aspekti ovog problema, kao što su: varijacije koncentracije radona u zatvorenim i otvorenim prostorima i to dnevne, sezonske i godišnje; zavisnost koncentracije radona u zatvorenim prostorijama od jačine ventilacije; metodi(postupci) uklanjanja radonovih potomaka iz atmosfere zatvorenih prostorija; procene primljenih doza i konačnih efekata i td.

Koncentracije radona u zatvorenim prostorijama u SAD, gde je inače najviše rada i sredstava utrošeno na merenje radona, usrednjeno preko cele godine su izmedju 7 i 150 Bq/m^3 [24]. U jednom delu zgrada otkrivene su znatno veće vrednosti koncentracije radona. Ovo je slučaj sa zgradama gradjenim od nepovoljnih materijala ili na nepovoljnih terenima. Pri tome se u SAD naročito ističe ovaj drugi razlog (nepovoljan teren, odnosno tla ispod i oko gradjina koja sadrže povećane koncentracije ^{226}Ra) kao bitan za povećanje koncentracije radona u zatvorenim prostorijama, dok je za Evropu prvi razlog (nepovoljni gradjevinski materijali) značajniji. U istom radu [23] date su procene izloženosti populacije radonu i potomcima kao i ukupan efekat za jednu godinu. Ukupan efekat izloženosti radonu i potomcima stanovništva SAD (225 miliona) je izmedju 10000 i 20000 smrtnih slučajeva za jednu godinu.

Koncentracije radona na otvorenom prostoru u SAD su manje nego u zatvorenim prostorijama i iznose izmedju 3 i 15 Bq/m^3, [24].

U Finskoj je izvršeno merenje radona u zgradama na teritoriji cele zemlje. Obuhvaćeno je ukupno 2154 prizemnih zgrada. Prema dobijenim podacima cela zemlja je kartografisana, [25]. Pronadjene su tri zone sa povećanim sadržajem radona u zatvorenim prostorijama sa medijanama od 216, 111 i 77 Bq/m^3. Za celu zemlju medijana je 64 Bq/m^3. Zapažena je korelacija izmedju jačine ekspozicione doze na otvorenom prostoru i radona u zgradama gde je osnovni materijal šljunak (pesak). Ovo je objašnjeno time što je koncentracija radionuklida u pesku vrlo niska, a jačina ekspozicione doze na otvorenom prostoru zavisi od sadržaja radionuklida u tlu: u tim prostorijama radon potiče uglavnom iz tla. Zona 1 sa najvećom koncentracijom radona u zgradama se poklapa, mada ne u potpunosti, sa oblašću koja leči na granitnoj podlozi. Merenja koncentracije radona su obavljana pasivnim, integracionim detektorom radona, nepokrivenim trag detektorima LR-115. Nisu date procene doza i krajnjih efekata.

U Švedskoj je takodje preduzeto merenje radona na nivou cele zemlje [26]. Kontrolisano je više od 32000 zgrada. Od ovog broja izabrano je 750 gradjevina i detaljno proučavano. U svakoj od njih meren je radon bar u dve prostorije i jačina ventilacije; uzeti su podaci o korišćenim materijalima pri izgradnji, tip temelja, geološki sastav podloge itd. Odredjena je aritmetička sredina koncentracije radona od

122 Bq/m^3 u prizemnim i 85 Bq/m^3 u višespratnim zgradama. Oko 10% zgrada ima više od 400 Bq/m^3, a 2 % više od 800 Bq/m^3. Faktor ravnoteže je procenjen na 0,5. Za merenje je korišćen pasivni integracioni monitor radona zasnovan na termoluminiscentnom dozimetru CaSO4:Dy.

U Italiji je izvršeno merenje radona u 5000 zgrada, koje predstavljaju reprezentativni uzorak stambenog fonda. Srednja vrednost za celu zemlju je procenjena na 27 Bq/m^3, ali sa vrlo velikim geografskim, klimatskim i drugim varijacijama. Merenja su obavljana pasivnim integracionim monitorima radona zasnovanim na polikarbonatnom trag detektoru CR 39, [27].

U Nemačkoj je procenjena medijana koncentracija radona u u zatvorenim prostorijama i iznosi 42 Bq/m^3 na osnovu merenja u 4512 stambenih jedinica. Faktor ravnoteže je odredjen izmedju 0,3 i 0,4. Uzeto je da se u zatvorenim prostorijama provodi izmedju 70 i 80% vremena i na osnovu toga je procenjen doprinos efektivnoj ekvivalentnoj dozi od 0,7 do 1 mSv za godinu. Za merenje je korišćen polikarbonatni trag detektor CR 39 u difuzionoj komori, [28].

U Francuskoj je izvršeno merenje radona u oko 8300 lokacija, od toga je 4372 u zatvorenim prostorijama, a 3918 na otvorenom prostoru. Korišćen je monitor radona zasnovan na trag detektoru LR-115. Koncentracije radona su u intervalu od 1,5 do 622 Bq/m^3, sa srednjom vrednošću od 37 Bq/m^3, [29].

U Austriji, u Salcburgu, odredjena je raspodela zatvorenih prostorija po koncentracijama radona. Maksimum raspodele je izmedju 12 i 16 Bq/m^3, a srednja vrednost je 22 Bq/m^3 . Izmerene su i znatno veće vrednosti, i do 190 Bq/m^3. Tlo regiona Salcburga sadrži niske koncentracije radionuklida. Merenja su obavljana u više od 1000 zgrada sa preko 5000 mernih tačaka, i to kombinovanjem integracionih i trenutnih mernih tehnika, [30].

U Velikoj Britaniji je izvršeno merenje radona u zatvorenim prostorijama u celoj zemlji. Pronadjeno je više oblasti sa povećanim sadržajem radona u zatvorenim prostorijama. Na sreću ovi regioni su retko naseljeni, tako da je njihov doprinos srednjoj dozi za pojedince u GB mali. Data je srednja vrednost PAEC-a i iznosi 61nJ/m^3 (3mWL). Procenjen je doprinos efektivnoj ekvivalentnoj dozi od radona i njegovih kratkoživećih potomaka, i usrednjeno uzev on iznosi 0,8 mSv za godinu, što je 33 % ukupnog ozračenja populacije koje je procenjeno na 2,4 mSv. Za merenje je korišćen trag detektor CR 39 [31].

U Turskoj, u Istambulu izmeren je ^{222}Rn u 400 kuća. Nadjena je srednja vrednost od 50 Bq/m^3. Opseg izmerenih vrednosti je od 10 do 260 Bq/m^3, [32].

U Iowi (US) izvršen je pregled 582 seoskih kuća i proučavani su različiti faktori koji utiču na podizanje nivoa radona u kućama [33].

Na Kipru je izvršena "pilot" studija radona u zatvorenim prostorijama, na uzorku od 89 kuća. Vrednosti su niže nego u drugim zemljama i kreću se od 7 do 78 Bq/m^3, sa srednjom vrednošću od sam 9 Bq/m^3, [34].

I u drugim zemljama se odvijala intenzivna aktivnost u ovoj oblasti i to na: kartografisanju terena u odnosu na radon; jačine ekspozionih doza u zatvorenim prostorijama i na otvorenom prostoru; pronalaženju nepovoljnih oblasti sa povećanom koncentracijom radona u zgradama; karakterisanje gradjevinskih materijala i td.

Karakterističan je trend korišćenja mernih dugovremenskih, pasivnih, integracionih tehnika pre nego trenutnih, naročito trag detektora. Najčešće korišćeni trag detektori su CR39 (polikarbonat) i LR115 (koji je zasnovan na nitrocelulozi).

5. FAKTORI KOJI UTIČU NA KONCENTRACIJU RADONA U ZATVORENIM PROSTORIJAMA

Može se postaviti pitanje; odakle potiče i kako radon dospeva u zatvorene prostorije? Ima više "objekata" koji se mogu smatrati "izvorima radona". To su: gradjevinski materijali; tlo ispod i oko zgrada; voda i gas koji se koriste u domaćinstvima ako su kontaminirani radonom. Već je pomenuto da se u Evropskoj literaturi kao primarni izvor radona u zgradama navode gradjevinski materijali, dok je u SAD to tlo ispod gradjevina [24]. Potrebno je izvršiti karakterizaciju svakog izvora radona. Pod tim se podrazumeva odredjivanje načina i brzine nastajanja radona u njima, kao i puteva dospevanja radona od mesta formiranja do zatvorene prostorije. Pri tome je gradjevinske materijale mnogo lakše okarakterizirati nego tlo ispod zgrada.

5.1. Gradjevinski materijali kao izvor radona

Gradjevinski materijali su jedan od dva značajnija izvora radona u zatvorenim prostorijama. Pored toga, oni su i izvor dodatnog gama zračenja. Količina stvorenog radona u nekom materijalu je odredjena koncentracijom "roditelja" radona, a to je ^{226}Ra. Brzina stvaranja radona, G, u nekoj tački, koja se definiše kao broj nastalih atoma ^{222}Rn u jedinici vremena, jednaka je brzini raspada ^{226}Ra. Medjutim, samo deo formiranih radonovih atoma će izaći iz komada materijala u kome je stvoren. Ostali će se raspasti pre nego što predju u atmosferu. Zbog toga se definiše veličina koja se zove efektivna brzina stvaranja radona"Ge"[35]po sledećoj jednačini

$$Ge = rG \tag{5.1}$$

gde je r emanacioni količnik, i predstavlja deo radonovih atoma koji napuste komad materijala u kome su formirani.

Oslobadjanje atoma radona iz materijala u kome su stvoreni odigrava se preko više mehanizama. Ako se jezgro roditelja radona, ^{226}Ra nadje na površini, formirani atom ^{222}Rn će brzo po formiranju preći u vazduh. Medjutim, u slučaju da se atom radona formirao u unutrašnjosti komada nekog materijala, potrebno je da se on nadje u šupljini (pori), koje postoje u materijalu, odakle može preći u atmosferu. Emisijom alfa čestice od strane jezgra ^{226}Ra formira se radonov atom, koji doživljava uzmak. Dužina puta koji uzmaknuti atom radona predje do zaustavljanja iznosi oko 0,1 mm (zavisno od materijala u kome se vrši usporavanje). Da bi radonov atom postao slobodan, potrebno je da se zadrži u šupljini u materijalu. Zaustavljanje radonovih atoma u šupljini je zavisno od fluida koji je ispunjava. U šupljinama je najčeće vazduh ili voda. Pri tome voda mnogo efikasnije zaustavlja uzmaknute radonove atome nego vazduh, jer je zaustavna moć za vodu veća. Voda u šupljini

povećava verovatnoću zaustavljanja radonovog atoma u šupljini. Moguć je slučaj kada atom radona preseče šupljinu i ponovo udje u materijal, posle čega je verovatno izgubljen za difuziju u atmosferu.

Sledeći put dospevanja radonovih atoma u šupljine i pore je difuzijom kroz kristalnu rešetku. Ovaj proces je dosta spor i manje je značajan. Samo radonovi atomi formirani vrlo blizu površine šupljine mogu difuzijom dospeti u nju.

Atomi radona koji su dospeli u šupljinu difunduju kroz nju i mogu otići u atmosferu. Proračun emanacionog količnika mora uzeti u obzir takve veličine kao što su veličina granula, raspodela ^{226}Ra u granulama, mikroskopska struktura materijala, deo prostora koji zauzimaju šupljine (odnosno poroznost), količina vode u šupljinama (vlažnost) itd. Pomenuti parametri koji utiču na emanacioni količnik *nisu* lako merljive veličine. To je razlog za uvodjenje sledećih merljivih fizičkih veličina: jačina emanacije i jačina ekshalacije (emanating rate i exhalating rate).

Jačina emanacije je aktivnost radona (u Bq) koja se dobije iz nekog materijala, podeljena sa masom tog materijala u jedinici vremena. Jedinica za jačinu emanacije je Bq/(kgs).

Jačina ekshalacije je aktivnost radona koja se dobije od nekog materijala podeljena sa površinom tog materijala u jedinici vremena. Jedinica je Bq/(m^2s).

Pored ovih veličina, bitna radijaciona karakteristika gradjevinskih materijala je koncentracija ^{226}Ra. Sve ove veličine su merene u više zemalja i na većem broju uzorka za jednu istu vrstu gradjevinskih materijala. U referenci Š35Ć dat je pregled sadržaja ^{226}Ra u gradjevinskim materijalima u Evropi i u SAD.

Srednji sadržaj ^{226}Ra u betonskim uzorcima u Evropi je izmedju 33 i 74 Bq/kg. Za cement se dobijaju slične vrednosti, ali je za ciglu oko 50 % više. Za betone u SAD navedene su vrednosti od 9 do 44 Bq/kg, što je dosta niže nego u Evropi. Pojedini prirodni materijali imaju znatno veće koncentracije ^{226}Ra: granit sadrži oko 200 Bq/kg. Svakako najznačajniji i najpoznatiji primer u ovoj grupi je Švedski gas beton zasnovan na ilovači (alum shale), sa srednjom koncentracijom ^{226}Ra od 1300 Bq/kg (korišćen od 1930 do 1975 godine).

Gradjevinski materijali koji sadrže otpatke iz industrije i rudarstva mogu imati znatno povećan sadržaj ^{226}Ra. Na primer u Nemačkoj je korišćen crveni pepeo, nastao preradom boksita, za pravljenje gradjevinskih blokova i cigli. Srednja koncentracija ^{226}Ra u njemu je 280 Bq/kg. Ima primera upotrebe pepela i šljake za pravljenje gradjevinskih materijala, a koji nastaju u termoelektranama. Koncentracije ^{226}Ra u njima dostiže vrednosti do nekoliko stotina Bq/kg.

Koncentracije ^{224}Ra koji je roditelj ^{220}Rn su slične navedenim vrednostima za ^{226}Ra. Izuzetak je gore pomenuta Švedska glina, koja ima visok sadržaj ^{226}Ra, ali ne i ^{224}Ra, [35].

Proučavana je zavisnost jačine emanacije iz betona od temperature i sadržaja vlage [36]. Promene temperature od 23 do 47 C ne izazivaju bitne promene jačine emanacije. Na višim temperaturama, beton se širi i atomi radona lakše difunduju kroz otvore što znatno povećava jačinu emanacije. Povećanje sadržaja vlage od 2 % - 4 % na 6 % - 8 % povećava jačinu emanacije za 20 %. Za ekstremno suv uzorak betona, sušen 10 sati na 100 C, jačina emanacije opadne na 10 % vrednosti u odnosu na onu pre sušenja.

Koncentracija ^{226}Ra u korišćenim gradjevinskim materijalima nije direktna indikacija o nivou radona u datoj gradjevini. Emanacioni količnik, koji se menja u širokom opsegu vrednosti od 1 do 30 %, jako utiče na doprinos unutarkućnom radonu od gradjevinskih materijala.

Jačina ekshalacije je takodje merena i ustanovljenaje zavisnost od debljine zidova i gustine gradjevinskih materijala. Na primer, iz betonskog zida debljine 0,2 m izmerena je jačina ekshalacije (ovaj termin se ponekada zamenjuje terminom fluks radona) od 0,0046 Bq/(m^2s), a za zid od 0,3 m, 0,0008 Bq/(m^2s). Fluks radona iz zidova je funkcija, ne samo osobina zidova, (gustina, hemijska kompozicija, vlažnost, debljina i dr), već i meteoroloških parametara, kao što su atmosferski pritisak, temperatura, brzina vetra i dr.

5.2 .Tlo kao izvor radona i jačina ekshalacije

Fluks radona iz tla je glavna veličina za karakterizaciju tla kao izvora radona. Pod fluksom radona se podrazumeva aktivnost radona koja u jedinici vremena prodje kroz jediničnu površinu tla. Usrednjena vrednost za fluks radona iz tla za suvo zemljište iznosi 0,016 Bq/(m^2s). Raspon vrednosti za fluks radona iz tla je vrlo širok i u osegu je od 0,0002 do 0,053 Bq/(m^2s). Najniše vrednosti su izmerene na vulkanskoj lavi. Više vrednosti fluksa radona iz tla se mere na onim zemljištima gde je sadržaj ^{226}Ra u tlu veći, mada ovo nije obavezno slučaj. Koncentracija radijuma u tlu, nije jedina veličina koja odredjuje veličinu fluksa radona. Osobine samog tla, su takodje značajne; naročiti uticaj na fluks radona ima "propustljivost" tla.

Veći broj radova, je posvećen proučavanju puteva prodiranja radona iz tla u zatvorene prostorije. Problem difuzije radona kroz tlo je značajan i iz drugih razloga: povećan fluks radona iz tla na nekim mestima može ukazivati na ležišta uranove rude; merenjem fluksa radona iz tla moguće je pratiti tok podzemnih voda (ako one nose rastvoreni ^{226}Ra).

5.3 Voda i gas kao izvori radona u zatvorenim prostorijama

Doprinos koncentraciji radona u zatvorenim prostorijama od vode i gasa je od sekundarnog značaja; njihov doprinos zavisi od koncentracije radona u njima, ali i od načina i obima njihovog korišćenja.

Koncentracija radona u vodi je vrlo različita od mesta do mesta. Najveća je u bunarima u reonima sa granitnom podlogom do 630 Bq/m^3, a najniža u tekućim površinskim vodama do 2Bq/m^3, [35]. Oslobadjanje radona iz vode, a time i stepen kontaminacije atmosfere zatvorenih prostorija iz ovog izvora, zavisi od načina korišćenja vode: veće je u kupatilima i pri kuvanju. Uzima se da se oko 50 % radona prisutnog u vodi oslobodi pri njenom korišćenju. Pri visokoj koncentraciji radona u vodi i pri većoj "uzburkanosti" i potrošnji ovaj izvor radona može postati značajan.

5.4 Prodiranje radona u zatvorene prostorije

Ovo je vrlo značajan problem.Njegovo upoznavanje može dati informacije kako smanjiti prodiranje radona u zgrade i tako sniziti odgovarajući radijacioni rizik. Smanjivanje fluksa radona u zatvorene prostorije povezano je sa odredjenim investicijama; zbog toga je potrebno izvršiti analizu cena-korist za svaki posebni slučaj, [37].

Transport radona iz tla u zatvorene prostorije odigrava se putem nekoliko različitih mehanizama. To su: a) molekularna difuzija, b) tok gasa uslovljen razlikom u pritiscima i c) prenos radona na veća rastojanja (preko 100 m) odigrava se kroz pukotine u tlu ili sa vodom.

U Švedskoj je izvršeno ispitivanje odnosa izmedju sadržaja radona u zgradama lociranim na stenovitoj podlozi pokrivenoj tlom sa povećanim sadržajem uranijuma, i u oblastima sa podlogom od već pomenute gline. Od ovog broja 105 zgrada je odabrano za detaljno ispitivanje. Unutarkućne koncentracije radona su se kretale od 20 Bq/m^3 sve do 20 kBq/m^3. Koncentracije radona u tlu na dubini od 1 m su se kretale od 5 do 700 kBq/kg (gornja granica odgovara tlu bogatom glinom).

Rezultati ovih obimnih istraživanja su doveli do sledećih zaključaka:

- radon prodire u zgrade kroz otvore i šupljine u temelju zbog ničeg vazdušnog pritiska u zgradama nego van njih;
- koncentracija radona u tlu je uvek dovoljna da, ako se ispune drugi uslovi, koncentracija u atmosferi zatvorene prostorije predje 400 Bq/m^3 što je zakonom utvrdjeno kao gornja dozvoljena vrednost u Švedskoj;
- koncentracija radona u tlu je odredjena sadržajem radijuma u tlu, ali i vlažnošću i emanacionim količnikom;
- transport radona kroz tlo je odredjen propustljivošću tla; radon koji iz tla prodre u zatvorenu prostoriju je skoro uvek nastao u sloju neposredno ispod zgrade i samo u izuzetnim okolnostima može doći do transporta radona iz većih dubina;
- "visoko rizična tla" su ona koja imaju visok sadržaj radijuma i veliku propustljivost, [38].

Difuzija radona u tlu je okarakterisana fluksom J, koji je proporcionalan gradijentu koncentracije C,

$$J=-D \text{ grad } C \qquad (5.2)$$

pri čemu je:

- D koeficijenat difuzije u m^2/s;
- J je fluks radona u $Bq/(m^2s)$;
- gradijent koncentracije (gradC) se izražava u jedinicama $Bq/m^3/m$

Koeficijenat difuzije radona je meren za različite materijale, a najviše za beton. Beton je, inače, najčešće ispitivani materijal kada su u pitanju merenja povezana sa radonom. U radu [39] daju se vrednosti za koeficijenat difuzije radona kroz beton od $(3,34 - 6,01)10^{-8}$ m^2/s.Vrednosti date u literaturi su u granicama $(2\text{-}20)10^{-8}$ m^2/s za beton. Poroznost materijala (ranije definisana kao deo zapremine tela koje zauzimaju

šupljine) je parametar koji odredjuje njegove difuzione karakteristike. Koeficijenat difuzije za tlo ima znatno širi opseg referisanih vrednosti, $2x10^{-6}$ do 10^{-8} m^2/s, zavisno od vrste tla i primesa.

Atom radona koji pri formiranju nije dospeo u šupljinu, difunduje kroz kristalnu rešetku; taj proces se zove "molekularna difuzija". Pošto je ovaj proces spor, taj atom radona ima, male manse da prodre u atmosferu.

Tok radona kroz šupljine i pukotine u tlu je značajan mehanizam prodiranja radona u zatvorene prostorije. Za razliku od prethodnog mehanizma koji je uslovljen gradijentom koncentracije,ovaj mehanizam je izazvan gradijentom pritiska. Jednačina koja opisuje ovaj proces je

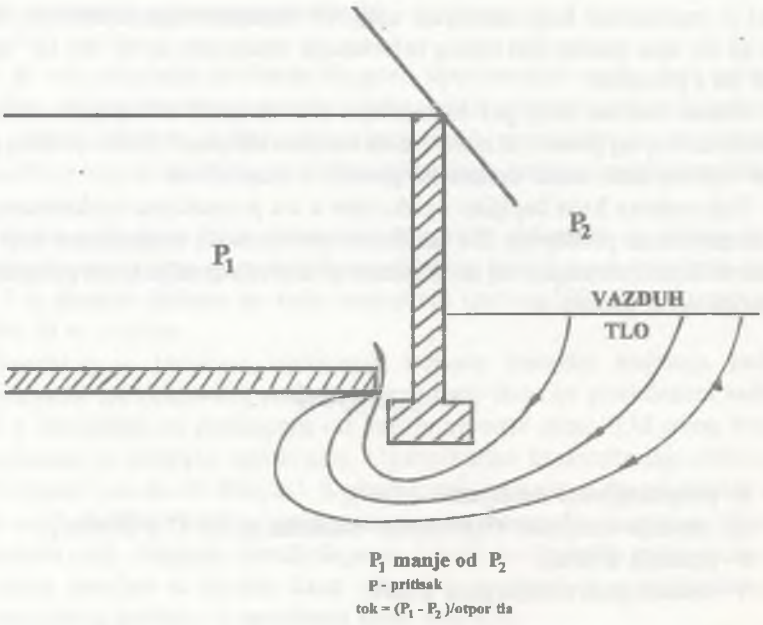
$$V=(k/m)gradP \qquad (5.3)$$

gde je:

k- propustljivost medijuma u (m^2);
m- srednja vrednost viskoznosti vazduha na 10 C u (Ns/m^2),
P- pritisak u (Pa),
V- brzina pokretanja gasa u m/s.

Razlika u pritiscima pokreće vazduh, a sa njim i radon iz okolnog zemljišta do ispod gradjevina, odakle radon prodire u kuće kroz razne otvore ili pukotine. Ovo je šematski predstavljeno na slici 4. Ima vrlo malo podataka koji se odnose na propustljivost raznih gradjevinskih materijala za tok vazduha kroz njih, za razne razlike u pritiscima. Red veličine propustljivosti za beton je 10^{-18} m^2. Propustljivost tla je veća i kreće se u granicama od 10^{-14} do 10^{-12} m^2, zavisno od vrste tla. Prodiranje radona kroz otvore i šupljine u zgrade je značajnije za gradjevine sa podrumom. Radon se nagomilava ispod gradjevina, odakle prolazi u njih. Prodiranje radona iz tla u kuće se proučava ubacivanjem obeleživačkih gasova (na primer sumpor-heksafluorid) ispod kuća. Posle toga meri se koncentracija tog gasa u kući i van nje. Na ovaj način otkrivaju se mesta gde radon prodire u zgrade. Posle toga sledi zatvaranje otkrivenih šupljina usled čega se smanjuje ulaz radona, a time i koncentracija radona u zatvorenim prostorijama.

Brzina kojom radon prodire iz tla u zgrade zavisi od više parametara: razlika u pritiscima izmedju zgrade i tla, otpor (propustljuvost) temelja i tla kretanju vazduha, jačina eksalacije radona iz tla blizu kuće koja je funkcija meteoroloških parametara itd. Relativna važnost pojedinih izvora radona u zatvorenim prostorijama je različita od slučaja do slučaja. Gradjevinski materijali sa povećanim sadržajem ^{226}Ra i visokom jačinom emanacije, mogu dati velike vrednosti fluksa radona iz zidova; ako se ovo kombinuje sa slabom ventilacijom zgrada koncentracije radona su vrlo visoke. Dobra je okolnost što se gradjevinski materijali mogu kontrolisati gama spektroskopskom analizom, pre odluke o upotrebi i odbaciti oni sa povišenim koncentracijama ^{226}Ra.

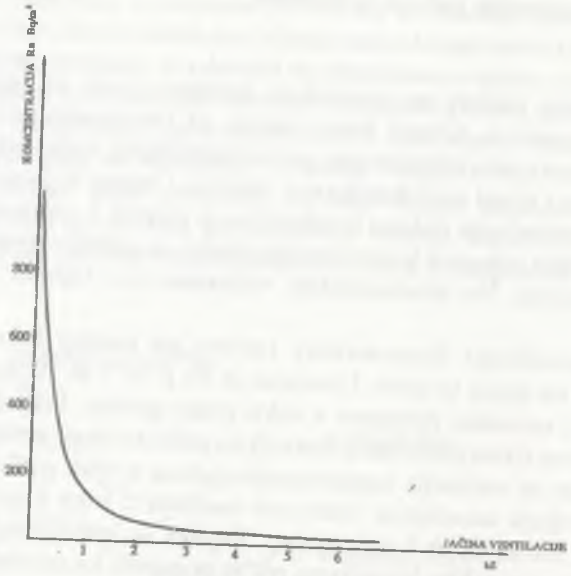


Slika 4. Raspodela toka vazduha u tlu oko zgrade

5.5. Zavisnost koncentracije radona u zatvorenim prostorijama od ventilacije

Koncentracija radona u zatvorenim prostorijama je funkcija više parametara, od kojih su najznačajniji sledeći: jačina ventilacije, ukupna jačina izvora radona, zapremina zatvorene prostorije i površina na raspolaganju za depozit, koncentracija radona van zgrada, meteorološki uslovi i dr. U ovom odeljku obradjivana je zavisnost koncentracije od prva dva faktora, od kojih prvi (ventilacija) utiče na smanjenje, a drugi (jačina izvora) na povećanje koncentracije. Jačina ventilacije se izražava u broju izmena celokupnog vazduha u prostoriji u toku 3,6ks (jednog časa (1/h)). Pri tome se ventilacija sastoji iz infiltracije, prirodne i veštačke ventilacije. Pod infiltracijom se podrazumeva nekontrolisani protok vazduha iz zatvorenih prostorija kroz otvore i šupljine u uslovima kada su prozori i vrata zatvoreni. Prirodna ventilacija je provetravanje prostorija kroz otvorene prozore i vrata, a veštačka je izazvana elektromehaniskim uredjajima za ventilisanje prostorija i sl.

U normalnim uslovima, tj bez veštačke ventilacije, jačina ventilacije je oko 1 izmena vazduha na 3,6ks. Zgrade sa jačinom ventilacije ispod 0,5 u toku 3,6ks se smatraju loše ventilisanim, a iznad 1 u toku 3,6ks dobro ventilisanim. Jačina ventilacije je različita u zimskom i letnjem periodu. Merenje jačine ventilacije se obavlja na sledeći način: u odabranu prostoriju ubaci se neki gas; posle toga meri se opadanje njegove koncentracije i na osnovu krive opadanja odredjuje se jačina ventilacije. Merenja koncentracije radona u zatvorenim prostorijama su često praćena merenjem jačine ventilacije.



Slika5. Zavisnost koncentracije radona u zatvorenim prostorijama od jačine ventilacije

U Velikoj Britaniji je odredjena srednja jačina ventilacije, za celu godinu, za celu zemlju i iznosi 1 izmena vazduha na 3,6ks. U SAD jačina ventilacije se kreće izmedju (0,5 i 1) za 3,6 ks, sa tendencijom opadanja u cilju uštede toplotne energije, [24]. U Švedskoj su pronadjene zgrade sa jačinom ventilacije ispod 0,09 u toku 3,6 ks, koncentracija radona u njima je izmedju 400 i 1600 Bq/m , [40]. U istoj referenci su date i primeri promene koncentracije radona u zatvorenim prostorijama sa promenom ventilacije. To je predstavljeno na slici 5.

Veza koncentracija radona unutar i van zatvorenih prostorija, ventilacije i jačine izvora je data u analitičkoj formi sledećom jednačinom: [40]

$$C = (LC+e)/(l+L) \qquad (5.4)$$

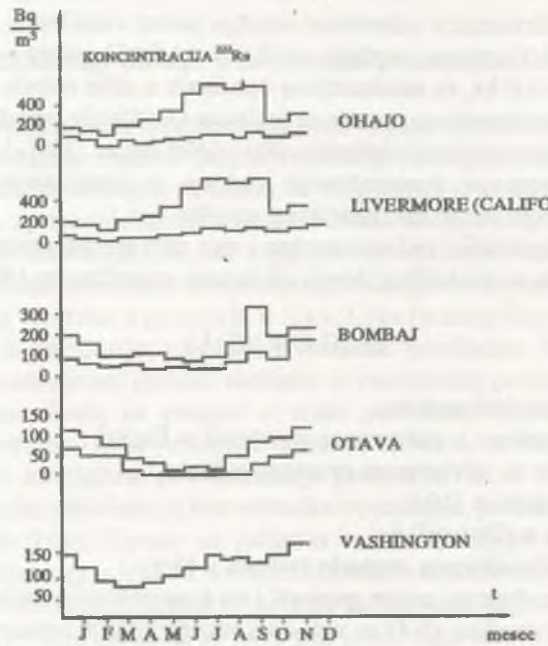
gde oznake imaju sledeći smisao:
-C koncentracija radona u zatvorenoj prostoriji u Bq/m^3 ,
-C je koncentracija na otvorenom prostoru u Bq/m^3 ,
-L je jačina ventilacije u (1/s),
-e je jaččna izvora u (Bq/sm^2) i
-l je konstanta radioaktivnog raspada radona u (1/s).

Slične jednačine se mogu napisati i za koncentracije slobodnih i pripojenih potomaka, [8]. Iz jednačine (5.4) se vidi da koncentracija u zatvorenim prostorijama više zavisi od jačine izvora nego od jačine ventilacije. (Jačina ventilacije figuriše i u imeniocu i u brojiocu izraza u jednačini (5.4), dok se jačina izvora nalazi samo u brojiocn).

5.6. Varijacije koncentracije radona u vazduhu

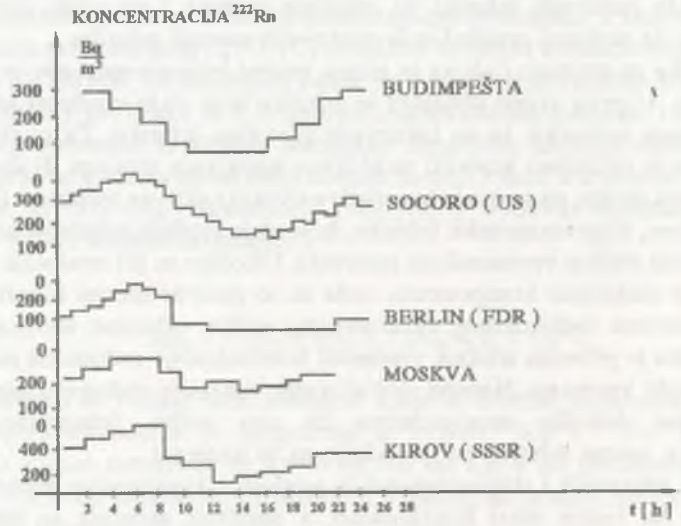
Koncentracija radona na otvorenom prostoru zavisi od jačine izvora i od meteoroloških parametara. Glavni izvor radona na otvorenom prostoru je tlo; svi ostali izvori kao što su voda, prirodni gas, geotermalni fluidi, vulkanski gasovi, vazduh koji struji iz pećina i drugi su sekundarnog značaja i mogu se zanemariti. Glavni i jedini mehanizam uklanjanja radona iz atmosfere je raspad. S obzirom da radon izlazi iz tla i da je nestabilan, njegova koncentracija opada od granične površine tlo-vazduh prema većim visinama. Na stratosferskim visinama nivo radona je ispod granica detekcije.

U cilju poredjenja koncentracija radona na raznim lokacijama mora se specificirati visina na kojoj se meri. Usvojeno je da je to 1 m. Koncentracije radona pokazuju dnevne i sezonske promene u toku jedne godine. Prema [23] maksimum koncentracije radona treba očekivati u jesen ili na početku zime, a minimum u proleće. Na slici 6 prikazane su varijacije koncentracije radona u toku godine, [24]. Rezultati na slici 6 predstavljaju usrednjene vrednosti merenja u toku 8 godina. Merenja su obavljana 3 puta sedmično u 8 sati ujutro. Zapaža se jesenjo-zimski maksimum i proletnji minimum. Na nekim lokacijama pik je pomeren ka sredini leta, a na nekim se on pojavljuje početkom leta. Maksimum koncentracije odgovara maksimalnoj stabilnosti atmosfere i obrnuto.



Slika 6. Sezonske promene koncentracije radona

Dnevne varijacije koncentracije radona su takodje pripisane promenama stabilnosti atmosfere. Rano ujutru, pre izlaska sunca,temperaturska inverzija sprečava vertikalno vazdušno strujanje što dovodi do ekstremno stabilne atmosfere; posledica je jutarnji maksimum koncentracije radona. Posle izlaska sunca, počinje zagrevanje tla, što opet podiže temperaturu prizemnih slojeva atmosfere, nestaje temperaturska inverzija i uspostavljaju se vertikalne vazdušne struje. Usled ovoga koncentracija radona u prizemnom sloju atmosfere opada. Kasno popodne raste stabilnost atmosfere što dovodi do porasta koncentracije radona. Na slici 7 data je promena koncentracije radona na otvorenom prostoru u toku jednog dana.



Slika 7. Dnevne varijacije koncentracije radona na otvorenom prostoru

Pri svakom merenju koncentracije radona mora se voditi računa o njegovim varijacijama. Najbolji pristup je svakako, celodnevno merenje (tj merenje koje bi se odvijalo u toku 24 h). Ovo bi angažovalo dosta ljudskog rada, (ako se merenje ne automatizuje, što se i radi pomoću uredjaja sa pokretnim filter trakama ili na neki drugi način), zbog čega se traži drugačiji adekvatan pristup. Krive promene koncentracije radona na otvorenom prostoru pokazuju da vrednost izmerena u 21 sat reprezentuje srednju vrednost za taj dan. Ako se koriste trenutna merenja radona, (merenja koja daju vrednost koncentracije radona u jednom trenutku vremena) onda je to najbolje činiti u 21 h. Koncentracije radona u zatvorenim prostorijama takodje pokazuju varijacije, koje delimično prate varijacije na otvorenom prostoru, ali su manje izražene.

Promene koncentracije radona u zatvorenim prostorijama mogu biti izazvane i drugim efektima u vezi sa aktivnošću stanovnika, a ne samo meteorološkim promenama. Na primer, otvaranje prozora ili vrata smanjuje koncentraciju radona u

kući vrlo brzo; korišćenje vode ili prirodnog gasa koji u sebi sadrže radon, može povećati njegovu koncentraciju u atmosferi zatvorene prrostorije.

6. METODE MERENJA RADONA I NJEGOVIH KRATKOŽIVEĆIH POTOMAKA

Postoji širok spektar raznih uredjaja, mernih kompleta, instrumenata i dr. za merenje radona i njegovih kratkoživećih potomaka. Može se meriti alfa, beta ili gama zračenje, zavisno od raspoložive instrumentacije i cilja istraživanja. U ovom delu se daje opis nekih osnovnih tehnika za merenje radona i njegovih potomaka bez ambicija da se da potpuni pregled svih postojećih mernih tehnika.

Tehnike za merenje radona se mogu, prema trajanju merenja, podeliti u dve osnovne grupe. U prvu grupu ubrajaju se tehnike koje daju vrednost koncentracije radona u jednom trenutku; to su takozvane trenutne tehnike. Za ovakvo merenje radona obično je potrebno koristiti neki izvor napajanja strujom ili druge aktivne električne komponente, pa se ovakve metode nazivaju i aktivne trenutne. Drugu grupu čine integracione, dugovremenske tehnike, koje daju srednju vrednost koncentracije radona u jednom dužem vremenskom intervalu. Ukoliko se pri ovakvom merenju ne koriste aktivne električne komponente onda su to pasivne merne tehnike.

Za procenu radijacionog zdravstvenog rizika, odnosno štetnog efekta od radona potrebna je procena srednje vrednosti koncentracije radona na nekoj lokaciji u dužem periodu vremena. Napred diskutovane varijacije radona u atmosferi čine trenutne merne tehnike nepogodnima za ovu svrhu. Integraciono pasivne dugovremenske merne tehnike su pogodnije za tu namenu.

Pored trenutnih i dugovremenskih postoje i kontinualne metode merenja radona. Ovde se radon meri kontinualno, a rezultati merenja se beleže nekim uredjajem.

Od trenutnih mernih tehnika najpoznatija je Lucass-va sonda. Zasniva se na merenju alfa zračenja radonovih potomaka. To je staklena bočica čije su unutrašnje strane obložene nekim scintilacionim materijalom, najčešće ZnS(Ag). Pre merenja izvuče se vazduh iz bočice i ona se zatvori gumenim zatvaračem. Pri merenju, upušta se vazduh u bočicu, i to pomoću igle koja se provuče kroz gumeni zatvarač. Vazduh se propušta kroz filter i potomci radona se zaustave na njemu. Sačeka se najmanje 3 sata do uspostavljanja ravnoteže radona i njegovih potomaka. Po isteku ovog vremena, bočica se stavi na fotomultiplikator. Scintilacije u ZnS(Ag) izazvane interakcijom alfa zračenja i ZnS(Ag) detektuje fotomultiplikator, dajući po jedan impuls za svaku scintilaciju. Dalji proces formiranja i obrade stujno/naponskih impulsa ovde neće biti opisivan. Postoji proporcionalnost izmedju broja impulsa u jedinici vremena i koncentracije radona u vazduhu uvučenom u bočicu. Konstanta proporcionalnosti se naziva kalibracioni koeficijenat. On zavisi od geometrije same bočice i predstavlja koncentraciju radona u vazduhu u (Bq/m^3) po jednom impulsu u jedinici vremena (korigovano na fon brojačkog uredjaja). Bočice se kalibrišu upuštanjem vazduha sa poznatom koncentracijom radona.

6.1. Merenje kratkoživećih radonovih potomaka propuštanjem vazduha preko nepokretnog filtra

Ovo je jedna od najpoznatijih tehnika za merenje radonovih potomaka. Zasnovana je na propuštanju vazduha preko raznih filtra i često se naziva "filterska metoda". Ova metoda je ovde detaljnije obradjena [41],[42]. Ima više raznih varijanti ove metode. Pomoću odgovarajućih pumpi propušta se vazduh preko nepokretnog filtra, brzinom w (m^3/s). Veliki deo kratkoživećih radonovih potomaka je pripojen prirodnim aerosolima. Ovi aerosoli se zahvate na filtru, kroz koji se vazduh propušta. Efikasnost filtracije se označava sa ε, i predstavlja deo prirodnih radioaktivnih aerosola koje se zadrže na filtru. Posle prekida propuštanja vazduha kroz filter, može se meriti alfa, beta ili gama zračenje sa filtra; najpogodnije je meriti alfa zračenje. Na osnovu dobivenih rezultata može se odrediti koncentracija potomaka u atmosferi.

U daljem tekstu su sa C_1, C_2 i C_3 označene brojčane koncentracije ^{218}Po (RaA), ^{214}Pb (RaB) i ^{214}Bi(RaC) u atmosferi i date su u $1/m^3$. Aktivnostne koncentracije su $A_i = l_i C_i$, (Bq/m^3) pri čemu je l_i konstanta radioaktivnog raspada i-tog radonovog kratkoživećeg potomka. U slučaju sekularne ravnoteže izmedju radona i njegovih potomaka, koja se u zatvorenom sudu dostiže za oko 3 sata, a u prirodi gotovo nikad, imamo da je $A_1 = A_2 = A_3$, odnosno $l_1C_1 = l_2C_2 = l_3C_3$. Odavde dolazimo do sledećeg odnosa koji važi u slučaju ravnoteže:

$$l_2/l_1 = C_1/C_2 \; ; \; l_1/l_3 = C_3/C_1 \; l_2/l_3 = C_3/C_2 \qquad (6.1)$$

U prirodi su veoma retki slučajevi kada se dostiže pomenuta ravnoteža. U većini slučajeva ravnoteža je pomerena u korist ^{222}Rn i ^{218}Po. U zatvorenim prostorijama stepen ravnoteže se kreće od 0,2 do 0,8, a na otvorenom prostoru je izmedju 0,2 i 0,3. Za zatvorene prostorije u Finskoj, na primer, procenjeno je da je srednji stepen ravnoteže 0,446, [43].

Ova metoda daje koncentracije radonovih potomaka, a ne radona. Da bi se odredila koncentracija radona nužno je pretpostaviti odredjeni stepen ravnoteže izmedju radona i potomaka. Zbog toga su metode merenja radona preko potomaka, propuštanjem vazduha preko filtra, netačne za neki sistematski faktor.

U daljem tekstu je sa N_1, N_2 i N_3 označen broj atoma ^{218}Po, ^{214}Pb i ^{214}Bi na filtru u trenutku t, posle početka propuštanja vazduha preko filtra. Diferencijalne jednačine koje opisuju promenu broja atoma na filtru su:

$$\begin{aligned} dN_1/dt &= C_1 we - l_1 N_1 \\ dN_2/dt &= C_2 we + l_1 N_1 - l_2 N_2 \\ dN_3/dt &= C_3 we + l_2 N_2 - l_3 N_3 \end{aligned} \qquad (6.2)$$

Ako se uzme da u početnom trenutku nije bilo radonovih potomaka na filtru, odnosno $N_1(0)=N_2(0)=N_3(0)=0$, onda se za rečenje gornjeg sistema diferencijalnih jednačina dobija:

$$N_1 = C_1 ewF_{a1}/l_1$$
$$N_2 = (C_1F_{b1} + C_2F_{b2})we/l_2 \quad (6.3)$$
$$N_3 = (C_1F_{c1} + C_2F_{c2} + C_3F_{c3})we/l_3$$

gde su F_i funkcije vremena i date su sledećim jednačinama:

$$F_{a1} = 1-\exp(-l_1t)$$
$$F_{b1} = 1-(l_2/(l_2-l_1))\exp(-l_1t) + (l_1/(l_2-l_1))\exp(-l_2t)$$
$$F_{b2} = 1-\exp(-l_2t) \quad (6.4)$$
$$F_{c1} = 1-l_2l_3\exp(-l_1t)/((l_2-l_1)(l_3-l_1))+l_1l_3\exp(-l_2t)/((l_2-l_1)(l_3-l_2)) - l_1l_2\exp(-l_3t)/((l_3-l_1)(l_3-l_2))$$
$$F_{c2} = 1- l_3\exp(-l_2t)/(l_3-l_2)+ l_2\exp(-l_3t)/(l_2-l_3)$$
$$F_{c3} = 1-\exp(-l_3t)$$

Karakteristika svih funkcija F_i je da teže 1 kada vreme t teži beskonačnoj vrednosti. Ovo znači da na filtru dolazi do zasićenja posle dovoljno dugog vremena filtracije. U slučaju dostignutog zasićenja filtra, broj atoma radonovih potomaka zahvaćenih filtrom je jednak broju raspadnutih atoma na samom filtru. Aktivnosti pojedinih potomaka su konstantne i ne povećavaju se sa daljim propuštanjem vazduha uz konstantnu brzinu propuštanja vazduha. Aktivnosti ^{218}Po, ^{214}Pb, ^{214}Bi i ^{214}Po na filtru, posle vremena filtracije t su Q_1 , Q_2 , Q_3 i Q_3' date su sledećim jednačinama:

$$Q_1 = C_1 ew F_{a1}$$
$$Q_2 = (C_1F_{b1} + C_2F_{b2})we \quad (6.5)$$

$$Q_3 = (C_3F_{c1} + C_2F_{c2} + C_3F_{c3})we = Q_3'$$

Uzeto je da je aktivnost ^{214}Po jednaka sa aktivnošću ^{214}Bi, što i jeste ispunjeno zbog vrlo kratkog vremena poluraspada ^{214}Po. U slučaju dostignute saturacije filtra, sve funkcije vremena F_i su jednake 1 i aktivnosti su date sledešim jednačinama:

$$Q_{1s} = C_1we$$
$$Q_{2s} = (C_1 + C_2)we \quad (6.6)$$
$$Q_{3s} = (C_1 + C_2 + C_3)we$$

Indeks "s" označava da se radi o saturaciji. Vidi se da je aktivnost u slučaju saturacije upravo proporcionalana brzini propuštanja vazduha (m^3/s) i koncentracijama potomaka u vazduhu ($1/m^3$). Ukupna aktivnost na filtru je jednaka zbiru aktivnosti svih zahvaćenih potomaka, tj

$$Q = Q_1 + Q_2 + Q_3 + Q_3' = Q_1 + Q_2 + 2Q_3 \quad (6.7)$$

odnosno:

$$Q = (C_1(F_{a1}+F_{b1}+2F_{c1}) + C_2(F_{b2}+2F_{c2}) + 2C_3F_{c3})we \quad (6.8)$$

Ako se izmeri ukupna aktivnost filtra Q, i ako se pretpostavi sekularna ravnoteža u atmosferi onda je moguće odrediti C_1 , C_2 i C_3 pomoću odnosa (6.1).

Merenje ukupne aktivnosti koja je zadržana na filtru bi iziskivalo istovremeno merenje i alfa i beta zračenja, što je nepovoljno sa praktičnog stanovišta. Mnogo pogodnije je meriti bilo alfa, bilo beta zračenje sa filtra.

Dalja analiza data u ovom radu odnosi se na beta zračenje. Ukupna beta aktivnost filtra je data kao:

$$Q_b = Q_2 + Q_3 \qquad (6.9)$$

odnosno:

$$Q_b = (C_1 (F_{b1} + F_{c1}) + C_2(F_{b2} + F_{c2}) + C_3 F_{c3}) ew \qquad (6.10)$$

Ako je u atmosferi dostignuta ravnoteže potomaka onda je

$$C_1 = Q_0 / l_1 \; ; \; C_2 = Q_0 / l_2 \text{ i } C_3 = Q_0 / l_3 \qquad (6.11)$$

gde je Q_0 aktivnost radona u jedinici zapremine u atmosferi.
Dobija se da je ukupna beta aktivnost filtra jednaka:

$$Q_b = ((F_{b1} + F_{c1})/l_1 + (F_{b2} + F_{c2})/l_2 + F_{c3} / l_3) ewQ_0 \qquad (6.12)$$

Ako izraz u zagradi označimo sa H(t) dobijamo da je

$$A = Q_b / H(t) we \qquad (6.13)$$

Iz ove formule moguće je naći koncentraciju radona u vazduhu ako je izmerena ukupna beta aktivnost filtra, pod pretpostavkom da je radon u ravnoteži sa svojim kratkoživećim potomcima. Kao što je već rečeno, pomenuta ravnoteža se retko ostvaruje, i zbog toga se prethodna formula može koristiti samo za brzu procenu aktivnosti radona u atmosferi. Za odredjivanje koncentracije radonovih potomaka u atmosferi, nezavisno od stepena dostignute ravnoteže, koristi se takozvani "metod tri tačke".

Ovaj metod se sastoji u sledećem: po prestanku propuštanja vazduha kroz filter, meri se ukupna beta aktivnost filtra tri puta u raznim vremenskim intervalima. Iz dobijenih podataka za aktivnost filtra moguće je odrediti koncentracije potomaka u atmosferi.

Razmotrimo sada promenu broja atoma radonovih potomaka na filtru posle prekida propuštanja vazduha. Uvodimo sledeće oznake; sa t´ je označeno vreme proteklo od trenutka prekida propuštanja vazduha, $N_1´$, $N_2´$ i $N_3´$ su broj atoma ^{218}Po, ^{214}Pb i ^{214}Bi na filtru u trenutku t´. Promena broja atoma potomaka na filtru se opisuje sistemom tri linearne diferencijalne jednačine:

$$\begin{aligned} dN_1´/dt &= l_1 N_1´ \\ dN_2´/dt &= l_1 N_1´ - l_2 N_2´ \\ dN_3´/dt &= l_2 N_2´ - l_3 N_3´ \end{aligned} \qquad (6.14)$$

Početni uslov u ovam slučaju nije homogen i ima sledeći oblik:
U trenutku t´=0

$$N_1´(0)=N_1(t)$$
$$N_2´(0)=N_2(t) \qquad (6.15)$$
$$N_3´(0)=N_3(t)$$

gde su $N_1(t)$, $N_2(t)$ i $N_3(t)$ broj atoma ^{218}Po, ^{214}Pb i ^{214}Bi u trenutku t´=0, to jest u trenutku prekida protoka vazduha i odredjeni su jednačinama datim u prethodnom tekstu. Sa t je označeno vreme trajanja propuštanja vazduha. Rešenje prethodnog sistema linearnih diferencijalnih jednačina uz dati početni uslov je:

$$N_1´(t´)=N_1(t)Z_{a1}$$

$$N_2´(t´)=N_1(t)Z_{b1} + N_2(t)Z_{b2} \qquad (6.16)$$

$$N_3´(t´)=N_1(t)Z_{c1} + N_2(t)Z_{c2} + N_3(t)Z_{c3}$$

gde su Z_i opet funkcije vremena proteklog od prekida propuštanja i date su sledećim jednačinama:

$$Z_{a1} = \exp(-l_1 t´)$$
$$Z_{b1} = l_1 /(l_1 - l_2)(\exp(-l_1 t´)-\exp(-l_2 t´))$$
$$Z_{b2} = \exp(-l_2 t´) \qquad (6.17)$$

$$Z_{c1} = l_1 l_2 \exp(-l_1 t´)/((l_2-l_1)(l_3-l_1))-l_1 l_2 \exp(-l_2 t´)/((l_2-l_1)(l_3-l_2)) + l_1 l_2 \exp(-l_3 t´)/((l_3-l_1)(l_3-l_2))$$
$$Z_{c2} = l_2 \exp(-l_2 t´)/(l_3-l_2)-l_2 \exp(-l_3 t´)/(l_3-l_2)-$$
$$Z_{c3} = \exp(-l_3 t´)$$

Rešenje dato prethodnim jednačinama (6.16) i (6.17) je po obliku analogno rešenju sistema diferencijalnih jednačina koje se odnose na nagomilavanje broja atoma potomaka na filtru pri filtraciji. Medjutim funkcije vremena Z_i su različite od funkcija vremena F_i. Karakteristika funkcija Z_i je da sve teže 0, ako vreme t´ teži beskonačno velikim vrednostima, što znači da posle dovoljno dugog vremena na filtru nema nikakve aktivnosti (što je fizički sasvim razumljivo jer se potomci raspadnu).

Metoda tri tačke se sastoji da se meri ukupna beta aktivnost filtra tri puta po prekidu propuštanja vazduha u trenucima $t_1´$, $t_2´$ i $t_3´$. Ukupna beta aktivnost je data na sledeći način:

$$Q_b(t´)=N_1(t)(l_1 Z_{b1} + l_3 Z_{c3})+N_2(t)(l_2 Z_{b2}+l_3 Z_{c3})+N_3(t)l_3 Z_{c3} \qquad (6.18)$$

Ako se uvedu oznake:

$$f_1(t') = l_2 Z_{b1} + l_3 Z_{c1}$$

$$f_2(t') = l_2 Z_{b2} + l_3 Z_{c2} \qquad (6.19)$$

$$f_3(t') = l_3 Z_{c3}$$

ukupna beta aktivnost u trenucima t_1',t_2' i t_3' se može zapisati na sledeći način:

$$Q_b(t_1') = Q_1 = N_1(t)f_1(t_1') + N_2(t)f_2(t_1') + N_3(t)f_3(t_1')$$

$$Q_b(t_2') = Q_2 = N_1(t)f_1(t_2') + N_2(t)f_2(t_2') + N_3(t)f_3(t_2') \qquad (6.20)$$

$$Q_b(t_3') = Q_3 = N_1(t)f_1(t_3') + N_2(t)f_2(t_3') + N_3(t)f_3(t_3')$$

Sa Q_1 ,Q_2 i Q_3 su označene ukupne beta aktivnosti filtra izmerene u trenucima t_1', t_2' i t_3'. Dobijen je sistem od tri nezavisne nehomogene linearne jednačine sa tri nepoznate $N_1(t)$, $N_2(t)$ i $N_3(t)$, što se može lako rešiti. Kao rešenja dobijaju se brojevi atoma ^{218}Po, ^{214}Pb i ^{214}Bi na filtru u trenutku prekida propuštanja vazduha. Sada se iz sistema jednačina koje daju nagomilavanje broja atoma potomaka na filtru mogu odrediti C_1 ,C_2 i C_3 , koncentracije radonovih potomaka u atmosferi. Rešenja su data sledećim jednačinama.

$$C_1 = l_1 N_1(t)/(weF_{a1})$$
$$C_2 = (N_2(t) - l_1 F_{b1} N_2(t)/(l_2 F_{a1}))l_2/(weeF_{b2}) \qquad (6.21)$$
$$C_3 = (N_3(t) - l_1 F_{c1} N_1(t)/l_3 F_{a1} + l_1 F_{b1} F_{c2} N_1(t)/(l_3 F_{b2} F_{a1}))l_3/(weF_{c3})$$

Ovim su izračunate koncentracije radonovih potomaka ^{218}Po, ^{214}Pb i ^{214}Bi u atmosferi. Sada je moguće izračunati faktor ravnoteže, potencijalnu alfa energiju i aktivnostne koncentracije, kao proizvod brojčanih koncentracija i odgovarajućih konstanti raspada;

$$A(^{218}\text{Po}) = C_1 l_1$$
$$A(^{214}\text{Pb}) = C_2 l_2 \qquad (6.22)$$
$$A(^{214}\text{Bi}) = C_3 l_3$$

Ova metoda ima više varijanti; poznate varijante su "ekspres metoda" ili "metod latentne energije". U literaturi se mogu naći razne preporuke koje se odnose na dužinu propuštanja vazduha, i trenutke merenja nakon prekida filtracije. Takodje je razvijen sličan matematički formalizam za slučaj da se merenje beta aktivnosti ne odvija u "jednom trenutku" već se meri u tri vremenska intervala; takav metod naziva se Kuznetz-ova proba.

Pored merenja ukupne beta aktivnosti ili ukupne alfa aktivnosti, moguće je vršiti alfa, beta ili gama spektrometriju zračenja sa filtra. Ove metode, kao i "metoda

tri taške", omogućuju odredjivanje aktivnosti pojedinih potomaka. Pri alfa spektrometriji značajan je problem samoapsorpcija alfa čestica u samom filtru; alfa čestice gube energiju u filtru usled čega se dobijaju deformisani pikovi. U literaturi se mogu naći poredjenja pojedinih metoda odredjivanja radonovih potomaka u atmosferi zasnovanih na propuštanju vazduha preko filtra. Kao najpovoljnija metoda predlaže se merenje ukupne alfa aktivnosti na filtru metodom tri tačke.

Metoda merenja radonovih potomaka propuštanjem vazduha kroz filtar, pripada aktivnim metodama merenja radonovih potomaka (radona), jer se koriste razni aktivni elementi, kao što su izvori napona, pumpe za produvavanje vazduha kroz filtre i td. Medjutim ova metoda nije trenutna, jer propuštanje vazduha traje nekoliko minuta, na primer u ref [41] preporučuje se propuštanje 5 min. Kao rezultat dobijaju se srednje vrednosti koncentracija radonovih potomaka u tom intervalu vremena. Medjutim, za potrebe procene radijacione zdravstvene štetnosti od radonovih potomaka (ukupan negativni efekat) potrebno je poznavanje njihovih koncentracija u periodu od jedne ili više godina. Sa tog stanovišta filterska metoda se može smatrati trenutnom. Primenjuje se i jedna varijanta filterske metode, propuštanja vazduha u toku celog dana neprekidno. U tom slučaju postigne se zasićenje na filtru i dobijeni rezultat se uzima kao srednja vrednost za dan uzorkovanja.

Postojanje toronovih potomaka (^{220} Rn) u vazduhu komplikuje analizu rezulutata merenja. U tom slučaju primena metode tri tačke je otežana, a može biti i onemogućena. Prisustvo torijumovih potomaka je relativno lako otkriti, jer je vreme poluraspada ^{212}Pb (ThB) 38,3 ks (10,67 sati), što jako odskače od vremena poluraspada radonovih (^{222}Rn) potomaka. ^{212}Pb je beta emiter, tako da, ako je prisutan u atmosferi opadanje beta aktivnosti filtra neće biti tako brzo kao što to predvidja teorija izneta u vezi sa metodom tri tačke. U slučaju značajnijeg prisustva ^{212}Po u atmosferi postojaće izvesna aktivnost na fitru i nakon jednog dana od prekida propuštanja vazduha; ako su u vazduhu prisutni samo potomci ^{222}Rn onda aktivnost na filtru opada na nulu po isteku tri sata.

Pored aktivnih, trenutnih mernih tehnika, kao što je filterska metoda razvijene su i pasivne integracione metode merenja radona i potomaka. One ne zahtevaju nikakve aktivne elemente pri radu, kao što je to slučaj kod aktivnih tehnika. Ove metode daju srednju vrednost koncentracija radona i potomaka u dužem vremenskom periodu. Najčešće korišćena tehnika iz ove druge grupe su trag detektori, koji su osetljivi na alfa zračenje. O ovoj metodi biće reči u sledećem poglavlju.

6.2. Merenje koncentracije radona i njegovih potomaka pomoću trag detektora

Prethodno opisana tehnika merenja radonovih potomaka je aktivna trenutna tehnika i daje aktivnosti radonovih potomaka u jednom trenutku vremena ili u jednom relativno kratkom intervalu. Kao što je rečeno, za procenu radijacionog zdravstvenog rizika potrebno je poznavanje koncentracija radonovih potomaka u dužem vremenskom intervalu. Aktivne metode to ne omogućuju. Alternativni pristup bi bio: meriti aktivnost radona nekom aktivnom metodom svakodnevno više puta u toku dužeg vremenskog perioda i posle toga usrednjiti rezultate. Ovakvo merenje bi

tražilo mnogo vremena, ljudskog rada, a i materijalnih izdataka, naročito ako bi se tražila aktivnost radona na većem broju lokacija (što se i zahteva za procenu ozračenosti populacije). Zbog toga je potrebno razvijati i primenjivati pasivne integracione tehnike merenja radona koje omogućuju postizanje napred pomenutog cilja. Pasivni integracioni detektori čine rešenje gornjih problema. Najznačajniji medju njima su trag detektori i aktivni ugalj. U ovom odeljku će biti reči o trag detektorima, a u sledećem o aktivnom uglju.

Princip rada trag detektora se sastoji u sledećem: pri prolasku alfa čestice ili neutrona kroz neki izolator usled jonizacije atoma i molekula dolazi do stvaranja niza slobodnih hemijskih radikala. Ukoliko je "gustina" oštećenja dovoljno velika može se govoriti o "latentnom tragu". Ako komad izolatora sa postojećim latentnim tragovima izložimo nekoj hemijski aktivnoj materiji, koja nagriza taj materijal, doći će do stvaranja tragova na mestima gde su postojali latentni tragovi. Na tim mestima nagrizanje je jače i tako dobiveni tragovi su vidljivi pod optičkim mikroskopom.

Razvijen je veći broj trag detektora i ispitan veliki broj različitih materijala. Ovde se nećemo detaljnije upuštati u mnogobrojna pitanja vezana za mehanizam formiranja tragova, tehnologije proizvodnje, načina nagrizanja i drugih mnogobrojnih pitanja u vezi sa trag detektorima. Trag detektori su ovde od interesa samo kao detektori alfa zračenja, odnosno radona i potomaka. U tu svrhu se koristi više tipova trag detektora, kao što su; Kodac-ovi LR-115 i MAKROFOL, Terradex-ovi trag detektori F i B tipa i drugi. Najosetljiviji trag detektor sa kojim se mnogo radi na merenju radona, ali i u drugim oblastima fizike, je plastični CR 39 detektor. Proizvodi se u više zemalja Evrope (Madjarska, V.Britanija) i SAD.

Za merenje radona trag detektori se koriste na dva načina. Prvi je: detektor je svojom neosetljivom stranom zalepljen na tanak karton ili neki plastični materijal. Ovakav detektor se naziva "go", "nepokriven" ili "isukan". Tako pripremljen detektor se ostavi da stoji duži vremenski interval u atmosferi u kojoj se želi izmeriti koncentracija radona. Vreme trajanja izlaganja detektora zavisi od koncentracije radona, (i iznosi najmanje 1 mesec ako se meri koncentracija radona u zatvorenim prostorijama). Posle isteka planiranog vremena izlaganja detektori se sakupljaju i obradjuju. Tako postavljen detektor registruje alfa zračenje koje potiče od radona, ali i od njegovih potomaka ^{218}Po i ^{214}Bi/^{214}Po. Meri se i ^{222}Rn i njegovi potomci. Ova činjenica je svakako nepovoljna karakteristika nepokrivenog detektora, jer se odnos koncentracija radona i potomaka stalno menja što unosi izvesnu neodredjenost u krajnji rezultat.

Ukupan broj tragova na nepokrivenom detektoru je zbir dve komponente: prva komponenta je od alfa čestica emitovanih od radona i potomaka koji se nalaze u atmosferi blizu detektora. Druga komponenta je od potomaka koji su se, zajedno sa aerosolima kojima su se pripojili, nataložili na sam detektor. Proces taloženja radioaktivnih aerosola na nepokriven detektor, koji se često naziva "plate out efect" remeti merenje radona.

Drugi način postavljanja detektora je "detektor i difuzionoj komori". Detektor se stavi na dno pogodne posude, koja se sa otvorene strane zatvori filter papirom ili nekim drugim materijalom, koji propušta radon ali ne i prirodne aerosole. Radon iz atmosfere difunduje kroz filter papir u komoru. Potomci radona ne prodiru u komoru i ne detektuju se. Uspostavlja se ravnoteža radona u atmosferi i u zatvorenoj posudi.

Radon koji je prodro u difuzionu komoru se u njoj raspada. Nastali potomci ne mogu izaći iz komore već se u njoj raspadaju ili talože na njenim zidovima. Može se uzeti da se u komori uspostavlja ravnoteža radona sa potomcima.

Više problema se nameće pri radu sa trag detektorima i u jednoj i u drugoj varijanti. Najznačajniji je problem kondenzovanja vlage na površini detektora. Zbog vrlo malog dometa alfa zračenja u vodi, sloj vlage kondenzovan na detektoru smanjuje efikasnost detekcije alfa zračenja. Prema nekim autorima ovo smanjenje efikasnosti može da iznosi i do 5 puta. Kondenzovane kapljice na trag detektoru pored smanjenja efikasnosti, izazivaju jako nehomogenu raspodelu gustine tragova na detektoru. Zbog toga se u difuzinu komoru stavljaju razni higroskopni materijali; koriste se i higroskopni filtri za zatvaranje komore što je bolje rešenje. Pri radu sa nepokrivenim trag detektorima ne može se izbeći problem kondenzovanja vlage na njihovoj površini. Drugi problem pri radu sa nepokrivenim trag detektorima je njihova kalibracija. Osetljivost trag detektora je u funkciji od energije alfa zračenja. Kako je energetski spektar alfa zračenja u zavisnosti od stepena dostignute ravnoteže radona i potomaka, osetljivost trag detektora se menja u zavisnosti od stepena ravnoteže. Moguće rešenje ovog problema je sledeće; naći srednji stepen ravnoteže i za njega odrediti kalibracioni faktor koji povezuje gustinu tragova na detektoru sa koncentracijom i vremenom izlaganja. Pri ovakvom radu mogu se učiniti sistematske greške merenja radona. Iz iznetog je jasno da je merenje radona otkrivenim trag detektorima dosta grubo i može biti i netačno. Zato se ovakva merenja radona ne preporučuju.

Pri radu sa pokrivenim detektorima (detektor u difuzionoj komori) ovi problemi su ublaženi. Može se pripremljena komora staviti u "boks" sa dobro poznatom referentnom koncentracijom radona i tako izvršiti njena kalibracija. Odredjivanje referentne koncentracije se obično obavlja nekom trenutnom tehnikom merenja radona, koja je na raspolaganju; obično je to Lucass-ova sonda; može se primeniti i neka druga pasivna integraciona tehnika koja je dobro kalibrisana.

6.3. Opis rada sa trag detektorim LR-115 i CR 39; kalibracioni koeficijenat

Detektori LR-115 i CR 39 su najčešće korišćeni trag detektori za merenje radona. Detektor LR 115 je izradjen na bazi nitroceluloce. Tanak sloj od 6mm ili 12 mm pripremljene nitroceluloze nanosi se na sloj plastike debljine do 0.1 mm. Detektor sa osetljivim slojem od 6 mm je tip I, a sa 12 mm je tip II. Osetljivi je ona strana na koju je naneta nitroceluloza. Detector CR 39 je izradjen na bazi policarbonata

Postoji veliki broj radova raznih autora u kojim se daju rezultati merenja radona koja su obavljena ovim detektorima. Ima više radova koji se odnose na kalibraciju ovih detektora, bilo otkrivenih, bilo u difuzionoj komori. Različite vrednosti kalibracionih koeficijenata se mogu naći u literaturi. Pri tome se za otkriven detektor LR-115 preporučuje kalibracioni faktor od k=(164+35) Bqs/(mtrag). Poreklo jedinice Bqs/(mtrag) je sledeće: kalibracioni faktor se u literaturi obično daje u vansistemskim nekoherentnim jedinicima (Bqdan/m^3)/(trag/cm^2), što kada se preračuna dobija se Bqs/(mtrag). Ovaj kalibracioni faktor se odnosi na stepen ravnoteže od 0,446

[43],[44]. U radu [44] daje se poredjenje osetljivosti otkrivenih detektora LR15 i CR 39. Pri tome je CR 39 efikasniji oko 4 puta; ovoliko veća efikasnost detekcije detektorom CR 39 u odnosu na LR 115 se teško može prihvatiti. Razlog za to je što detektor CR 39 ima vrlo visok gornji energetski prag detekcije za alfa čestice od oko 20 MeV. Tako, CR 39 registruje alfa čestice emitovane sa površine samog detektora, tj. u ukupnu gustinu tragova ulaze i oni radonovi potomci koji su se nataložili na detektor. Trag detektor LR 115 ima gornji prag detekcije za alfa čestice izmedju 4 i 5 MeV i on ne detektuje alfa zračenje nataloženih radonovih potomaka. Odbacivanje tragova koji potiču od plate out-a u toku samog procesa brojanja tragova je skoro nemoguće. U radu [45] poredjena je osetljivost LR-115 i CR 39 u oba slučaja, nepokriveni i u komori. I u ovom radu pokazalo se da je gustina tragova na otkrivenom LR-115 znatno manja nego na CR 39 detektoru. Medjutim, oba detektora u difuzionoj komori pokazuju približno istu osetljivost. Poredetekcije plate-outa, objašnjenje ovakvih rezultata je u tome što detektor CR 39 detektuje alfa čestice u celokupnom opsegu energija koje emituju radon i njegovi potomci, što nije slučaj sa LR 115.

Srednja vrednost koncentracija radona "C" u toku izlaganja detektora, i broj tragova po jedinici površine detektora "r" u jedinici vremena izlaganja su u vezi datoj jednačinom

$$C=kr \tag{6.23}$$

Konstanta proporcionalnosti k u prethodnoj jednačini je kalibracioni koeficijenat i on zavisi od vrste korišćenih trag detektora, uslova njihovog izlaganja i nagrizanja i faktora radioaktivne ravnoteže izmedju radona i njegovih potomaka. Kalibracioni faktor se može definisati kao količnik srednje vrednosti koncentracije radona u nekom intervalu vremena i gustine tragova na detektoru po jediničnom intervalu vremena izlaganja. Ovaj kalibracioni koeficijenat je meren od strane više autora. U tablicama 2 i 3 dat je pregled literaturnih vrednosti kalibracionog koeficijenta za detektor LR 115 II i CR 39 respektivno; dati su još i uslovi razvijanja, faktor ravnoteže na koji se kalibracioni koeficijenat odnosi, reference i dr. Sve vrednosti su preračunate u istim jedinicama Bqs/m/(trag/m).

Merenja kalibracionog koeficijenta se obavljaju na sledeći način: na dno zatvorene posude stavi se izvor radona (obično je to rastvor RaCl ili komad uranove rude), tako da se u toj posudi dobijaju dovoljno visoke koncentracije radona. U takvu posudu unese se detektor koji se želi kalibrisati. U zatvorenoj posudi se očekuje da je faktor ravnoteže izmedju radona i potomaka jednak 1. Radonovi potomci koji se formiraju u zatvorenoj posudi, koja služi za kalibraciju, se jednim delom talože na njenim unutrašnjim površinama posude. Proces taloženja smanjuje koncentraciju alfa emitera u komori za kalibraciju. Ovo je značajno ako se kalibrišu otkriveni detektori. Radovi u kojima je dat kalibracioni koeficijenat za otkrivene detektore, a da pri njihovom kalibrisanju nije kontrolisan faktor ravnoteže, treba uzimati sa izvesnom rezervom.

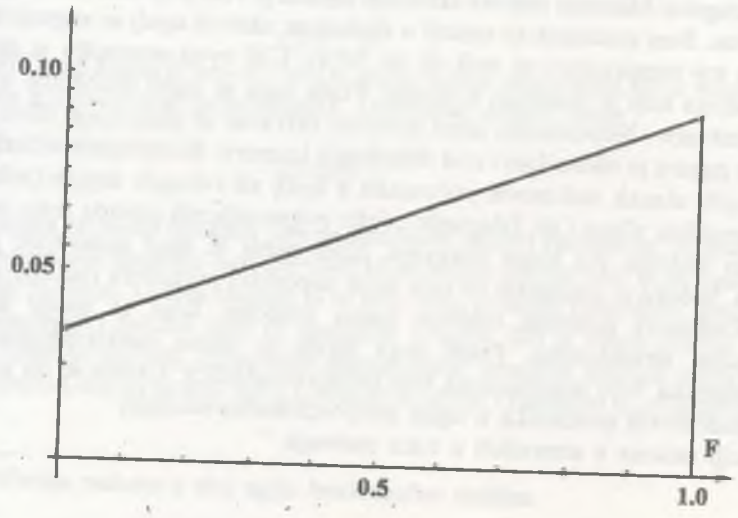
Tabela 2: Pregled literaturnih vrednosti kalibracionog koeficijenta za merenje radona pomou nepokrivenog trag detektora LR 115

Kalibracioni koeficijent Bq/m^3/(trag/m^2)	Faktor ravnoteže	Uslovi nagrizanja T(°C); T(min);rastvor	Referenca
173	0.446	60; 170; 10 % NaOH	43
86	1	60; 170; 10 % NaOH	44
276	"sredni f. r."	60; 140; 10 % NaOH	46
233	1	60; 120; 6 % NaOH	47
86	0.43		
86	0.5	60; 120; 10 % NaOH	48
142	1	60; 160; 10 % NaOH	49

Tabela 3: Pregled literaturnih vrednosti kalibracionog koeficijenta za merenje radona pomoću nepokrivenog trag detektora CR 39

Otkriveni detektor t/cm^2/Bq d/m^3	F t/cm^2/WL d	Detektor u komori t/cm^2/Bq d/m^3	Uslovi Nagr	Ref.
336-768		0.0456-0.1	CpE, ECE 20% NaOH	50
1300 590	1 0.5		CpE, ECE 30% KOH	44
		0.36	nije dato	45
		0.122-0.147	6.25 N NaOH	51
0.042-0.065			NaOH	52
0.129 480	1		6 N NaOH	53
1600	0.5	0.18	6M NaOH	54
		0.0486-0.055	računski rezultat	55

U radu [44] je za kalibraciju služila velika komora (zapremine 8 m^3), povezana sa malim sudom od 3l. U ovako velikoj komori je bilo moguće uzimanje uzoraka vazduha radi merenja koncentracije radonovih potomaka metodom tri tačke koja je opisana u prethodnom poglavlju. Koncentracija radona je merena Lucasovom probom tako da je bilo moguće odredjivanje faktora ravnoteže. Na slici 8 data je zavisnost recipročne vrednosti kalibracionog koeficijenta (1/k) od faktora ravnoteže; ova zavisnost je linearna. Sa grafika zafisnosti 1/k od F može se zaključiti da je k=86,4 Bqs/m /(trag/m) za faktor ravnoteže F=1.



Slika 8. Zavisnost recipročne vrednosti kalibracionog koeficijenta za merenje radona otkrivenim detektorom LR115

U radu [49] izvršeno je uporedjivanje eksperimentalnih i računskih vrednosti za kalibracioni faktor. Dobivena je vrednost od 142,6 Bqs/m/(trag/m) za F=1.

Kao što se može videti iz prethodnih tablica, postoji izvesna nesaglasnost izmedju pojedinih vrednosti kalibracionog faktora. To je bio razlog za razvijanje računskih modela za računanje kalibracionog koeficijenta za otkrivene detektore i za detektore u difuzionoj komori. Model je zasnovan na: a) Bethe-Bloch ovoj formuli za zaustavnu moćza teške naelektrisane čestice, primenjenoj na slučaj zaustavljanja alfa čestica u nitrocelulozi i b) na metodi simulacije emisije, kretanja i detekcije alfa čestica, [56],[57],[58],[59] Sličan računski model je razvijen i za detektor CR 39, [60].

Loše strane korišćenja trag detektora su: dosta dugo vreme potrebno za dobijanje informacije, nužnost hemijskog i/ili elektrohemijskog razvijanja detektora kao i na kraju očitavanje tragova vezano sa odredjenim teškoćama i greškama. Postoji, medjutim, trend ka automatizaciji čitanja broja tragova i uopšte celokupnog postupka

obrade detektora. Povezivanje mikroskopa sa računarima pruža mnoge nove, mogućnosti, koje se odnose kako na poboljšanje statistike brojanja, tako i na mogućnost spektrometrije i proučavanja ugaone raspodele čestica koje su detektovane itd, [61].

6.4.Merenje koncentracije radona aktivnim ugljem

Merenje radona pomoću adsorpcije radona na aktivnom uglju je pasivna, integraciona tehnika kao i trag detektori. Ova metoda ima nekih prednosti nad trag detektorima, a to su pre svega, kraće vreme integracije potrebno za dobijanje informacije, veća osetljivost, niža cena, nema hemijskog razvijanja niti dugotrajnog očitavanja tragova. Merenje radona aktivnim ugljem je vrlo pogodna metoda što se tiče tačnosti i cene. Sam postupak se sastoji u sledećem: aktivni ugalj se zagreje na 100 do 200 °C i na toj temperaturi se drži 40 do 50 ks. Cilj ovog postupka je da se ugalj oslobodi radona koji je postojao u njemu. Posle toga se ugalj prebacuje u plastične posudice i zatvara . Neposredno pred merenje zatvarač se zamenjuje filter papirom. Uloga filter papira je slična kao i kod difuzionih komora: da omoguće difuziju radona i da onemogće ulazak radonovih potomaka u ugalj ali i drugih nepoželjnih materija kao što su prašina, vlaga i dr. Izlaganje ovako pripremljenih posuda traje od tri dana do nekoliko nedelja. Na kraju izlaganja, filter papir se opet zamenjuje plastičnim zatvaračem. Sačeka se najmanje tri sata da se uspostavi ravnoteža radona i potomaka u uglju. Radonovi potomci emituju gama zračenje koje se može detektovati odgovarajućim detektorima. Posle toga izvrši se gama spektroskopska analiza izloženih uzoraka, bilo scintilaciona bilo poluprovodnička. Uzima se da je izmerena aktivnost radonovih potomaka u uglju proporcionalna srednjoj koncentraciji radona u atmosferi u toku merenja.

Teorija adsorpcije radona na aktivnom uglju

Adsorpcija gasa na uglju u oblasti parcijalnih pritisaka manjim od 1 bar, što je uvek slučaj sa radonom je opisana Henrijevim zakonom: [62]

$$v=kp \tag{6.24}$$

gde je v zapremina gasa adsorbovana po jedinici mase uglja, k je adsorpcioni koeficijenat a p je parcijalni pritisak. Literaturne vrednosti za koeficijenat adsorpcije se kreću u intervalu od 2 do 6 m^3/kg. Ekvivalentni izraz je

$$Q/m=kC \tag{6.25}$$

pri čemu je Q adsorbovana aktivnost u Bq, m je masa uglja u kg, k adsorpcioni koeficijenat u m^3/kg i C zapreminska aktivnost radona u atmosferi u Bq/m^3 . Ako masu uglja m stavimo u prostor zapremine V u kome je aktivnost radona C_0, adsorpcija će smanjiti koncentraciju na C prema sledećoj jednačini:

$$C=C_0 - Q/V \qquad (6.26)$$

Iz prethodnih jednačina može se eliministi C. Dobiće se izraz:

$$Q=kmC_0/(1+km/V) \qquad (6.27)$$

Mogu se razlikovati dva slučaja:

a) Prvi slučaj je km>>V; ovo je slučaj male zapremine i interesantan je kada se meri moć emanacije radona iz nekih materijala. Pri tome se izvesna količina nekog materijala zatvori u plastični sud sa detektorom i meri se koncentracija radona. U ovakvim "emanacionim" eksperimentima aktivni ugalj adsorbuje skoro sav stvoreni radon. U ovom slučaju je:

$$Q=C_0 V \qquad (6.28)$$

b) Drugi slučaj je km<<v ovo je slučaj velike zapremine što je interesantno pri merenjima u zatvorenim prostorijama. Dobija se sledeći izraz:

$$Q=kmC_0 \qquad (6.29)$$

Ova jednačina se može koristiti ako se obezbede uslovi ravnoteže, to jest ako su sva zrnca istovremeno izložena radonu. Ovo bi se moglo izvesti ako bi se ugalj raširio na vrlo velikoj površini. U tom slučaju bi se vrlo brzo postigla ravnoteža izmedju radona koji se adsorbuje i radona koji se raspadne u uglju, što je ekvivalentno trenutnom merenju. Pošto to nije cilj, jer postoje mnogo bolje trenutne metode merenja radona, mora se koristiti sloj aktivnog uglja konačne debljine i razraditi teorija difuzije radona u ugalj.

Difuzija radona u sloj uglja beskonačne dubine

Ako sa Sa y(x,t) označimo koncentracija radona u uglju na dubini x, računato od granične površine ugalj-vazduh u trenutku vremena t od početka izlaganja onda se Fick-ov zakon difuzije može napisati u sledećoj formi:

$$J=-Ddy/dx \qquad (6.30)$$

gde je J fluks difundujućeg materijijala, D difuzioni koeficijenat dy/dx gradijent koncentracije. Ako se uračuna raspad radona, diferencijalna jednačina koja opisuje promenu koncentracije radona sa vremenom i dubinom je:

$$\frac{\partial y}{\partial t}=D\frac{\partial^2 y}{\partial x^2}-\lambda t \qquad (6.31)$$

Ovu jednačinu ćemo nazvati osnovnom. Početni uslov je: u t=0, y=0 za bilo koje x. Na graničnoj površini vazduh-ugalj, koncentracija radona C mora biti ista sa obe strane. Usvojimo sada sledeće oznake: f poroznost uglja što predstavlja deo zapremine uglja koji zauzima vazduh, r gustina uglja. Onda je fdV zapremina vazduha u zapremini dV uglja, i RdV je masa uglja u zapremini dV. Količina radona u dV je ydV i sastavljena je iz dve komponente, radona u vazduhu u porama uglja i radona u uglju, to jest:

$$ydV=CfdV+kCrdV. \qquad (6.32)$$

Prema radu [62] prvi član na desnoj strani prethodne jednačine se može uzeti da je jednak nuli, jer je mnogo manji od drugog člana. Odatle se dobija prvi granični uslov na x=0:

$$\text{za } x=0 \; y=krC(t) \qquad (6.33)$$

Drugi granični uslov se odnosi na x beskonačno i uzima se da je za x= beskonačno y=0

Veza izmedju konstanti D i k je data u radu [63] na sledeći način:

$$D=ge'D_g/rk \qquad (6.34)$$

g je faktor "zavojitosti uglja", e´ je deo zapremine uglja koja nije zauzeta česticama, D je difuziona konstanta radona u vazduhu, r je gustina uglja. Dati su numerički podaci za gornje konstante:[62]

$$D=0{,}12\ 10^{4}\ m^2/s\ ;\ g=0{,}6\ ;\ e'=0{,}45;\ R=0{,}5\ 10^{3}\ kg/m^3$$

Jasno je da su D i k obrnuto proporcionalni, to jest D=const/k.

Potrebno je rešiti"osnovnu" parcijalnu diferencijalnu jednačinu (6.31) koja opisuje difuziju radona u aktivni ugalj.
Pri tome se mogu razlikovati dva slučaja: (i) kratkotrajno i (ii) dugotrajno izlaganje uglja atmosferskom radonu.

i) slučaj kratkotrajnog izlaganja u trajanju od 1 do 3 dana; u ovom slučaju je moguće zanemariti raspad radona i uzeti da je konstanta radioaktivnog raspada jednaka nuli. Osnovna difuziona jednačina sada postaje

$$\frac{\partial y}{\partial t}=D\frac{\partial^2 y}{\partial x^2} \qquad (6.35)$$

ii) Druga mogućnost je slučaj dugotrajnog ozračivanja, kada se ne može zanemariti raspad ^{222}Rn i uzima se u obzir tačna vrednost njegove konstante radioaktivnog raspada.

Rešavanje difuzionih jednačina za sloj konačne debljine

i) Ovo je slučaj kratkotrajnog izlaganja. Rešava se difuziona jednačina (6.35), sa početnim uslovom

$$y(x,0)=0 \qquad (6.36)$$

i graničnim uslovima

$$y(0,t)=krC_0 \qquad (6.37)$$

$$\frac{\partial y(l,t)}{\partial x}=0$$

Početni uslov označava da pre izlaganja nije bilo radona u uglju. Granični uslovi znače da je u atmosferi konstantna koncentracija radona C_0 , i da je drugi kraj x=l izolovan, tj. da je fluks radona za x=l jednak nuli. Prethodna diferencijalna jednačina je paraboličnog tipa i rešava se Furijeovom metodom razdvajanja promenljivih. Uzima se da je y(x,t) proizvod dve funkcije od kojih je jedna zavisna samo od koordinate x, a druga od vremena t:

$$y(x,t)=T(t)X(x) \qquad (6.38)$$

Nakon rešavanja diferencijalne jednačine i primene zadatih graničnih i početnih uslova, kao krajnje rešenje dobiće se

$$y(x,t)=k\rho C_0[1-\frac{4}{\pi}\sum \frac{1}{2n+1}\exp(\frac{(2n+1)^2\pi^2 Dt}{(4l^2)})\sin((2n+1)\pi\frac{x}{2l})] \qquad (6.39)$$

što je rešenje difuzione jednačine za zadate početne uslove. Rešenje daje prostorno vremensku raspodelu aktivnosti radona u aktivnom uglju.

Pretpostavimo sada cilindričnu geometriju kontejnera sa aktivnim ugljem, pri čemu je S površina poprečnog preseka cilindra. Veličina Sy(x,t)dx predstavlja aktivnost radona u uglju u sloju x,x+dx u trenutku t od početka izlaganja. Ukupna aktivnost radona u uglju, (što je merljiva veličina) može se dobiti integracijom prethodne jednačine po koordinati x u granicama od 0 do l.

$$y(t)=S\int_0^l y(x,t)dx \qquad (6.40)$$

Po izvršenoj integraciji dobiće se formula:

$$y(t)=kC_0\rho l[1-\frac{8}{\pi^2}\sum\frac{e^{-(2n+1)^2\pi^2\frac{Dt}{4l^2}}}{(2n+1)^2}] \qquad (6.41)$$

što je aktivnost radona adsorbovana u sloju aktivnog uglja debljine l,u trenutku t. Može se pokazati da se korišćenjem La Place-ove transformacije, pri rešavanju početne difuzione jednačine dolazi do sledeće formule:

$$y(t)= 2k\ rSC_0\ (Dt/p)^{1/2} \qquad (6.42)$$

Vidi se da se aktivnost u uglju povećava sa kvadratnim korenom vremena izlaganja za mala vremena izlaganja. Za velika vremena izlaganja gornja formula nije primenljiva.

ii) Slučaj dugotrajnog izlaganja. U ovom slučaju ne može se zanemariti konstanta radioaktivnog raspada radona i diferencijalna jednačina koju treba rešiti glasi:

$$\frac{\partial y}{\partial t}=D\frac{\partial^2 y}{\partial x^2}-\lambda y \qquad (6.43)$$

Granični i početni uslovi su isti kao i u prethodnom slučaju. Rešenje jednačine se traži u obliku zbira dve funkcije v(x) i w(x,t), to jest

$$y(x,t)=y(x)+w(x,t) \qquad (6.44)$$

Rešavanje ovde nije dato u detaljno. Kao konačno rešenje dobiće se sledeća jednačina:

$$y(x,t)=kC_0\rho[\frac{\cosh\sqrt{\frac{\lambda}{D}}(l-x)}{\sinh\sqrt{\frac{\lambda}{D}}l}-\frac{D\pi}{2}\sum_1^{\infty}(2n+1)\frac{e^{-(2n+1)^2\pi^2\frac{D}{4l^2}t}}{(2n+1)^2\pi^2\frac{D}{4l^2}+\lambda}] \qquad (6.45)$$

aktivnost radona u uglju u trenutku t se može dobiti integraljenjem prethodne formule po koordinati x od 0 do l. Dobija se sledeća formula:

$$y(t)=k\rho C_0 S\left[\sqrt{\frac{D}{\lambda}}\frac{\sinh\left(\sqrt{\frac{\lambda}{D}}l\right)}{\cosh\left(\sqrt{\frac{\lambda}{D}}l\right)}-\frac{2D}{l}\sum_0^{\infty}\frac{e^{\left[-(2n+1)\pi^2\frac{D^2}{4}\beta^2+\lambda\right]t}}{(2n+1)\pi^2\frac{D^2}{4l^2}+\lambda}\right] \qquad (6.46)$$

koja opisuje nagomilavanje radona u uglju u slučaju kada nije zanemaren raspad radona. Ako se uzme da konstanta radioaktivnog raspada teži nuli prethodna formula će se svesti na jednačinu koja se dobija uz zanemarivanje raspada. Pored toga, za vrlo velika vremena izlaganja, to jest za beskonačno dugo vreme izlaganja drugi član u gornjoj formuli teži nuli. Ovo znači da za konstantno C_0, postoji maksimalno moguća sakupljena aktivnost u uglju y(b) i ona iznosi:

$$y(b)=k\rho C_0 S\sqrt{\frac{D}{\lambda}}\frac{\sinh\sqrt{\frac{d}{\lambda}}l}{\cosh\sqrt{\frac{\lambda}{D}}l} \qquad (6.47)$$

i važi za vrlo duga vremena izlaganja (u odnosu na vreme poluraspada radona). Ako sve konstante u gornjoj formuli, osim C_0, označimo sa f dobiće se:

$$y(b)=fC_0 \qquad (6.48)$$

što znači da je aktivnost radona nakupljena u aktivnom uglju za dugovremensko izlaganje proporcionalna srednjoj vrednosti koncentracije radona u atmosferi. Pri tome se konstanta proporcionalnosti f može izraziti sledećom jednačinom:

$$f=k\rho\sqrt{\frac{D}{\lambda}}\frac{\sinh\sqrt{\frac{\lambda}{D}}l}{\cosh\sqrt{\frac{\lambda}{D}}l} \qquad (6.49)$$

Iz prethodne jednačine vidi se da je kalibracioni koeficijenat za merenje radona aktivnim ugljem zavisan od gustine uglja r i koeficijenta difuzije D, radona u ugalj. Obe ove veličine zavise od vrste uglja.

Moguće su kombinacije aktivnog uglja i neke druge vrste detektora alfa, beta ili gama zračenja u samom uglju ili ispred njega. Na primer, poznata je kombinacija aktivnog uglja i trag detektora koji je stavljen na površinu uglja. U radu [64] preporučuje se deljenje uglja u dva sloja i td.

7. RADIJACIONI RIZIK PRI UNUTARKUĆNOM IZLAGANJU RADONOVIM POTOMCIMA

Obimni programi merenja koncentracije radona i njegovih kratkoživećih potomaka preduzeti u više zemalja sveta, ustanovili su srednju vrednost koncentracije radonovih potomaka u atmosferi zatvorenih prostorija od oko 37 Bq/m^2 /UN 82/ u umerenim klimatskim oblastima, pri čemu je opseg izmerenih vrednosti vrlo širok. Na otvorenom prostoru koncentracije su 5 do 10 puta niže. Uzimajući u obzir faktor bavljenja u zatvorenim prostorijama od 0,8 (koji predstavlja deo od ukupnog vremena koje pojedinac provede u zatvorenim prostorijama) procenjena je srednja ekvivalentna doza od 14 mSv za godinu u traheo-bronhijalnom sloju bazalnih ćelija i oko 1,7 mSv za godinu u pulmonarno-alveolarnom delu. Doza u traheo- bronhijalnom delu je za red veličine veća od doza koje prime drugi organi ljudskog tela od prirodnog zračenja. Postavlja se pitanje; koliki je radijacioni rizik od izlaganja pluća radonovim potomcima? Ima pokušaja direktnih epidemioloških studija na ovu temu (na primer "Workshop on residential radon epidemiology", [65]. U radu [66] izvršena je kritička analiza do sada izvršenih epidemioloških studija. Analizirano je ukupno 15 studija. U sedam od njih nadjena je pozotovna korelacija izmedju povećanog broja plućnih kancera i povećane koncentracije radona u zatvorenim prostorijama. U šest studija nije nadjena nikakva korelacija, dok je u dve otkrivena negativna korelacija. Ovi rezultati, koji su svakako od fundamentalnog značaja za nauku, još uvek su kontraverzni i ne mogu se izvući pouzdani zaključci. Dalje epidemiološke studije i programi su još u toku.

Radijacioni rizik je moguće proceniti i posrednim metodama. Postoji više takvih indirektnih pristupa problemu, ali svi polaze od pretpostavke proporcionalnosti izmedju izlaganja pluća radonovim potomcima (odnosno doze u plućima) i odgovarajućeg broja, radijacijom izazvanih plućnih kancera [67].

7.1.Pristupi zasnovani na konceptu apsolutnog rizika

Kancerogeni rizik od zračenja se može izraziti preko apsolutnog rizika, na sledeći način:

$$a=DF(D)/D \qquad (7.1)$$

gde je a, faktor apsolutnog rizika, DDF(D) višak broja kancera izazvan zračenjem i D doza. Faktor *a* se u principu može odrediti iz dva izvora: prvi izvor su rezultati povećeanog broja plućnih kancera kod rudara koji rade u rudnicima sa podzemnom eksploatacijom, a drugi je u vezi sa plućnim kancerima koji su izazvani gama zračenjem velikim dozama pri nuklearnim eksplozijama, u II svetskom ratu (Hirošima i

Nagasaki). Vrednost faktora rizika za plućni kancer, izvedene iz povećanog broja plućnih kancera kod rudara, su različiti kod pojedinih autora [67], ali se nalaze u okviru jednog reda veličine. Srednji apsolutni koeficijent rizika za ceo život, za plućni kancer od udahnutih radonovih potomaka je procenjen na $(0,23+-0,11)10^{-4}$ m^3 /(Js) (odnosno $(3,0+-1,5)10^{-4}$ WLM^{-1}), usrednjeno preko svih starostnih grupa [67]. Ako se uzme u obzir konverzioni faktor izmedju apsorbovane doze i izlaganja radonovom potomcima od 0,46 mGy/(Jsm^3) (6 mGy/WLM) dobija se faktor rizika (0,05+-0,025) 1/Gy. Pušenje je glavni faktor koji onemogućava direktnu primenu gore datog faktora rizika. Na primer u jednoj studiji u SAD od 159 plućnih kancera kod rudara samo je 9 bilo kod nepušača. Ovo navodi na zaključak da se gornji faktor rizika pre odnosi na pušenje nego na radonove potomke. Zbog ovoga, apsolutni faktor rizika se mora znatno smanjiti. Novoizveden faktor apsolutnog rizika, koji se odnoosi samo na nepušače je $(0,077+-0,0036)10^{-4}$ m^3/(Js) (to jest $(1+0,5)10^{-4}$ WLM^{-1}). Medjutim, sadejstvo izmedju raznih kancerogenih faktora se ne može isključiti, bar u principu. Očigledna je visoka neodredjenost (neizvesnost) rezultata za faktor apsolutnog rizika izvedenog na ovaj način. Ova neodredjenost najvećim delom potiče od nedovoljno dobro poznate koncentracije radonovih potomaka u rudnicima. Faktor rizika dobiven za rudare, ne može se direktno primeniti na celokupnu populaciju. Ima više razloga "za" i "protiv" ekstrapolacije epidemoloških studija izvedenih nad rudarima, na celokupnu populaciju. Rudar je najčešće (možda i isključivo) odrastao muškarac, obično izmedju 30 i 50 godina, pušač; uslovi ozračivanja su drugačiji nego u zatvorenim prostorijama: različit nivo koncentracija radona i potomaka, različita koncentracija i raspodela aerosolnih čestica po dijametrima, veća brzina disanja i td.; sve su to razlozi koji otežavaju ekstrapolaciju rezultata na unutarkućno ozračivanje celoupne populacije. Medjutim razlozi koji su "za" takvu ekstrapolaciju takodje postoje i sastoje se u tome da je moguće uračunati sve malopre pomenute razlike ozračivanja u zgradama i u rudnicima, [30]. Ako se svi pobrojani faktori uzmu u obzir (različita starostna i polna struktura populacije i rudara, različiti uslovi ozračivanja i dr) dolazi se do faktora apsolutnog rizika za plućni kancer od izlaganja u zatvorenim prostorijama od $0,07x10^{-4}$ m^3 /(Js) (0,9 WLM^{-1}) sa opsegom vrednosti od $0,03x10^{-4}$ m^3/(Js) do $0,12x10^{-4}$ m^3/(Js) (odnosno $(0,4-1,6)x10^{-4}$ WLM^{-1}) usrednjeno preko svih starostnih grupa stanovništva [67]. U monografiji [68] izvršena je uporedna analizira doza od radonovih potomaka u rudnicima i u zatvorenim prostorijama.

Od značaja je ovde pomenuti podatke o broju kancera kod rudara Češko Slovačkih rudnika urana [69]. Evidencija se vodi još od 1948 godine. Po mišljenju autora ovog rada to je najpotpunija i najpedantnije uradjena studija ovakve vrste. Ona je pokazala da izlaganje do 100 WLM mnogo efikasnije izaziva plućni kancer nego veća izlaganja. Postoji nelinearnost u oblasti "malih" doza, ali tako da su one štetnije nego što bi to predvidela linearna hipoteza.

Drugi moguci pristup proceni radijacionog rizika je zasnovan na povećanom broju plućnih kancera posle velikog spoljašnjeg ozračivanja. Ovo se pre svega odnosi na preživele osobe, ozračene pri nuklearnim eksplozijama u II svetskom ratu, kao i na pacijente ozračene x i gama zračenjem u cilju lečenja od ankylosing spondylitisa. Srednji faktor rizika plućnog kancera za ozračivanje x i gama zračenjem je u intervalu $(10-30)10^{-4}$ Gy^{-1}. Neodredjenost rezultata je i u ovom slučaju velika i najvećim delom potiče od nedovoljno dobro poznate doze u trenutku ozračivanja.

Treći mogući pristup istom problemu je dozimetrijski. Ukupan rizik R, u plućima je suma dva člana:

$$R=a_b\ QD_b + a_pQD_p \qquad (7.2)$$

pri čemu su a_b i a_p faktori rizika za bronhijalni i pulmatorni deo pluća, D_b i D_p odgovarajuće apsorbovane doze i Q=20 je faktor kakvoće alfa zračenja. Potrebno je, izračunati apsorbovanu dozu u plućima za dato izlaganje radonovim potomcima. Postoji veći broj dozimetrijskih modela čiji je cilj odredjivanje odgovarajućeg konverzionog koeficijenta D/E. Za bronhijalni deo pluća koristi se konverzioni koeficijenat D_b/E=0,31 mGym^3/(Js)=(=4 mGy/WLM), a za pulmatorni deo pluća D =0,011 Gym^3 /(Js)= (=0,15 mGy/WLM) [67]. Ovi konverzioni faktori dovode do faktora apsolutnog rizika od 0,07m^3/(Js), (odnosno 0,9x10^{-4} /WLM) što se odlično slaže sa vrednošću dobivenom ekstrapolacijom rezultata dobivenih iz epidemioloških studija kod rudara.

U sadašnjem trenutku srednja učestanost plućnog kancera u industrijski razvijenim zemljama je od 2 do 6% u odnosu na ukupnu smrtnost. Pri tome je ta učestanost vrlo različita za pušače i nepušače; za pušače je 10%, a za nepušače 1%. Jedan deo tih plućnih kancera je izazvan radonom i njegovim potomcima. Ako se uzme srednja vrednost koncentracije radonovih potomaka u atmosferi zatvorenih prostorija od 15 Bq/m (EEC) može se izračunati da je oko 5 % svih plućnih kancera povezano sa radonovim potomcima.

REFERENCE

1. Health Physics Vol 45, No 2, Special Issue on Indoor Radon, 1983.
2. Radiation Protection Dosimetry, Vol 7, N0 1-4 Proceed. of an Intern Symp. "Indoor exposure to Natural Radiation and Associated Risk Assessment", Anacapry 1983, Nuclear Technology Publushing, 1984
3. United Nations Scientific Committee On the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and Effects of Ionizing radiation, New York 1977
4. International Commission on Radiological Protection, publication 39, Pergamon Press 1983.
5. Sinaeve J. Clement G., O Riordan M., The emergance of natural radiation, str 15. ibid RPD 84
6. Krstić J. Detekcija i Energetska Rezolucija Alfa čestica u Celuloznim Nitratima, magist. rad. Institut za FIziku Beograd 1981
7. Vhi-Yu King, Gas Geochemistry Applied to Earthqake Prediction: An Overview. Workshop on Radon Monitoring in Radioprotection, Environmental Radioactivity and Earth Sciences, Trst, Italija 1989
8. Swedjemark G.A., The Equilibrium Factor F,str.453 ibid HP 1983
9. Stoute J.R.D., Groen G.C.H., de Grote T.J.H., Characterisation of Indoor Atmospheres, str 159, ibid RPD 84
10. Chamberlain A.C., Dyson E.D., The Dose to the Trachea and Bronchi from the Decay Products of Radon and Thoron. Br Journal of Radiology 29:317, 1956

11. Knutson E.O., George A.C., Frey J.J., Koh B.R., Radon Daughter plateout - II. Prediction model, str 445 Health Physics 45, 1983
12. Papastefanou C., Bondiettti E.A., The Unattached Fraction of Radon Daughters In Ambient Aerosols, 1st Mediterranean Congress on Rad. Protection
13. Porstendorfer J., Behaviour of Radon Daughter Products in Indoor Air, str 107, ibid RPD 84
14. Mercer T.T. The Effect of Particle Size on the Escape of Recoiling RaB Atoms from Particulate Surfaces, Health Physics 31, str 173, 1976
15. George A.C., Knutson E.O., K.W.Tu. Radon Daughter Plateout -I Measurements, str 439 ibid HP83
16. Jacoby W., Activity and Potential Alpha Energy of Rn-222 and Rn-220 Daughters in Different Air Atmospheres, Health Physics 22, str 441 1962
17. Leko M., Čerbakov A., Joksimović N.H. Lekovite Vode, Beograd 1922
18. Jovanović D., O Radioaktivnim Banjama u Jugoslaviji, Beograd 1936
19. Međedović M., Panov D., Vukotić M., Raičević P, Hajduković D. Kontaminacija Radijumom, Radonom i Njihovim Potomcima u Rudnicima Urana., II Simp JDZZ, Mostar 1965
20. Radovanović R., Izloženost Zračenju i Kontaminacija ljudi pri Balneološkoj terapiji, mag. rad, Farm-Biok. Fak.Sveučilište u Zagrebu, 1971
21. Hajduković D. Studija o Radioaktivnoj Kontaminaciji Radonom i Njegovim Kratkoživećim Potomcima Radnika u Rudniku Urana, mag.rad Sveučilište u Zagrebu, 1971
22. Hajduković D., Izučavanje Kontaminacije Radonom i Potomcimau Podzemnoj Eksploataciji Metaličnih Ruda. Dokt. Disert.Rudarsko Geol. Fak. Univerzitet u Beogradu, 1976
23. Nero A.V., Indoor Radiation Exposure From Rn-222 and Its Daughters, A View of the Issue, str 227, ibid HP 83
24. Gesell T. Background Atmospheric Rn-222 Concentration Outdoors and Indoors: A Review, str 289, ibid HP 83
25. Castren O., Winqvist I., Makelainen I., Voutilainen A. Radon Measurements in Finish Houses. str 333, ibid RPD 84
26. Swedjemark G.A., Mjones L. Radon and Radon Daughters Concentration in Swedish Houses, str 341, ibid RPD 84
27. Sciocheti G., Scacco F., Baldasini P.G., Monte L., Saro R. Indoor Measurement of Airborne Radioactivity in Italy. str 347, ibid RPD 84
28. Wicke A. Exposure of the Population to Radon Daughters, ibid RPD 84
29. Rannou A., Posny F., Guezengar J.M., MAdelmont C. Study of Natural Irradiation in Dwelling Places in France, str 371 ibid RPD 84
30. Steinhausler F., Hofmann W., Pohl E., Pohl-Ruling J. Radiation Exposure of the Respiratory Tracts and Associated Carcinogenic Risk due to Inhaled Radon Daughters str 45, ibid RPD 84
31. Clif K.D., Wrixon A.D., Green B.M.R., Miles J.C.H. Radon Daughters Exposure in UK. str 323, ibid HP 83 ibid HP83
32. Muhsin Koksal E., Nilgin Celebi, Berna Ozcinar. Indoor 222Rn concentration in Istambul Houses, Health Physics 56:str 87; 1993

33. Field W.R., Kross C.B., LeAnn M.B Weih., La Verle J Vust Howard F. Nicholson, Factors Associated With Elevated 222Rn Levels in Iowa, Health Physics, 65:str 178; 1993
34. Cristofides S., Cristodoulides G., Airborne 222Rn Concentration in Cyprot Houses, Health Physics, 64:str 329; 1993
35. Nero A.V., Nazaroff W.W. Characterizing the Source of Radon Indoors, str 23 ibid RPD 84
36. Ingersoll J.G. A Survey of Radionuclide Contents and Radon Emanation Rates in Building Materials Used in US, str 363 ibid HP 83
37. Marković P., Nikezić D., Ristić Dj., Diferencijalna Cena Korist Analiza za Slučaj Gradjeviskih Materijala sa Povišenom Prirodnom Koncentracijom Radionuklida, XI Simp. JDZZ, str 11, Portorož 1981
38. Akerblom G,, Andersson P., Clavensjo B. Soil Gas Radon- A Source for Indoor Radon Daughters, str 49, ibid RPD 84
39. Zapalac G. A Time- Dependent Method for Characterizing the Diffusion of Rn-222 in Concrete, str 377 ibid HP 83
40. Swedjemark G.A., Buildings with Enhanced Radioactivity in Sweden, Proceed. II Special Simp on natural Radiation Environment, Bombay 1981
41. Ruzer L.S. Radioaktivni Aerosoli, Komitet Standartov, mer i izmeriteljnii priborov, Moskva 1968
42. Ivanov V.I. Kurs Dosimetrii, Atomizdat, Moskva 1977
43. Makelainen I., Calibration of Bare LR 115 Film for Radon Maesuremnets in Dwelings,str 195, ibid RPD 84
44. Liehu A.E., Makelainen I., Valkiainen M., Winqvist K., Calibration of Bare LR 115 and CR 39 for Radon and Comparative Maesurements in Indoor Air in FInland. Conf 11th SSNTD, Bristol 1981
45. Pfligersdorfer J., Hofmann W., Pohl E., Applicability of Nuclear Track Detectors to the Measurements of Environmental Levels of Radon and Decay Products, str 539, Conf. 11th SSNTD, Bristol 1981
46. Rannou A., Jeanmaire L., Tymen G., Mouden A., Naour E., Parmentier N., Renouard H., Use of Cellulose Nitrate as Radon Daughters Detectors for Indoor Radon Measurements, Nuclear Tracks and Radiation Measurements, 12, N01-6, 1986
47. Hertzman S., Samuelson C., The use of Open Track Films for Rn Measurements in Dwellings, Conf.11th SSNTD, Bristol1981
48. Jonssen J., Indoor Radon Gas and its Detection with Kodak Plastic film. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, 13,N01 str 85, 1987
49. Nakahara H., Kudo H., Akiba F., Murakami Y., Some basic studies on the Absolute Determination of Radon Concentration in the Air by a Cellulose Nitrate track Detector. Nuclear Instruments and Methods 171, str 171, 1980
50. J.C.H.Miles, E.J.Dew, A Passive Radon Gas Detectorfor Use in Homes. Proceed of the 11th Intern. Confer. on SSNTD, str 569, Bristol (1981)
51. B.Majborn,. Measurements of Radon in Dwellings With CR-39 Track Detectors. Nuclear Tracks and Radiation Meadurements, 12, 1-6, str. 763, 1986
52. Singh M., Singh N.P., Singh S., Virk H.S. Calibration of Radon Detectors, str 739, Nuclear Tracks and Radiation Meadurements, 12, 1-6,

53. T.Domansky, A.Wojda, W.Chruscielewski A.Zorawski, Plate- out Effects in the Passive Detectors for Radon and its Daughters. Nucl. Tracks, 9. 1, str.1-14, (1984)
54. A.J.Khan, A.K.Varshney, R.Prasad, R.G.Tyagi, T.V.Ramachandran, Calibration of a CR 39 Plastic Track Detector for the Measurement of Radon and its Daughters in Dwellings. Nuclear Tracks Radiat.Meas. 17.str 497-502; (1990).
55. A.L.Frank, E.Benton, Properties of a Small Radin Diffusion Chamber with plastic Track Detector.Proceed of the 11 Intern. Confer. on SSNTD, p.531-534, Bristol (1981)
56. Nikezić D., Doprinos Eksperimentalnom i Teorijskom Proučavanju ozračenosti stanovništva i pojedinaca u zatvorenim prostorijama, Dokt. dis. Prirodno Matem. fak. Univerzitet u Kragujevcu 1990
57. Nikezić D., Marković P., Bek-Uzarov Dj. Calculating the Calibration Coefficient for Radon Measurements With the Bare LR 115 II Track Detector, Health Physics, 62 str 239, 1992
58. Nikezić D., Marković P., Bek-Uzarov Dj., Determination of Calibration Coefficient for Radon Measurements Using a Track Detector. Health Physics 64 str 628, 1993.
59. Nikezić D., Veli_ković D., Calibration Coefficient for Radon Measurements, with LR 115 II in Different types of Diffusion Chamber. Radiation Measurements, 23(II) 1994
60. Nikezić D., Determination of Detection Efficiency for Radon and Radon Daughters Measurements with CR 39 Track Detector-Monte Carlo Study. prihvaćeno za štampu u Nuclear Instruments and Methods
61. Fews A.P. Fully Automated Image Analysis of Alpha Particle And Proton Etched Tracks in CR 39. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, str 22, 12, N01-6, 1986
62. Cohen B., Cohen E., Theory and Practice of Radon Monitoring with Active Charcoal. str 501, ibid HP 83
63. Underhill D.W., Release of Crypton and Xenon from Spilled Charcoal, Nucl. Sci. Engn. 63 str 133, 1977
64. Underhill D.W., Basic Thery for the Diffusive Sampling of Radon. Health Physics 65: str 17; 1993
65. US Department of Energy. Workshop on Residental Radon Epidemiology, Pasadena 1989
66. Stidley C.A., J. Samet. A Review of Ecological Studies of Lung Cancer and Indoor Radon. Health Physics 65: 234; 1993
67. James A.C., Dosimetric Approach to Risk Assement for Indoor Exposure to Radon Daughters. str 353 ibid RPD 84
68. Comparative Dosimetry of Radon in Mines and Homes. National Accademy Press, Washington 1991.
69. Sevc J., Tomasek L., Kunz E., Placek V., Chmelevsky D. Barclay D., Keller M. A Survay of the Czechislovak follow-up of Lung Cancer Mortality in Uranium Miners, Health Physics 64: str 355; 1993

RADON-GLAVNI RADIOAKTIVNI KONTAMINANT ČOVEKOVE OKOLINE

Dragoslav Nikezić

Rezime

Ovaj rad se odnosi na radon i njegove kratkoživeće potomke. Oko polovine ukupne doze koje stanovništvo primi od svih izvora jonizujućeg zračenja potiče od radona, preciznije rečeno od njegovih kratkoživećih potomaka.

U drugoj glavi rada date su najvažnije osobine radona i fizičke veličine značajne u ovoj oblasti. U trećem poglavlju opisane su osobine i ponašanje radonovih potomaka u atmosferi zatvorenih prostorija. U četvrtoj glavi dat je pregled koncentracija radona na otvorenom prostoru i u zatvorenim prostorijama. U petoj glavi diskutovani su pojedini izvori radona u zatvorenim prostorijama, kao i drugi faktori koji utiču na njegovu koncentraciju u kućama.

U šestoj glavi date su merne tehnike za određivanje radona i potomaka. Opisana je aktivna metoda za merenje potomaka propuštanjem vazduha preko nepokretnog filtra; obrađena je dinamika raspada radonovih potomaka na filtru. Pasivne metode za merenje radona, zasnovane na trag detektorima i aktivnom uglju su opisane u drugom delu šeste glave. Kritički je razmatrano merenje radona trag detektorima. Data je teorija difuzije radona u aktivni ugalj.

U sedmoj glavi diskutovan je radijacioni rizik koji potiče od udisanja radona i njegovih potomaka.

Ključne reči: Radon, trag detektori, aktivni ugalj, radijacioni rizik.

RADON, THE MAIN RADIOACTIVE CONTAMINANT OF ENVIRONMENT

Dragoslav Nikezić

Abstract

This paper is related to the radon and its short lived progeny. According some estimation, approximately 50 % of the total human exposure is due to the radon and progeny.

In the second chapter of this paper relevant characteristics of radon and progeny, as well as some quantities important in this field, are given. Third chapter describes radon progeny behaviour in indoor and outdoor air.

In fourth and fifth chapters, sources of radon and other factors that influence on the outdoor radon concentracion are discussed.

The sixth chapter gives the measuring techniques for radon and progeny determination. One active and two passive methods were discribed. the critical analysis of radon measurements with track detectors is given.

Radiation risk due to the radon and its progeny is discussed in seventh chapter

Key words: Radon, tracks detectors, active charcoal and radiation risk.

12.

MERENJE KONCENTRACIJE RADONA U STAMBENIM OBJEKTIMA NA TERITORIJI BEOGRADA

I. Avramović, D. Veličković, S. Stanković,M. Kovačević,
Institut za nuklearne nauke "Vinča"
Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine "Zaštita"
Z. Žunić
Centar za medicinsku zaštitu

1. UVOD

U poslednjih nekoliko godina u svetu je značajna pažnja posvećena merenju koncentracije radona. Smatra se da radon spada u veoma značajne uzročnike kancera pluća. Godišnja doza koja potiče od radona iznosi 1.37 mSv odnosno 69% ukupne godišnje efektivne ekvivalentne doze od prirodnih izvora zračenja [1].

Radon spada u grupu plemenitih gasova pa veoma lako difunduje iz zemljišta, građevinskih materijala i vode. U toku života čovek provede oko dve trećine vremena u zatvorenom prostoru (ova vrednost može značajno da varira u zavisnosti od klime i vrste posla). Radon u zatvoreni prostor dospeva iz nekoliko izvora:

- difuzijom iz zemljišta na kome je sagrađen objekat,
- difuzijom iz građevinskih materijala,
- difuzijom iz vode koja se koristi u objektu i
- iz atmosfere putem ventilacionih otvora.

Na koncentraciju radona u zatvorenim prostorijama utiče veoma mnogo faktora od kojih su najvažniji upotrebljeni građevinski materijal, klimatski uslovi, sastav tla na kome je sagrađen objekat i ventilacija.

Radon je radioaktivni gas pa se zbog te činjenice i govori o njegovoj štetnosti po zdravlje stanovništva. Emisijom α-čestice radon prelazi u svoje kratkoživeće i dugoživeće potomke koji su takođe α i β emiteri. Izotopi radona su [2]:

- ^{222}Rn sa periodom poluraspada od 3.84 dana čiji su potomci ^{218}Po ($T_{1/2}$=3.05 min), ^{214}Pb ($T_{1/2}$=26.8 min) i ^{214}Bi ($T_{1/2}$=19.7 min),

- ^{220}Rn sa periodom poluraspada od 55.6 s čiji su potomci ^{212}Pb ($T_{1/2}$=10.6h) ^{212}Bi ($T_{1/2}$=60.6 min) i

- ^{219}Rn sa periodom poluraspada od 3.9 s koga u prirodi ima veoma malo zbog malog sadržaja ^{235}U čiji je on potomak.

U procesu inhalacije značajne količine radona i njegovih potomaka ostaju u plućima. α i β raspadom stvara se izotop ^{210}Pb čiji je period poluraspada 22.3 godine za koga se može reći da trajno ostaje u plućima.

Eliminacija radona iz postojećih objekta vrši se provetravanjem odnosno ubacivanjem svežeg vazduha. Kod objekata koje tek treba graditi ili su u izgradnji treba izvršiti prethodna merenja koncentracije radona u zemljištu i izvršiti kontrolu građevinskog materijala.

Prema *Preporuci ICRP-39* [4] dozvoljene koncentracije radona za zatvoreni prostor su:

- 200 Bq/m^3 za nove zgrade i
- 400 Bq/m^3 za stare zgrade.

2. REZULTATI MERENJA.

Merenje koncentracije radona u stambenim objektima u Beogradu obavljeno je integralnom metodom pomoću difuzionih komora sa čvrstim trag detektorima CR-39 na bazi polikarbonata i LR-115 tip II na bazi nitroceluloze. Opis difuzione komore i način obrade detektora dati su ranije [4][5]. Period izlaganja detektora iznosio je 2 - 3 meseca.

Merenjima su obuhvaćene stambene zgrade - višespratnice i porodične kuće u Beogradu. Ukupno je pregledano 124 detektora u 29 stanova u višespratnicama i 22 porodične kuće.

U Tabeli 1. date su srednje vrednosti koncentracije radona po spratovima u stambenim zgradama i porodičnim kućama.

Tabela 1. Srednje koncentracije radona po spratovima.

vrsta objekta	sprat	Koncentracija Rn [Bq/m^3]
višespratnica	podrum	284.6
	prizemlje	36.4
	I sprat	36.9
	II sprat	31.8
	III sprat	22.5
	IV sprat	24.3
	V sprat i viši	32.1
porodične kuće	podrum	103.3
	stan	84.1

ZAKLJUČAK

Najviše koncentracije radona za porodične kuće kao i za višespratnice dobijene su u podrumskim prostorijama što ukazuje na to da je glavni izvor radona zemljište na kome je sagrađen objekat. Nešto više koncentracije radona u stambenom delu porodičnih kuća u odnosu na stanove u višespratnicama mogu se objasniti načinom i kvalitetom gradnje (kvalitetnija izolacija vrata i prozora što bitno utiče na provetravanje) kao i vrstom grejanja.

Izmerene koncentracije radona u višespratnicama su ispod dozvoljenih vrednosti datih u uvodu teksta. U porodičnim kućama su izmerene koncentracije radona uglavnom niske izuzev u nekoliko objekata gde su izmerene povišene vrednosti. Karakteristično za ove kuće je da u njima žive starije osobe lošijih materijalnih mogućnosti. U tim kućama je loše izvedena izolacija poda pa radon lako difunduje iz tla. Pored toga u zimskom periodu je provetravanje prostorija bilo veoma loše zbog uštede u energiji što značajno utiče na povećanje koncentracije radona.

Da bi se mogao proceniti uticaj radona na zdravlje stanovništva neophodno je izvršiti sistematsko merenje koje bi obuhvatilo veće teritorije. Merenja koja su prikazana u ovom radu su nedovoljna i mogu poslužiti samo kao osnov za dalja istraživanja u ovoj oblasti

LITERATURA

[1] H. A. Khan and all (1993), *"Passsive dosimetry of radon and its daugters using solid state nuclear tracks detectors (SSNTD)"*, Radiation Protection Dosimetry, Vol. 46 No 3, pp149-170.

[2] K. A. Al-Hussan, *"Indoor and Outdoor Radon Progeny in Riyadh City Dwellings"*, Radiation Protection Dosimetry, Vol. 46, No. 3, pp 207-209 (1993)

[3] *Preporuka ICRP-39*, Pergamon Press, 1983. god.

[4] I. Avramović, D. Veličković, Z. žunić, S. Stanković, M. Kovačević, *"Merenje koncentracije radona u osnovnim školama u Beogradu"*, XXXVIII Konferencija za ETRAN, Niš, 6-10. jun 1994.

[5] D. Veličković, R. Benderać, M. Kovačević, *"Odredivanje vrednosti kalibracionog koeficijenta za radonske detektore"*, XXXVII Konferencija za ETAN, Beograd, 20-23.11.1993. god, Zbornik radova, str. 165.

MERENJE KONCENTRACIJE RADONA U STAMBENIM OBJEKTIMA NA TERITORIJI BEOGRADA

Rezime:

U radu su dati rezultati merenja koncentracije radona u stambenim prostorijama na teritoriji Beograda. Merenje je vršeno integralnom metodom pomoću difuzionih komora sa čvrstim trag detektorima LR-115 tip II na bazi nitroceluloze i CR-39 na bazi polikarbonata. Izmerene srednje koncentracije radona u stanovima i stambenom delu porodičnih kuća su niže od dozvoljenih vrednosti. U podrumskim prostorijama u višespratnicama srednja vrednost koncentracije radona iznosi 284.6 Bq/m^3 dok u podrumima porodičnih kuća iznosi 103.3 Bq/m^3.

Ključne reči: radon, merenje koncentracije, integralna metoda, stambene prostorije.

RADON CONCENTRATION MEASUREMENT IN DWELLINGS IN BELGRADE

I. Avramović, D. Veličković, S. Stanković,
M. Kovačević and Z. Žunić

Abstract:

The results of the radon concentration measurements in dwellings in Belgrade were shown in this paper. The measurements were done using long term method with diffusion cups equipped with solid state nuclear track detector LR-115-II or CR-39.

Key words: radon, concentration measurement, long term measurement, dwellings.

13.

MERENJE KONCENTRACIJE RADONA U STANOVIMA PRIŠTINE, KOSOVO POLJA I OKOLNIH MESTA

B. Jakupi, P. Vasić, F. Adrović i D. Milić
Prirodnomatematički fakultet Priština

1. UVOD

Radon je radioaktivni gas koji nastaje direktno iz procesa raspada radijuma - 226. Kao gas u izvesnim količinama je uvek prisutan u atmosferskom vazduhu. Njegovo prisustvo u vazduhu je različitog porekla ali se smatra da najvećim delom dolazi iz dubine Zemlje. Zbog velikog koeficijenta difuzije i relativno velikog vremena poluraspada od 3,82 dana, difunduje kroz gornje slojeve Zemlje i sa dubine od nekoliko stotina metara. Ovakav prodor radona je intenzivniji pri povećanoj seizmičkoj aktivnosti Zemlje. Koncentracija radona u vazduhu životne sredine zavisi od niza geoloških i klimatskih faktora i varira od mesta do mesta [1]. Vrednost koncentracije radona u urbanim sredinama zavisi i od niza gradjevinskih faktora (način gradnje, gradjevinski materijal i dr.), pa je različita za razne gradjevinske objekte.

2. METODE MERENJA

Merenje koncentracije radona vršeno je pomoću metode čvrstih detektora tragova naelektrisanih čestica. Ova metoda merenja zasniva se na merenju gustine tragova α - čestica iz raspada radona (broj tragova na jedinicu površine detektora tragova). Koncentracija radona se preko gustine tragova odredjuje po formuli

$$C=\frac{\rho-\rho_o}{K\tau}[Bqm^{-3}]$$

gde su

r - gustina tragova [trag cm^{-2}]

r_o- gustina tragova fona [trag cm^{-2}]

K - odziv dozimetra [trag cm^{-3}/kBq m^{-3} h], tj. koeficijent čijavrednost zavisi od karakteristika dozimetra i detektora tragova α čestica

t - vreme eksponiranja detektora

Merenja smo vršili sa dozimetrima IJS iz Ljubljane u kojima je bio postavljen plastični detektor tragova tipa CR - 39. Tragove α - čestica na detektoru tragova izazivali smo metodom hemijskog nagrizanja u 6,25 N 25 % ratsvoru NaOH, pri temperaturi od 70 °C u trajanju od 2 do 3 sata. Na taj način tragovi α - čestica na detektoru tragova se učine vidljivim u optičkom mikroskopu pomošu koga se zatim meri njihova gustina sa odredjenim uvećanjem. Pri navedenom režimu izazivanja tragova, vrednost koeficijenta K korišćenog dozimetra u našim merenjima je iznosila 6,19 Tr cm^{-2}/kBq m^{-3} h [2] .

Grešku merenja koncentracije radona (s) ocenili smo po formuli

$$C=\frac{\rho-\rho_o}{K\tau}[Bqm^{-3}]$$

gde su

C - izmerena koncentracija radona [Bq m^{-3}]

s_r- statistička greška

$$\sigma_\rho=\frac{1}{\sqrt{N}}+0.04$$

N - broj izmerenih tragova

s_K- greška u odzivu dozimetra

s_K = 0.18 (za CR - 39)

s_t- greška zbog transporta dozimetra

$$\sigma_\tau=\frac{vremetrajanjatransporta}{vremetrajanjaekspozicije}$$

Pošto su se naši detektori nalazili u aluminiziranoj foliji, grešku usled transporta dozimetra nismo uzeli u obzir, jer aluminizirana folija ne propušta radon.

3. REZULTATI MERENJA I ANALIZA RADA

Rezultati merenja su prikazani u tabelama 1, 2 i 3. Analizu rezultata vršili smo na osnovu podatatka koje je objavila Američka agencija za zaštitu čovekove okoline (EPA), a prema kojima je srednja godišnja koncentracija radona izmerena u stanovima u Njemačkoj 40 Bq/m^3. Kada se ta vrednost uzme u obzir, onda se može zaključiti da je izmerena koncentracija radona u stanovima Prištine u normalnim granicama. Medjutim, koncentracija radona u stanovima Gračanice i Kosovo Polja je znatno povećana i varira izmedju 150 i 750 Bq/m^3.

Predpostavljamo de je osnovni uzrok povešanoj koncentraciji radona u stanovima Gračanice neposredna blizina rudnika Kišnica i Ajvalija. To su rudnici olovne i cinkane rude, sa jamskom eksploatacijom. U tom procesu eksploatacije rude, stvaraju se u blizini rudnika ogromne deponije jalovine i otpadnih materijala, koje se odlažu u neposrednoj blizini Gračanice. Ovu predpostavku ćemo potvrditi ili opovrgnuti daljim istraživanjima radona u pomenutim rudnicima. Uzrok povećanoj koncentraciji radona u stanovima Kosovo Polja mogao bi biti kosovski lignit. Ugalj kao i drugi prirodni materijali sadrže i uran, kao i njegove radioaktivne potomke. Nakon sagorevanja u termoelektranama smanjuje se zapremina uglja na šljaku i pepeo, što neminovno dolazi i do koncentrisanja radionuklida. Stanovi u kojima je vršeno merenje koncentracije radona nalaze se u blizini površinskih kopova kosovskog lignita i odlagališta pepela i ćljake iz termoelektrana Obilić, Kada se uzmu u obzir i velika količina lebdećeg pepela i dimnih gasova koje iz svojih dimnjaka izbacuju termoelektrane u Obiliću, te da su u Obiliću i bližoj okolini izgradjeni i veliki industrijski objekti na bazi korišćenja uglja, osnovano se može predpostaviti da je uzrok povećanoj koncentraciji radona u stanovima Kosovo Polja kosovski lignit.

Kako radon i njegovi produkti raspada daju najveši doprinos radijacionoj opasnosti od svih prirodnih izvora zračenja, da bi se izbegle ili barem ublažile posledice povećane koncentracije radona, treba preduzeti sve mere da bi se ona smanjila na najmanju moguću vrednost. Prema preporukama američke agencije za zaštitu životne sredine treba nastojati da se koncentracija radona svede na vrednost ispod 150 Bq/m^3 ako je moguće. U slučajevima kada je koncentracija radona u stanovima u granicama od 750 do 7500 Bq/m^3, obaveštavaju se nadležni organi da se preduzmu sve mere za zaštitu od radioaktivnog zračenja.

Tabela 1. Koncentracija radona u stanovima Prištine (Bq/m^3)

Det.br.	t(D)	N	r(Tr/cm^2)	C(Bq/m^3)
1.	63	102	683	73 ± 16
2.	61	70	468	52 ± 12
3.	59	62	412	47 ± 11
4.	62	75	506	55 ± 13
5.	62	38	257	28 ± 7
6.	62	59	396	43 ± 10
7.	62	63	423	46 ± 11
8.	63	47	318	34 ± 8
9.	67	92	617	62 ± 13
10.	62	130	870	93 ± 20
11.	67	104	694	70 ± 16
12.	60	40	267	30 ± 8
13.	60	33	233	25 ± 7
14.	61	32	213	24 ± 6
15.	60	159	1060	119 ± 26
16.	128	239	1590	84 ± 17
17.	128	34	228	12 ± 3
18.	65	98	653	68 ± 15
19.	65	50	336	35 ± 9

Tabela 2. Koncentracija radona u stanovima Kosovo Polja (Bq/m^3)

Det. br.	t(D)	N	r(Tr/m^2)	C(Bq/m^3)
1.	62	196	1307	142 ± 30
2.	63	223	1486	159 ± 33
3.	64	631	4212	443 ± 87
4.	64	289	1930	203 ± 41
5.	64	219	1462	154 ± 32
6.	71	438	3186	302 ± 60
7.	71	793	5286	501 ± 97
8.	71	694	4626	438 ± 86

Tabela 3. Koncentracija radona u stanovima Gračanice, Gušterice, Dobrotina i Livadje (Bq/m^3)

Det. br.	t(D)	N	r(Tr/cm^2)	C(Bq/m^3)
Gračanica				
1.	30	102	681	153 ± 34
2.	63	376	2508	268 ± 54
3.	30	161	1096	246 ± 52
4.	79	368	2453	209 ± 42
5.	63	629	4193	448 ± 88
6.	30	226	1506	338 ± 70
7.	79	472	3145	268 ± 53
8.	63	662	4417	472 ± 92
9.	63	588	3921	419 ± 83
10.	63	220	1469	157 ± 33
11.	63	265	1769	189 ± 39
12.	63	214	1432	153 ± 32
Gušterica				
1.	73	294	1960	180 ± 37
2.	73	123	820	85 ± 18
3.	73	275	1833	169 ± 34
4.	73	185	1233	114 ± 24
Dobrotin				
1.	73	615	4100	378 ± 74
2.	73	708	4720	435 ± 85
3.	73	523	3486	321 ± 63
Livadje				
1.	105	1527	10180	652 ± 126
2.	105	613	4086	261 ± 51

U tablicama 1, 2 i 3 je: t - vreme eksponiranja detektora izraženo u danima, N - broj izmerenih tragova, r - gustina tragova (broj tragova po cm^2), C - koncentracija radona izražena u Bekerelima po m^3.

LITERATURA

1. P. Olko, P. R. Waligorski: "*On model-based assessment of risik from radon daighters the microdosimetric approach*", Nukleonika 38. No. 4p. 5-18 1993.

2. T. Šutej, R. Ilić, M. Humar: "*Meritve koncentracije radona v površinski plasti zemlje*", Zbornik radova 3. Jugoslovenski simpozijum o primeni fizike, Beograd, 1985. IV, 1-4.

MERENJE KONCENTRACIJE RADONA U STANOVIMA PRIŠTINE, KOSOVO POLJA I OKOLNIH MESTA

B. Jakupi, P. Vasić, F. Adrović i D. Milić

Rezime

Metodom čvrstih detektora naelektrisanih čestica merena je koncentracija radona u stanovima na teritoriji Prištine i njene bliže okoline. Koncentracija radona u stanovima Prištine je ispod 150 Bq/m^3, dok u stanovima nekih naseljenih mesta u njenoj bližoj okolini ima vrednost izmedju 150 Bq/m^3 i 750 Bq/m^3.

Ključne reči: koncentracija radona, trag detektor

MEASUREMENT THE CONCENTRATION OF RADON IN THE FLATS OF PRISTINA, KOSOVO POLJE AND THEIR SURROUNDINGS

B. Jakupi, P. Vasić, F. Adrović, and D. Mitić

Abstract

By using the solid state track detectors is made the measurements of the radon concentration in the flats on the Pristina area and its closed surroundings. The concentration of the radon was under 150 Bq/m^3 but in the same places its amounts is between 150 Bq/m^3 and 750 Bq/m^3.

Key words: radon measurement, track detector

14.

ODREĐIVANjE EER KRATKOŽIVUĆIH ALFA POTOMAKA ^{222}Rn NA OTVORENOM PROSTORU

Dragutin Fortuna
ŠC ABHO, Kruševac

Milan Orlić, Dragan Vujasinović
Vojnotehnički institut VJ, Beograd, Katanićeva 15

1. UVOD

Prosečna godišnja ekvivalentna doza koju čovek primi od svih prirodnih izvora zračenja iznosi oko 2 mSv. Od toga polovina otpada na radon i njegove potomke. Najveći deo radona odnosi se na ^{222}Rn (nastaje u lancu raspada ^{238}U), a nešto manji na ^{220}Rn (toron - nastaje u lancu raspada ^{232}Th). Radon je gas sa kratkim periodom poluraspada. Njegovi kratkoživeći potomci su i alfa emiteri, pa mogu da predstavljaju značajnu opasnost pri inhalaciji.

S obzirom da je radon gas, jednostavnim provetravanjem prostorija može se znatno smanjiti njegov udeo u ukupnom prirodnom ozračenju čoveka. Da bi se to postiglo potrebno je raspolagati kvalitetnim metodama merenja [1]. U ovom radu prikazan je razvoj uređaja za brzo merenje inhalirane potencijalne energije kratkoživećih potomaka radona, a time i ekvivalentne ravnotežne koncentracije radona (EER). Detaljniji opis metode dat je u literaturi [2,3]. Metoda se praktično svodi na:

u vremenu od 5 min vrši se filtracija vazduha (na otvorenom ili u zatvorenoj prostoriji)
detektorom alfa čestica izmeri se ukupan broj alfa čestica emitovanih iz filtera od sedmog do desetog minuta posle filtracije

ovom broju srazmerna je inhalirana potencijalna energija alfa čestica kratkoživećih potomaka radona
na osnovu ekvivalentnog odnosa između inhalirane potencijalne energije i EER, određuje se EER ^{222}Rn.

U ovom radu daje se opis realizovane merne opreme i rezultati merenja na otvorenom prostoru na lokaciji Kruševac.

2. PRIPREMA UZORAKA ZA MERENJE

Uzorci radioaktivnih aerosola - kratkoživećih potomaka ^{222}Rn pripremani su metodom filtracije, pomoću uređaja za merenje radioaktivnih aerosola ACA-5 [5]. Sistem za filtraciju je prethodno atestiran i podešen za protok vazduha kroz filter papir od 15 $m^3/h \pm 1\%$. Korišćen je Snajderov filter papir (plava traka) sa efikasnošću filtracije atmosferskih aerosola od 0.8. Ovaj papir je izrađen od čiste pamučne celuloze sa 0.1% neorganskih primesa. Uzorci su kružnog oblika prečnika 35 ± 0.05 mm. Površinska masa filter papira iznosi 7.1 ± 0.1 mg/cm^2, a prosečna masa atmosferskih aerosola, u ukupnoj zapremini filter papira posle filtracije u trajanju od 300 s, iznosi oko 2 mg. Ovo je u dobroj saglasnosti sa literaturnim podacima [6].

Velika brzina protoka vazduha kroz malu površinu filter papira uslovljava ravnomernu raspodelu aerosola po celoj zapremini uzorka. Ovaj uzorak se može smatrati debeloslojnim jer je njegova debljina veća od dometa alfa čestica.

Atestiranje sistema za filtraciju obavljeno je u HGI "Miloje Zakić"-Kruševac.

3. KOMPLET ZA MERENJE

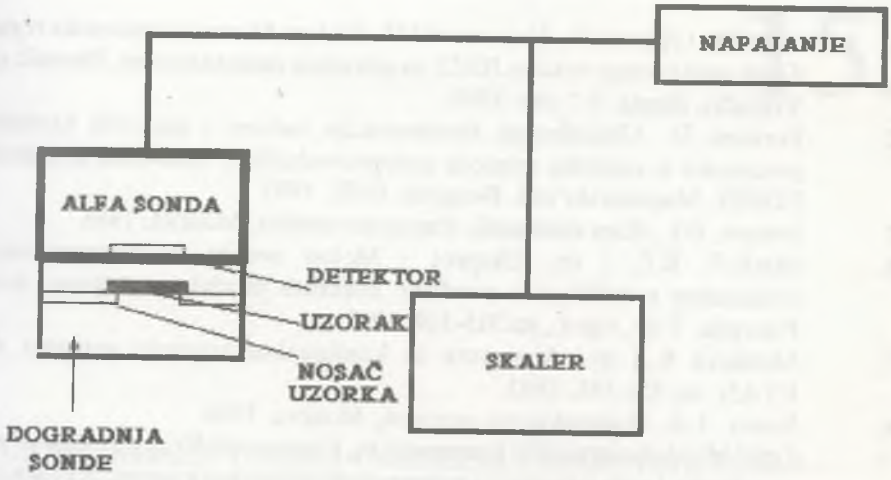
Merni komplet za brojanje alfa čestica iz pripremljenog uzorka šematski je prikazan na slici 1. Osnovu ovog kompleta čini alfa sonda [7], gde se kao detektor koristi foto dioda FD80N (proizvodi IHTM-Beograd). Ovakva sonda ulazi u komplet Radiometrijske laboratorije LARA-20 (Proizvođač Vinča - Beograd).

Uz ovakvu alfa sondu izrađen je nastavak od tvrde neprovidne plastike koji se za sondu pričvršćuje pomoću navoja. Nastavak omogućuje postavljanje mernih uzoraka ili kalibracionih izvora u fiksnoj geometriji prema detektoru. Rastojanje uzorak (kalibracioni izvor) - detektor iznosi $5 \pm 0{,}05$ mm, uzimajući u obzir i debljinu aluminijumske folije za zaštitu detektora od svetlosti.

Od ukupne površine uzorka merena je samo aktivnost sa površine koju "vidi" detektor. Pokazalo se da je odziv detektora sa različitih površina uzorka približno konstantan u granicama $\pm 5\%$.

Komplet za merenje je sastavljen u vidu zatvorenog sistema da bi promene pritiska, temperature i vlažnosti vazduha u toku filtracije bile minimalne.

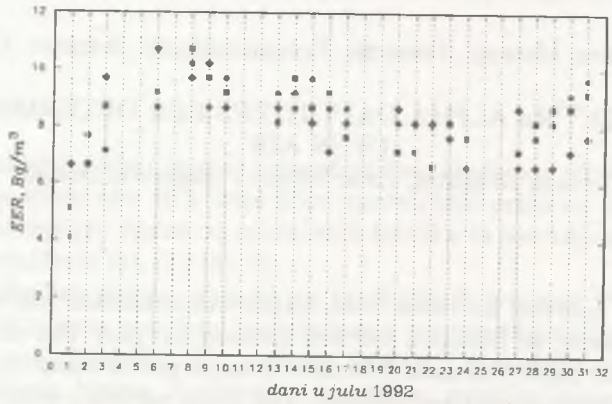
Kalibracija sistema obrađena je u magistarskom radu [2]. Procenjena greška merenja iznosi $\pm 40\%$ [2].



Slika 1. Šematski prikaz mernog kompleta

4. REZULTATI MERENJA

Uzorci vazduha uzimani su u Kruševcu. Usisno crevo nalazilo se na visini 1 m iznad tla i na udaljenosti 3 m od ivice zgrade. Merenjem ukupnog broja impulsa od 7. do 10. minuta posle filtracije radioaktivnih aerosola, određene su vrednosti inhalirane potencijalne energije alfa čestica kratkoživućih potomaka radona, a na osnovu njih i vrednosti EER radona. Rezultati merenja prikazani su na slici 2.



Slika 2. Rezultati merenja EER u Kruševcu.
Po tri merenja obavljana su dnevno u periodu 7,30 - 8,30 časova.

Dobijene vrednosti odgovaraju područjima sa umerenom klimom.

LITERATURA

1. Orlić M., Glišović D., Vujasinović D., Radon: Merenja i zakonska regulativa, Treće savetovanje sekcije JDZZ za prirodnu radioaktivnost, Zbornik radova, Vrnjačka Banja, 5-7 okt. 1990.
2. Fortuna D., Određivanje koncentracije radona i njegovih kratkoživećih potomaka u vazduhu pomoću poluprovodničkog detektora fotodiode tipa FD80N, Magistarski rad, Beograd, PMF, 1993.
3. Ivanov, B.I., Kurs dozimetii, Energoatomizdat, Moskva, 1988.
4. MarkoV K.P, i dr., Ekspres - Metod ocenki radiacionoy opasnosti, svjazannoy s naličiem v vozduhe dočernih produktov radona, Atomnaja Energija, T.12, vip.4., str.315-319, 1962.
5. Muždeka S. i dr., Aparatura za kontinualnu kontrolu aerosola ACA-2, ETAN, str.351-355, 1963.
6. Ruzer L.S., Radioaktivnie aerozoli, Moskva, 1968.
7. Orlić M., Vujasinović,D., Lazarević.,V., Drndarević,V., Alfa sonda za merenje površinske kontaminacije sa poluprovodničkim detektorom, XVI simpozijum JDZZ, Neum,28-31 maj 1991.

ODREĐIVANjE EER KRATKOŽIVUĆIH ALFA POTOMAKA ^{222}Rn NA OTVORENOM PROSTORU

Fortuna Dragutin, Orlic Milan, Vujasinovic Dragan

Rezime

U radu je dat prikaz aparature za brzo merenje koncentracije radona u vazduhu. Merni komplet je baziran na poluprovodničkom α detektoru. U radu su takođe dati rezultati merenja koncentracije radona u Kruševcu.

Ključne reči: Radon, Merenje, Filtracija, Poluprovodnički detektor, EER

SHORT LIVED ^{222}Rn ALPHA DAUGHTERS EER DETERMINATION IN OPEN AIR

Fortuna Dragutin, Orlic Milan, Vujasinovic Dragan

Abstract

The fast aparatus for radon concetration determination has been presented. It cosists of two parts: air filtration part and measuremet part. The air flow rate is 15 m^3/h. Sneider filter paper was used. The measurement part is based on semiconductor alpha detector (photo diode) and counter. The alpha particles number beatween 3. and 7. minute after filtration has been counted. This number is proportional to alpha particles energy inhaled, wich is proportional to radon EER. Measurements result at Krusevac location have been presented.

Key words: Radon, Measurement, Filtration, Semiconductor detector, EER

15.

EKSPERIMENTALNO ODREDJIVANJE FAKTORA ELEKTROSTATIČKOG SAKUPLJANJA RADONOVIH KRATKOŽIVEĆIH POTOMAKA PRIMENOM ELEKTRETA

Dragana Krstić, Dragoslav Nikezić
Prirodno Matematički fakultet, Kragujevac

Radoman Benderać
Institut Bezbednosti, Beograd

Đordje Bek Uzarov
Institut za Nuklearne Nauke-Vinča, Beograd

1. UVOD

Unutarkućni radon i njegovi potomci su izvor značajnog ozračivanja populacije; njihov doprinos iznosi oko 40% doze koju stanovništvo primi od svih ostalih izvora jonizujućeg zračenja [1]. Jedna od modernijih tehnika za merenje radona zasniva se na korišćenju elektreta [2], [3], [4], [5].

Raspadanjem radona stvaraju se kratkoživeći potomci ^{218}Po, ^{214}Pb i ^{214}Po (odnosno ^{214}Bi) koji nose pozitivno naelektrisanje neposredno nakon svog formiranja.

Efikasnost detekcije alfa zračenja radona i potomaka se može povećati upotebom elektreta. Naime, korišćenjem negativno naelektrisanog elektreta stvara se elektrostatičko polje, koje privlači pozitivno naelektrisane radonove potomke. Na taj način, radonovi potomci bivaju prikupljeni iz veće zapremine i "postavljeni" ispred detektora, čime se povećava efikasnost detekcije.

2. PROIZVODNJA ELEKTRETA I OPADANJE NAELEKTRISANJA ELEKTRETA U TOKU VREMENA

Pod elektretom se podrazumeva komad dielektrika koji poseduje kvazikonstantna električna naelektrisanja. Termin "kvazikonstantno" označava da je naelektrisanje elektreta konstantno u intervalu vremena u toku koga se posmatra i izučava elektret. Elektret predstavlja analogon permanentnog magneta u oblasti elektrostatike.

Elektret je proizveden od teflona debljine 1.5 mm i prečnika 3 cm termičkom metodom koja je opisana u radovima [6] i [7]. Za ovaj rad od interesa je negativno naelektrisan elektret, koji je pripreman na sledeći način: komad teflona je stavljen izmedju dve elektrode u obliku cilindra. Gornja elektroda je masivna da bi se obezbedio dobar kontakt i vezana za pozitivan pol izvora visokog napona. Donja elektroda je uzemljena, tako da se dobije negativno naelektrisan elektret. Takav "sendvič" je stavljen u peć na temperaturu od t=250 ^{0}C i uključen je napon od 1100 V. Polarizacija elektreta je trajala 2 časa, nakon čega je sistem hladjen sa još uključenim električnim poljem, do sobne temperature. Posle pripreme elektreti se čuvaju obloženi aluminijumskom folijom u plastičnim kutijama u trajanju od petnaestak dana da bi se izvršila stabilizacija naelektrisanja [6]. Nakon tog roka elektrete je moguće primenjivati u daljem eksperimentalnom radu. U našim uslovima proizvodnje elektreta, njegovo naelektrisanje se stabiliše posle petnaestak dana od dana proizvodnje elektreta. Nakon proizvodnje termoelektret se kratko spaja da bi se otklonila nestabilna naelektrisanja na njegovoj površini.

Naelektrisanje elektreta mereno je indukcionom metodom, pri čemu je korišćen balistički galvanometar. Detaljan opis tog metoda dali su brojni autori u radovima: [8], [9], [10] i drugi.

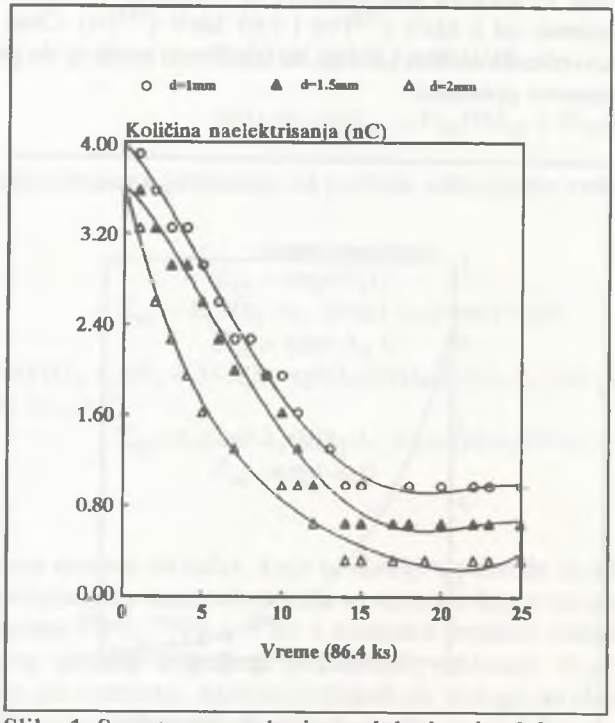
Naelektrisanje elektreta je izmereno odmah nakon formiranja, a zatim je skoro svakodnevno praćeno opadanje naelektrisanja za različite debljine elektreta i različite temperature primenjene u proizvodnji.

Naelektrisanje elektreta zavisi od debljine elektreta. Sa povećanjem debljine elektreta, njihovo naelektrisanje opada jer su izloženi slabijem polju.

Praćeno je opadanje naelektrisanja ukupno 9 elektreta u toku vremenskog perioda od 25 dana, skoro svakodnevno, i kasnije mereno u toku tri meseca. Na primer, na slici 1. grafički je prikazano opadanje naelektrisanja u toku vremena za temperaturu od 250 ^{0}C, za različite debljine elektreta. Nakon petnaest dana količina naelektrisanja elektreta opadne približno na četvrtinu od prvobitne vrednosti, tako da su stabilisane vrednosti naelektrisanja 0.975 nC, 0.65 nC i 0.325 nC za debljine 1 mm, 1.5 mm i 2 mm, respektivno.

Grafik opadanja naelektrisanja u toku vremena ima približno eksponencijalni oblik, dobijen fitovanjem eksperimentalnih tačaka. Sa porastom debljine elektreta, njihovo naelektrisanje sporije opada.

Bez obzira na početne vrednosti nalektrisanja, po isteku vremena stabilisanja elektreta, dobijaju se približno iste vrednosti za naelektrisanje. Može se zaključiti da je količina zaostalog naelektrisanja više karakteristika materijala koji se podvrgava polarizaciji u cilju dobijanja elektreta, a manje uslova proizvodnje.



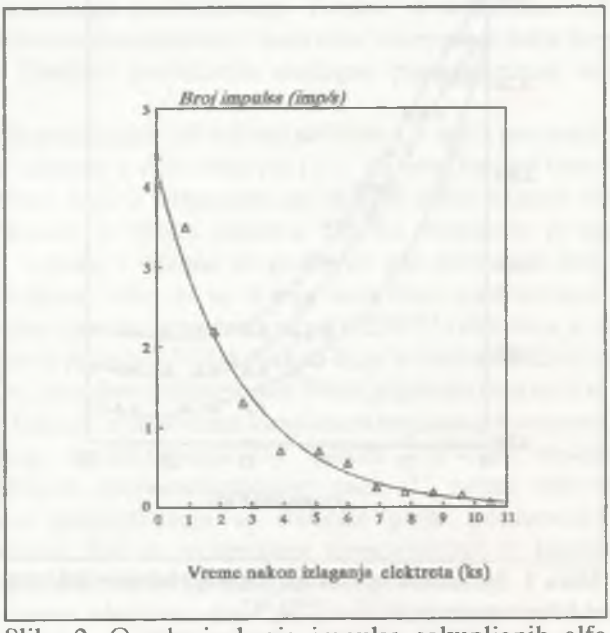
Slika 1. Spontano opadanje naelektrisanja elektreta u toku vremena za T = 250 °C

Za dalji eksperimentalni rad proizvedeni su elektreti debljine 1.5 mm, termičkom metodom, pod sledećim uslovima: na temperaturi od 250 ^{0}C i pod naponom od 1100 V. Opravdanost korišćene debljine teflona od 1.5 mm argumentovana je činjenicom da je naelektrisanje elektreta za ovu debljinu srednja vrednost naelektrisanja elektreta debljine 1 mm i 2 mm. Temperatura grejanja teflona od 250 ^{0C} i primenjeni napon od 1100 V omogućavaju da se dobiju najviše vrednosti naelektrisanja u našim uslovima proizvodnje elektreta.

3. ALFA SPEKTROSKOPSKA ANALIZA ZRAČENJA SA ELEKTRETA I MERENJE UKUPNE ALFA AKTIVNOSTI

Elektreti pripremljeni na prethodno opisan način su u ovom eksperimentu primenjivani kao otkriveni (bare) detektori. Oni su uneti u komoru sa visokom koncentracijom radona. Komora poseduje uredjaj zasnovan na sistemu duplih vrata kojima se nivo radona u njemu malo remeti unošenjem ili iznošenjem uzoraka koji se ozračuju. Koncentracija radona u komori je merena aktivnim ugljem i iznosila je 4150 Bq/m^{3}. Nakon isteka vremena od tri časa elektreti su izvadjeni iz komore i mereni na alfa spektrometru. Meren je spektar alfa zračenja sa elektreta i ukupna alfa

aktivnost na njemu. U spektru alfa zračenja sa elektreta se jasno vide pikovi koji odgovaraju energijama od 6 MeV (^{218}Po) i 7.69 MeV (^{214}Po). Ovaj eksperiment je nedvosmisleno potvrdio da elektret deluje na očekivani način tj. da privlači pozitivno naelektrisane radonove potomke.



Slika 2. Opadanje broja impulsa sakupljenih alfa emitera na elektretu

Pored spektrometrijske analize merena je i ukupna alfa aktivnost sa elektreta. Korišćena je α-scintilaciona sonda. Opadanje broja impulsa sa vremenom dato je na slici 2. Iz krive opadanja broja impulsa moguće je odrediti broj atoma radonovih potomaka u trenutku prekida kolekcije. Za to je primenjivana metoda tri tačke [11] koja se ukratko sastoji u sledećem.

Neka je sa N_1, N_2 i N_3 označen broj atoma ^{218}Po, ^{214}Pb i ^{214}Bi na elektretu u trenutku t nakon prekida izlaganja. Promena njihovog broja na elektretu nakon prestanka sakupljanja iz atmosfere je data sledećim diferencijalnim jednačinama:

$$\begin{aligned} dN_1/dt &= -\lambda_1 N_1 \\ dN_2/dt &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ dN_3/dt &= \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \end{aligned} \qquad (1)$$

gde su λ_i konstante raspada odgovarajućih izotopa. U početnom trenutku t=0, broj atoma je iznosio $N_1=N_{10}$, $N_2=N_{20}$ i $N_3=N_{30}$. Rešenje gornjeg sistema diferencijalnih jednačina je:

$$N_1(t)=N_{10}(t)Z_{a1}$$

$$N_2(t)=N_{10}(t)Z_{b1} + N_{20}(t)Z_{b2} \qquad (2)$$

$$N(t)=N_{10}(t)Z_{c1} + N_{20}(t)Z_{c2} + N_{30}(t)Z_{c3}$$

gde su Z_i funkcije vremena proteklog od prekida sakupljanja radonovih potomaka na elektretu:

$$Z_{a1} = \exp(-\lambda_1 t)$$
$$Z_{b1} = \lambda_1 /(\lambda_1 - \lambda_2)(\exp(-\lambda_1 t)-\exp(-\lambda_2 t))$$
$$Z_{b2} = \exp(-\lambda_2 t)$$
$$Z_{c1}=\lambda\lambda_2\exp(-\lambda_1 t)/((\lambda_2-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_1))-\lambda_1\lambda_2\exp(-\lambda_2 t)/((\lambda_2-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_2))+\lambda_1\lambda_2\exp(-\lambda_3 t)/((\lambda_3 -\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_2)) \qquad (3)$$
$$Z_{c2} =\lambda_2\exp(-\lambda_2 t)/(\lambda_3-\lambda_2)-\lambda_2\exp(-\lambda_3 t)/(\lambda_3-\lambda_2)$$
$$Z_{c3} =\exp(-\lambda_3 t)$$

Primenom metode tri tačke, koja se sastoji u tome da se alfa aktivnost meri u tri uzastopna vremenska intervala dobija se sistem u kome su nepoznate N_{10}, N_{20} i N_{30}, tj broj atoma ^{218}Po, ^{214}Pb i ^{214}Bi u trenutku prekida sakupljanja radonovih potomaka. Iz tog sistema odredjene su sledeće vrednosti: N_{10}=232, N_{20}=2822 i N_{30}=20910 atoma na elektretu. Aktivnosti pojedinih izotopa na elektretu u trenutku prekida kolekcije, odredjene ovom metodom iznose A_1=0.9 Bq, A_2=1.2 Bq i A_3=12 Bq. Uočljivo je da je za red veličine veća aktivnost ^{214}Bi od ^{214}Pb, a da je aktivnost ^{214}Pb za oko 40 % veća od ^{218}Po.

Nagomilavanje broja atoma N_1',N_2' i N_3' (aktivnosti) radonovih potomaka na elektretu u toku kolekcije se može opisati sledećim skupom diferencijalnih jednačina:

$$dN_1'/dt =C_1w_1-\lambda_1N_1'$$

$$dN_2'/dt =C_2w_2+\lambda_1N_1' -\lambda_2N_2' \qquad (4)$$

$$dN_3'/dt =C_3w_3+\lambda_2N_2' -\lambda_3N_3'$$

gde su C_i, koncentracije atoma u atmosferi iz koje je izvršeno sakupljanje; w_1, w_2 i w_3 je broj sakupljenih atoma odgovarajućeg potomka u jedinici vremena po jediničnoj koncentraciji u atmosferi. Veličina w_i je nazvana faktor elektrostatičkog sakupljanja elektreta ili faktor elektrostatičke kolekcije, koji predstavlja broj sakupljenih atoma u jedinici vremena za koncentraciju od 1 atoma po cm^3. Rešavajući sistem diferencijalnih jednačina, dobijaju se rešenja koja se mogu predstaviti u obliku

$$N_1' =C_1w_1F_{a1}/\lambda_1$$
$$N_2' =(C_1F_{b1} + C_2 F_{b2})w_2/\lambda_2 \qquad (5)$$
$$N_3' =(C_1F_{c1} +C_2F_{c2} + C_3F_{c3})w_3/\lambda_3$$

gde su F_i funkcije vremena i date su sledećim jednačinama:

$$F_{a1} = 1-\exp(-\lambda_1 t)$$
$$F_{b1} = 1-(\lambda_2/(\lambda_2-\lambda_1))\exp(-\lambda_1 t) + (\lambda_1/(\lambda_2-\lambda_1))\exp(-\lambda_2 t)$$
$$F_{b2} = 1-\exp(-\lambda_2 t) \qquad (6)$$
$$F_{c1} = 1-\lambda_2\lambda_3\exp(-\lambda_1 t)/((\lambda_2-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_1))+\lambda_1\lambda_3\exp(-\lambda_2 t)/((\lambda_2-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_2))-$$
$$-\lambda_1\lambda_2\exp(-\lambda_3 t)/((\lambda_3-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_2))$$
$$F_{c2} = 1-\lambda_3\exp(-\lambda_2 t)/(\lambda_3-\lambda_2)+\lambda_2\exp(-\lambda_3 t)/(\lambda_2-\lambda_3)$$
$$F_{c3} = 1-\exp(-\lambda_3 t)$$

Rešenje sistema diferencijalnih jednačina za slučaj vrlo dugog vremena sakupljanja ($t\to\infty$) je:

$$N_1' = w_1 C_1/\lambda_1$$
$$N_2' = w_1 C_1/\lambda_2 + w_2 C_2/\lambda_2 \qquad (7)$$
$$N_3' = w_1 C_1/\lambda_3 + w_2 C_2/\lambda_3 + w_3 C_3/\lambda_3$$

U graničnom slučaju ($t\to\infty$) $N_i' \to N_{i0}$.

U toku izlaganja elektreta, tj. kolekcije radonovih potomaka na elektretu, vršeno je merenje koncentracije radona u atmosferi. Radi procene faktora w_i pretpostavimo da je u komori dostignuta ravnoteža izmedju radona i njegovih kratkoživećih potomaka. Kako je aktivnostna koncentracija radona u komori iznosila 4150 Bq/m^3, to se primenom jednačina (7) mogu odrediti faktori w_i. Dobijene vrednosti su:

$$w_1 = 0.8\cdot10^{-6}\ \text{m}^3/\text{s}$$
$$w_2 = 1.1\cdot10^{-6}\ \text{m}^3/\text{s} \qquad (8)$$
$$w_3 = 10.1\cdot10^{-6}\ \text{m}^3/\text{s}$$

2.4. DISKUSIJA DOBIJENIH REZULTATA I ZAKLJUČAK

Iz ovih rezultata se vidi da je faktor elektrostatičkog sakupljanja za ^{214}Bi znatno veći nego za ^{218}Po i ^{214}Pb. Faktor elektrostatičkog sakupljanja w_2 je za oko 40 % veći od faktora w_1. Može se uočiti da je faktor sakupljanja za ^{214}Bi za red veličine veći od faktora sakupljanja za ^{214}Pb. Razlog za ovako veliku razliku izmedju w_1, w_2 i w_3 nije u potpunosti jasan. On verovatno leži u činjenici da je vreme poluraspada ^{218}Po znatno manje od vremena poluraspada ^{214}Bi.

Ovako mali faktor sakupljanja ^{218}Po upućuje na zaključak da se on brzo razelektriše u atmosferi.

REFERENCE

1. Sinaeve, J.; Clement, G; M.O., Riordan, M.O. The emergance of natural radiation. Radiation Protection Dosimetry 7;1-4; 1984.
2. Kotrappa, P.; Dua, S.K.; Gupta, P.C.; Mayya, Y.S. Electret-a new tool for measuring concentrations of radon and thoron in air. Health Physics 41; 1981.
3. Kotrappa, P.; Dua, S.K.; Pimpale, N.S.; Gupta, P.S.; Nambi,K.S.V. Bhagwat, A.M.;Soman, S.D. Passive measurement of radon and thoron using TLD or SSNTD on electret. Health Physics 43;1982..
4. Kotrappa, P.; Dempsey, J.C.; Hickey, J.R.; Stieff, L.R. An Electret passive environmental ^{222}Rn monitor based on ionization measurement. Health Physics 54; 1988.
5. Kotrappa, P.; Dempsey, J.C.; Ramsey, R.W.; Stieff, L.R. A practical E-PERM (Electret Passive Environmental Radon Monitor) sistem For indoor Rn measurement. Health Physics 58; 1990.
6. Soman, S. D. Electret for measurement of back ground radiation dose and radon contretacion in air. 8 th Communication within the Bilateral Indo-German Scientific Agreement; 1982.
7. Dorschel, B; Pretzsch, G. Optimisation of electret ionization chamber for dosimetry in mixed neutron-gamma radiation fields. Radiation Protection Dosimetry Vol.9, No.1; 1984.
8. Lušejkin, G.A. Polimerni elektreti. Moskva, Himija; 1984.
9. Sessler, G. Elektreti. Moskva, Mir; 1983.
10. Gubkin, A. N. Elektreti. Moskva, Nauka; 1978.
11. Ivanov, V.I. Kurs Dosimetrii. Atomizdat, Moskva; 1977.

EKSPERIMENTALNO ODREDJIVANJE FAKTORA ELEKTROSTATIČKOG SAKUPLJANJA RADONOVIH KRATKOŽIVEĆIH POTOMAKA PRIMENOM ELEKTRETA

D. Krstić, D. Nikezić, R. Benderać, Đ. Bek Uzarov

Rezime

U ovom radu eksperimentalno je odredjen faktor elektro-statičkog prikupljanja kratkoživećih radonovih potomaka na elektretu. Opisan je termički metod proizvodnje elektreta. Negativno naelektrisan elektret je unet u komoru sa visokom koncentracijom radona. Izvršena je α-spektroskopska analiza elektreta, koja je potvrdila da elektret deluje na očekivan način, tj. da privlači pozitivno naelektrisane radonove potomke. Pored spektroskopske analize merena je ukupna α-aktivnost sa elektreta. Primenom metoda tri tačke odredjen je faktor elektrostatičkog sakupljanja, koji je za ^{214}Bi za red veličine veći nego za ^{214}Pb, dok je za ^{214}Pb za oko 40% veći nego za ^{218}Po.

Ključne reči: Elektret, radon, elektrostatsko sakupljanje

EXPERIMENTAL DETERIMANTION OF THE FACTOR OF ELECTROSTATICAL COLLECTION OF THE RADON DAUGHTERS WITH ELECTRET

D. Krstić, D. Nikezić, R. Benderać, D. Bek Uzarov

Abstract

In this paper a thermic method for electret production is described. Electrets were used for radon daughters collection. The factor of electrostatical collection of positively charged daughters was determined experimentally. ^{214}Bi is collected more efficiency than ^{218}Po, for one order of magnitude. The reason for so large collection efficiency is short half life of ^{218}Po in comparing with ^{214}Bi.

Key words: Electret, Radon daughters, electrostatical collectron

16.

OSETLJIVOST DETEKTORA CR-39 ZA MERENJE RADONA U RAZNIM TIPOVIMA DIFUZIONIH KOMORA

Dragoslav Nikezić , Dragana Kostić
Prirodno matematički fakultet, Institu za fiziku
R.Domanovića 12, 34000 Kragujevac

1. UVOD

CR 39 je jedan od najčešće primenjivanih trag detektora za merenje radona. On, kao i drugi trag detektori se primenjuje na dva načina. Prvi je da se detektor jednostavno izloži atmosferskom radonu. Ovo je "otkrivena forma" detektora. Drugi način je da se detektor stavi u komoru, čašu, koja se zatvori filter papirom. Ovo je detektor u "pokrivenoj formi". Prvi način merenja radona ima više nedostataka od kojih je najznačajnije: taloženje prašine i vlage na površini detektora koji ometaju detekciju alfa čestica; zavisnost efikasnosti ovakvog merenja od faktora ravnoteže izmedju radona i potomaka; detekcija *plate out* efekta, odnosno onih alfa čestica koje su emitovali radonovi potomci nataloženi na površini detektora itd. Ovi problemi su u značajnoj meri ublaženi ako se detektor stavi u *difuzionu komoru*. U ovom slučaju nema taloženja prašine na površini detektora; kondenzovanje vlage na detektoru se može otkloniti korišćenjem higroskopnih filtera umesto običnog filter papira za zatvaranje komore i td. Problem plate out-a ostaje i u ovom slučaju; medjutim on se ovde može proceniti, za razliku od otkrivenog detektora gde to nije moguće.

Osetljivost detektora (ili detekciona efikasnost), koja se može definisati kao gustina tragova po ekspoziciji, zavisi od: dimenzija komore, dimenzija detektora, uslova nagrizanja i očitavanja detektora (ali i od drugih faktora pri proizvodnji detektora i ozračivanju koje nije moguće uvek u potpunosti kontrolisati). Zavisnost efikasnosti merenja od dimenzija komore je proučavana u ovom radu. Za to je

primenjen ranije razvijen program koji računa detekcionu efikasnost za detektor CR 39. Računanja su obavljena za različita vremena i brzine nagrizanja detektora za pet raznih difuzionih komora.

2. MODEL

Model i računski program TCR39 koji su korišćeni u ovom radu su detaljno opisani u [1] i zato se ovde daje samo fizička osnova tog modela. Oni su zasnovani na Bethe-Bloch-ovom izrazu za zaustavnu moć za teške naelektrisane čestice. Ovaj izraz se u nerelativističkom slučaju za usporavanje alfa čestica u trag detektoru CR 39 može zapisati u sledećoj formi:

$$-\frac{dE}{dx}=\frac{0.15986}{E}\ln(7.814E) \qquad (1)$$

gde se E- energija alfa čestica, unosi u MeV, a zaustavna moć se dobija u MeV/Im.

Pored zaustavne moći u detektoru potrebno je poznavanje iste u vazduhu. Zaustavna moć za alfa čestice u vazduhu može se predstaviti na sličan način, tj:

$$-\frac{dE}{dx}=\frac{1.37}{E}\ln(6.52E) \qquad (2)$$

Pored Bethe Bloch-ove formule korišćen je izraz za promenljivu brzinu nagrizanja duž traga alfa čestica (Durrani 87) koji ima oblik:

$$V_t=V_b[1+(11.45e^{-0.339R'}+4e^{-0.44R'})(1-e^{-0.58R'})] \qquad (3)$$

U programu se obavlja simulacija istorije alfa čestica. Ova "istorija" se sastoji od: emisije alfa čestice, njenog uspora- vanja u vazduhu i ulaska u detektor. Pod emisijom se podrazumeva uzorkovanje slučajne tačke i pravca alfa česice. Slučajne tačke se biraju u efikasnoj zapremini iznad detektora, koja je odredjena ranije, i u programu TCR39 je ulazna veličina. Usled usporavanja alfa čestice u vazduhu njena energija se smanjuje. Potrebno je odrediti da li alfa čestice pogadjaju detektor ili ne. U slučaju pogotka odredjuje se energija sa kojom čestica ulazi u detektor. Za one čestice koje su ušle u detektor program odlučuje da li su one detektovane ili ne, na osnovu ulazne energije, upadnog ugla, vremena nagrizanja i brzine nagrizanja detekora. Ovde ne možemo da ulazimo u mnogobrojne detalje u vezi sa simulacijom "istorije" alfa čestica.

3. REZULTATI

Program TCR39 je primenjen za odredjivanje efikasnosti detekcije alfa čestica koje emituju radon i njegovi potomci. Pretposta- vljena je sledeća geometrija izlaganja detektora. Detektor CR 39 se nalazi na dnu čaše zatvorene filter papirom, koja se naziva "difuziona komora".

Ukupna gustina tragova ρ_t na detektoru je računata prema sledećoj jednačini:

$$\rho_t = \rho_0 + f_1\rho_1 + f_4\rho_4 + (1 - f_1)\rho_1' + (1-f_4)\rho_4' + p_1N_1 + p_4N_4 \qquad (4)$$

gde je:

-ρ_0 gustina tragova koja potiče od radona;

-ρ_1, ρ_4 gustina tragova od ^{218}Po i ^{214}Po koji se nalazi u vazduhu resp.;

-ρ_1', ρ_4' gustina tragova od ^{218}Po ^{214}Po koji se nalaze nataloženi na zidovima komore resp.;

-f_1, f_4 deo atoma ^{218}Po i ^{214}Po u vazduhu resp.;

-p_1, p_4 verovatnoća detekcije plate-outa za ^{218}Po i ^{214}Po, resp.;

-N_1 i N_4 broj atoma ^{218}Po i ^{214}Po koji se u jedinici vremena raspadnu na detektoru;

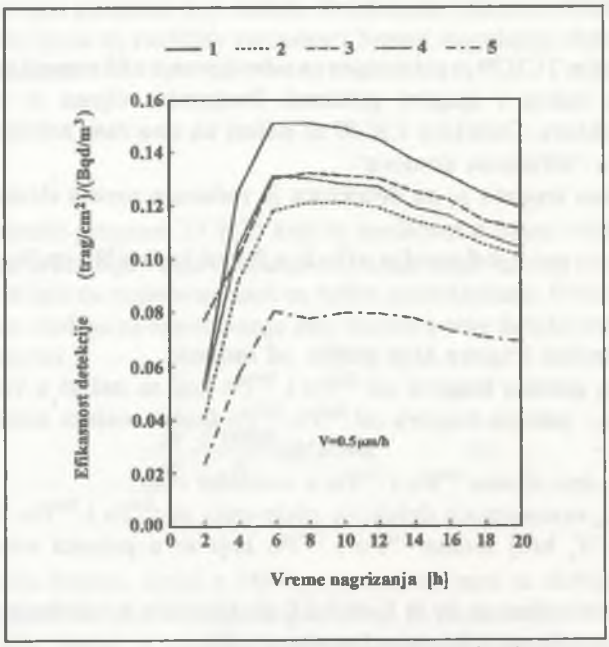
Pretpostavljno je da je f_1=0.5, i f_4=0, kao i da je taloženje potomaka na svim unutrašnjim površinama komore homogeno [2].

Računanja su obavljena za 5 različitih komora. Komore označene brojevima 2, 3 i 4 su imale oblik presečene kupe (ravnima koje su normalne na osu konusa), tako da se u geometrijskom smislu komora sastoji od dva bazisa koji imaju oblik kruga, i omotača. Za razliku od njih komore 1 i 5 su cilindričnog oblika. Komore 1-4 smatramo "velikim" dok je komora 5 "mala". Poluprečnici bazisa i visine komora dati su u tabeli 1.

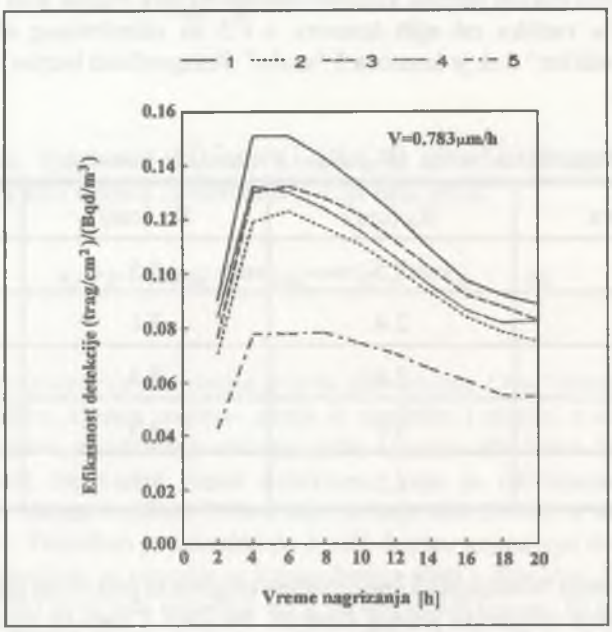
Tabela 1. Poluprečnici bazisa (R_1 i R_2) i visine (H) komora

Komora	R_1 (cm)	R_2 (cm)	H (cm)
1	3.5	3.5	9.6
2	2.4	3.1	5.0
3	2.6	3.4	8.4
4	3.7	4.3	6.6
5	1.5	1.5	2.4

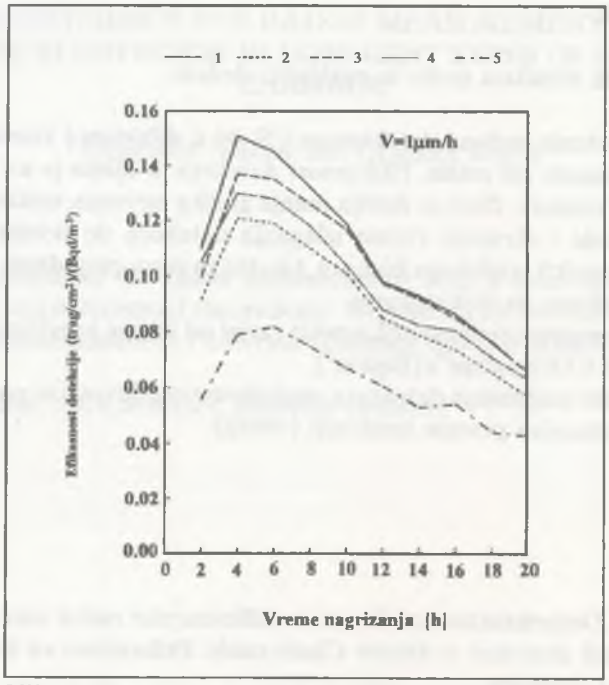
Rezultati računanja ukupne gustine tragova su prikazani grafički na slikama 1,2 i 3. Svaka kriva odgovara jednoj komori. Na slici 1 dati su rezultati računanja za brzinu nagrizanja detektora od V_b=0.5 μm/h, na slici 2 su rezultati za V_b=0.783 μm/h, dok slika 3 daje rezultate za V_b=1 μm/h.



Slika 1. Zavisnost detekcione efikasnosti od vremena nagrizanja za V_b=0.5 μm/h



Slika 2. Zavisnost detekcione efikasnosti od vremena nagrizanja za V_b=0.783 μm/h



Slika 3. Zavisnost detekcione efikasnosti od vremena nagrizanja za V_b=1 μm/h

Zapaža se da ukupna gustina tragova raste sa vremenom nagrizanja detektora; postiže se maksimum nakon čega sledi opadanje gustine tragova. Najveća efikasnost se postiže u komori br. 1. Detektori u komorama 2, 3 i 4 imaju približno istu efikasnost. Povećanjem vremena nagrizanja razlika između komora 1 i ostalih "velikih" komora se smanjuje. Ovaj efekat je izraženiji za veće brzine nagrizanja detekora. Najmanja efikasnost se dobija u "maloj" komori, i ona je oko 40 -50 % manja nego u "većim" komorama. Slično je primećeno i za detektor LR 115 II [2].

Razlog za manju efikasnost detektora u malim komorama je što zid komore "odseče" deo efikasne zapremine i onemogućava detekciju jednog dela alfa čestica.

Sa grafika se zapaža postojanje maksimuma efikasnosti detekcije. Ovaj maksimum je izmedju 6 i 12 ^{h} za brzinu nagrizanja od 0.5 μm/h; maksimum se pomera "ulevo", ka manjim vremenima nagrizanja za veće brzine nagrizanja. Tako, za V_b=0.783 μm/h maksimum je izmedju 4 i 8 sati nagrizanja, dok je za V_b=1 μm/h on izmedju 4 i 6 sati.

Maksimalna vrednost detekcione efikasnosti je oko 0.15 (trag/cm^2)/(Bqd/m^3), dok je za malu komoru 0.8(trag/cm^2)/(Bqd/m^3)

Za komore 2, 3 i 4 maksimum iznosi izmedju 0.12 i 0.14 (trag/cm^2)/(Bqd/m^3).

4. ZAKLJUČAK

Iz iznetih rezultata može se zaključiti sledeće:

a) za merenje radona detektorom CR-39 u difuzionoj komori pogodnije je koristiti veće komore od malih. Efikasnost detekcije u njima je za faktor 2 veća u odnosu na male komore, čime se dobija manja greška merenja, snižava donja granica osetljivosti metode i skraćuje vreme izlaganja detekora do dobijanja iste gustine tragova. Drugi aspekti korišćenja komora, kao što su cena, pogodnost pri manipulaciji i dr ovde ne možemo da diskutujemo.

b)Maksimalna vrednost efikasnosti zavisi od brzine nagrizanja detektora i za komoru 1 iznosi $0.15(\text{trag/cm}^2)/(\text{Bqd/m}^3)$.
Povećanjem brzine nagrizanja detektora, maksimum osetljivosti se pomera ka manjim vremenima nagrizanja i postaje izraženiji (oštriji).

REFERENCE

[1]. D. Nikezić. *Determination of detection efficiencyfor radon and radon daughters with CR 39 track detector- a Monte Carlo study.* Prihvaćeno za štampu u Nuclear Instrumants and Methods.

[2] D. Nikezić, D. Veličković. *Calibracioni coeficient for radon measurements with LR-115-II track detector in diferent types of diffusion chambers.* Radiation Measurements, 23, 1, 1994

OSETLJIVOST DETEKTORA CR-39 ZA MERENJE RADONA U RAZNIM TIPOVIMA DIFUZIONIH KOMORA

Dragoslav Nikezić i Dragana Kostić

Rezime:

U ovom radu je proučavana efikasnost merenja radona trag detektorom CR 39 u različitim tipovima difuzionih komora. Ispitivano je ukupno 5 komora. Efikasnost detekcije je računata Metodom Monte Karlo.

Ključne reči: Radon, Trag detektor, difuziona komora

DETECTION EFFICIENCY FOR RADON MEASUREMENTS WITH CR 39 TRACK ETCH DETECTOR IN DIFFERENT TYPES OF DIFFUSION CHAMBER

Dragoslav Nikezić and Dragana Kostić

Abstract

The detection efficiency for radon measurements with a solid state nuclear track detector CR-39 was determined theoreticaly. Measurements were done for five types of different diffusion chambers. Detection efficiency is larger in the bigger chambers.

Key words: Radon, track detektor, diffusion chamber

17.

MOGUĆNOST PRIMENE AKTIVNIH UGLJEVA ZA MERENJE KONCENTRACIJE RADONA

R. Benderać, D. Ristić,
Institut bezbednosti, P.O.B. 574 Beograd
G. Pantelić
Institut za med. rada i radiol. zaštitu "Dr D.Karajović"

1. UVOD

Radon (^{222}Rn) je radioaktivni gas sa vremenom poluraspada od 3.824 dana. Direktan je potomak ^{226}Ra koji nastaje u nizu ^{238}U. Zdravstvena oštećenja od radona i njegovih potomaka su rezultat udisanja ovog gasa. Većina radonovih potomaka (proizvedeni u vazduhu zatvorenih prostorija) pripajaju se brzo za aerosole ambijenta. Kada se ovi pripojeni ili nepripojeni potomci radona udahnu (unesu udisanjem), postaju locirani u nosnoj šupljini, bronhijama i plućnim alveolama. Ovi radioaktivni potomci se raspadaju, emitujući α čestice, β čestice i γ zrake. Za unutrašnje ozračivanje samo su važne α čestice jer zbog dužeg dometa i znatno niže biološke efikasnosti γ zraka i β čestica u poređenju sa α česticama, njihov dozni ekvivalent je zanemarljiv u plućnom tkivu. Svakako, većinu radijacionih biologa najviše zanima šta se u organizmu dešava sa ^{218}Po, direktnom potomku ^{222}Rn. U početku, on postoji kao direktan mobilan jon ili atom. Međutim, za vreme od 20 sekundi (pod normalnim spoljašnjim uslovima), gubi sopstvenu nezavisnost i pripaja se za molekule vodene pare i kiseonika, tragove gasova, čestice i čvrste površine. Konstatovano je da relevantna "biološka meta" α četica od dva potomka radona (^{218}Po, $E\alpha$=6.0 MeV i ^{214}Po, $E\alpha$=7.68 MeV sa dometima od 47 μm i 71 μm respektivno u tkivu) su jezgra sistema osnovnih ćelija i bronhijalni epiterm [2].

Tek je nedavno shvaćeno da je radon najvažniji od svih izvora prirodnog zračenja. UNSCEAR procenjuje da radon, zajedno sa svojim produktima raspada ^{218}Po i ^{214}Po, doprinosi oko 68.8% godišnje efektivne ekvivalentne doze koju pojedinci primaju od svih izvora zajedno.

Postoji više metoda koje su u poslednje vreme razvijene za monitoring koncentracije radona u vazduhu. One se razlikuju po raznovrsnosti eksperimentalne tehnike, širinom opsega osetljivosti i dužini merenja. U različitim tehnikama, merenje može trajati preko 1 časa, dana, nedelje, meseca, pa čak i više od jedne godine. U Institutu bezbednosti sintetizovani su polimerni detektori na bazi nitroceluloze "CN-92", koji su pokazali dobre rezultate u poređenju sa komercijalnim detektorima. Njihovo optimalno vreme eksponiranja je 70-100 dana za merenje koncentracije radona u zatvorenim prostorijama (3).

U poslednje vreme, fenomen adsorpcije radona na aktivnom uglju koristi se za merenje koncentracije radona, merenjem gamazraka iz raspada radonovih potomaka. Potencijalne prednosti ove metode zasnivaju se na činjenicama da su uzorci aktivnog uglja jeftini (oko 1 USD), mogu se koristiti više puta posle odgovarajućeg temperaturnog tretmana i vreme ekspozicije je relativno kratko (1-6 dana). Analiza može biti automatizovana, primenom postojećih softverskih programa, tako da zahteva minimum ljudskog napora. U principu, postoji mogućnot da se kanisteri sa aktivnim ugljem daju velikom broju korisnika za ekspoziciju u njihovim kućama, koji ih posle par dana ekspozicije vraćaju u laboratoriju na analizu, što omogućava brzu i masovnu metodu za ispitivanje koncentracije radona u datoj sredini.

2. ADSORCIJA I POROZNA STRUKTURA AKTIVNIH UGLJEVA

Elektonskom mikroskopijom utvrđeno je da je aktivni ugalj šupljikava građe koja se satoji od najsitnijih čestica ugljenika čije dimenzije iznose oko 3 nm. Rendgenografskim ispitivanjem strukture aktivnog uglja utvrđeno je da se ove čestice sastoje od mnoštva kristala veličine 1-3 nm. Ugljenični kristali aktivnog uglja sastoje se od šestočlanih prstenova površine 2-3 nm^2.

Aktivni ugljevi se odlikuju polidisperznom strukturom, polimodalnom raspodelom veličine zapremine pora, čija kriva raspodele može da ima nekoliko ulaznih maksimuma (4).

U zavisnosti od veličine i uloge u adsorptivnim procesima, pore aktivnog uglja dele se na tri osnovne vrste: makropore, prelazne pore i mikropore. Ova razlika u porama ogleda se takođe u mehanizmu koje one vrše u toku adsorpcionog procesa. mikropore su najfinije pore aktivnog uglja. Njihovi radijusi iznose ispod 1.5-1.6 nm. Karakteristika ovih pora je ta, da su njihovi radijusi približno jednaki radijusima molekula sorptiva. Energija adsorpcije u mikroporama, u odnosu na makro i prelazne pore, znatno je veća, a i u odnosu na neporozne adsorbente iste hemijske prirode površine. U saglasnosti sa vremenskim postavkama koje proizlaze iz teorije o zapreminskom ispunjavanju mikropora, čitava zapremina mikropora deluje kao adsorpciono polje. U vezi s tim, tumačenja o slojevitom ispunjavanju površine mikropora nemaju fizičkog smisla, adsorpcija se vrši u monomolekulskom sloju. Zapremina mikropora aktivnih ugljeva, proizvedenih u Industriji "Miloje Zakić" iz

Kruševca, iznosi od 0.20-0.60 cm^3/g, a specifična površina je u dijapazonu od 500-2500 m^2/g. Mikropore igraju odlučujuću ulogu u procesima adsorpcije na aktivnom uglju. Pri adsorpciji para i gasova veličina adsorpcije upravo je prorporcionalna graničnoj zapremini adsorpcionog prostora ili zapremini mikropora. Aktivni ugljevi koji se koriste za ove svrhe moraju da imaju zapreminu mikropora od 0.40-0.60 cm^3/g.

Za proizvodnju aktivnih ugljeva mogu da se koriste mnoge sirovine koje se, pre svega odlikuju visokim sadržajem ugljenika, a koje se javljaju u neugljenisanom stanju ili kao ugalj ili kao koks. Najvažnije sirovine za proizvodnju aktivnih ugljeva, koje se u Evropi najviše koriste su: drvo (u obliku strugotine), drveni ugalj, treset, koksirani treset, određene vrste kamanog uglja i mrki ugalj, odnosno polukoks mrkog uglja. Pored navedenih sirovina za proizvodnju aktivnog uglja za zaštitne maske i druge specijlne oblasti primene, koje zahtevaju tvrde i finoporaste aktivate, koristi se karbonizovana ljuska kokosovog oraha.

3. MERENJE KONCENTRACIJE RADONA-222 KORIŠĆENJEM AKTIVNOG UGLJA

Aktivni ugalj ima visok afinitet za nekoliko gasova i para, uključujući i Rn222. Radon se adsorbuje na granulama uglja i raspada na nekoliko odvojenih produkata raspada: ^{218}Po (radijum-A), ^{214}Pb (radijum-B), ^{214}Bi (radijum-C), ^{214}Po (radijum-C) i ^{210}Pb (radijum-D). Koncentracija radona se određuje brojanjem emisija γ zraka od ^{214}Pb (295 keV i 352 keV) i ^{214}Bi (609 keV). Ovo je moguće zbog relativno kratkog vremena poluraspada radonovih potomaka. U toku od tri časa potomci su u ravnoteži sa ^{222}Rn.

Pasivna priroda aktivnog uglja omogućuje adsorpciju i desorpciju. U toku procesa adsorpcije radona dolazi do njegovog radioaktivnog raspada. Kanister sa aktivnim ugljem (detektor) ne može uniformno integrisati radon u toku neograničenog perioda ekspozicije. Adsorpcija radona aktivnim ugljem publikovana je u radovima Cohen (1983, 1986), Prichard (1985) i George (1984) [4], [5], [6]. Pasivni detektori sa filterom od aktivnog uglja, razvijeni su u Institutu bezbednosti, koji kao osnovni materijal koriste proizvode Industrije "Miloje Zakić". Ovi detektori su po geometriji i vrsti aktivnog uglja identični sa EPA detektorima koji se koriste u Institutu za medicinu rada i radiološku zaštitu "Dr Dragomir Karajović" iz Beograda, u odnosu na koje je određivna relativna efikasnost detekcije (RED).

4. MATERIJALI, METODE I DISKUSIJA REZULTATA

Pasivni radon detektori koji su korišćeni u našem radu sastoje se iz sledećih materijala:

1. metalne kutije od 35 g, dimenzija: dijametar 100 mm, dubina 28 mm;
2. 70±1 g aktivnog uglja veličine zrna 0.25-3.55 mm;
3. metalna mrežica sa otvorima 30-50 %;

4. prsten sa unutrašnjim širenjem;
5. jastučni materijal (stiropor) prilepljen na unutrašnjoj površini poklopca;
6. samolepljiva polivinil traka dužine 30 cm.

U radu su korišćeni sledeći aktivni ugljevi:

1. KZ-81-Cu ("Miloje Zakić" Kruševac)
2. KZ-81-B ("Miloje Zakić" Kruševac)
3. KCS-81 ("Miloje Zakić" Kruševac)
4. KZ-81 ("Miloje Zakić" Kruševac)
5. R ("Miloje Zakić" Kruševac)
6. EPA (Environmental Protection Agency, USA)

Aktivni ugalj mora da ima što manju aktivnost prirodnih radionuklida. Prema EPA specifikaciji aktivnost radionuklida, izuzev prirodnog ^{40}K, mora biti manja od 3.7 mBq/kg [7]. Aktivni ugljevi koji su korišćeni u ovom radu u potpunosti odgovaraju gore navedenim kriterijumima. Aktivnost je merena na γ spektrometrijskom sistemu "ADCAM MCA-350" (ORTEC), koji kao detekcioni sistem koristi niskofonski poluprovodnički detektor na bazi čistog germanijuma.

U eksperimentalnom radu korišćena je kalibraciona komora "BRAUN" sa duplim zidovima, robot-rukavicama za rad unutar komore, zapremine 720 dm^3, namenjena za rad u inertnoj atmosferi. Unutar komore je postavljen praškasti izvor ^{226}Ra. Temperatura, vlažnost i koncentracija radona mereni su na svakih 60 min. Koncentracija radona merena je scintilacionom sondom "IPAB 71" (NARDEUX, Francuska) i EPA detektorima sa filterom od aktivnog uglja.

Osobine mernog sistema "ADCAM MCA 350" (ORTEC), određivane su dnevno merenjem etalonog izvora (EPA, 520/5-87-005) i fona.

Standard i kanister fona mere se svakodnevno da se proveri brojačka efikasnost detektorskog sistema. Efikasnost detekcije za detektore korišćene u našem radu je sledeća:

poluprovodnički detektor HP Ge: ^{214}Pb (295.2 keV) Eff=0.02568; ^{214}Pb (351.9 keV) Eff=0.02349; ^{214}Bi (609.3 keV) Eff=0,01496; i
scintilacioni detektor NaI(Tl), integralna efikasnost za fotopikove energije (295.2 + 351.9 + 609.3 keV) Eff=0,04792.

Osetljivost pasivnih detektora sa filterom od aktivnog uglja zavisi od vremena ekspozicije i prinosa vode dobijene za to vreme. Aktivni ugalj ima jak afinitet da apsorbuje vodu iz vazduha. Zbog toga kalibracija ovih detektora je dvostepeni proces zasnovan na korekciji u odnosu na prinos vode i vreme izlaganja [7]. Za njihovu kalibraciju vrše se sledeći postupci:

Kalibracija se vrši za tri opsega vlažnosti (nizak, srednji i visoki), za period 1-6 dana. Niska, srednja i visoka vlažnost odgovara aproksimativno 20, 50 i 80 procenata vlažnosti. Za vreme

eksperimenta neophodno je da koncentracija radona bude konstantna;

Kad je komora stabilisana, set od 30 detektora postavljen je u komoru i eksponiran na sledeći način; grupa od 5 za svaki od 1, 2, 3, 4, 5 i 6 dana, respektivno. Detektori (kanisteri) se otvaraju unutar komore i beleži startno vreme. Postupak izlaganja se ponavlja više puta, svaki put pri drugoj vlažnosti;

Na kraju prvog dana iz komore je izvađena grupa od prvih 5 detektora. Potrebno je sačekati najmanje 3 časa, od vremena prestanka ekspozicije do početka merenja, da bi se uspostavila ravnoteža između radona i njegovih potomaka.

Kalibracioni faktori se računaju za svaki detektorkanister na osnovu relacije:

$$CF=R^{*} / (Ts\ E\ Rn\ DF) \qquad (1)$$

gde je :

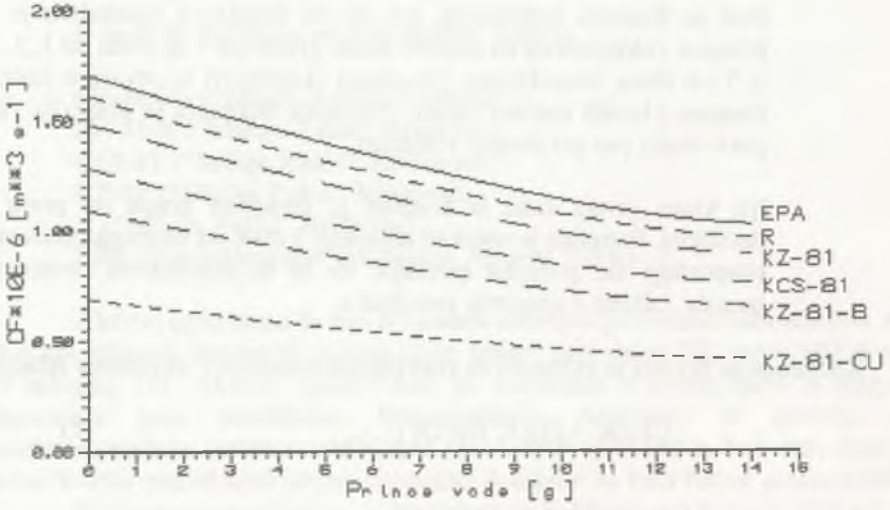
CF - kalibracioni faktor, brzina adsorpcije radona (m^3/s);
R^{*} - ukupan broj impulsa u sekundi, korigovan za ukupan broj impulsa za kanister fona;
Ts - vreme ekspozicije kanistera (s);
E - efikasnost detekcije za dati detektor, (CPS/Bq);
Rn - koncentracija radona u komori za vreme ekspozicije,(Bq/m^3);
DF - faktor raspada od sredine vremena ekspozicije do početka brojanja, koji se izračunava iz

$$DF=\exp(-0{,}693\ t/(T_{1/2}\ Rn)$$

gde je

t - vreme (s) od sredine ekspozicije do početka merenja, a $T_{1/2}$ Rn - vreme poluraspada radona.

Na Slici 1. je dat grafički prikaz eksperimentalno dobijenih vrednosti kalibracionih faktora za različite tipove aktivnih ugljeva u zavisnosti od težinskog prinosa vode. Relativna efikasnost detekcije određivana je u odnosu na američki pasivni detektor sa filterom od aktivnog uglja (EPA 520/5-87-005) čija je vrednost uzeta za 100 %. Sa slike se vidi da najveću RED imaju aktivni ugljevi tipa R (94,1 %) i KZ-81 (86,8 %), srednju RED KCS-81 (74,4 %) i KZ-81-B (63,7 %), dok je najniža vrednost dobijena za K-81-Cu (40,3 %). Razlike u osetljivosti kod navedenih tipova aktivnih ugljeva, tumačimo u razlikama fizičkohemijskih karakteristika, načinu izrade i nameni.



Slika 1. Zavisnost kalibracionih faktora od prinosa vode za različite tipove aktivnih ugljeva.

5. IZRAČUNAVANJE KONCENTRACIJE RADONA

Ukoliko je poznat kalibracioni faktor, koncentracija radona može se izračunati iz jednačine (1):

$$Rn = R^{*} /(Ts\ E\ CF\ Df)\ [Bq/m^3] \qquad (2)$$

Za izračunavanje koncentracije radona u datoj sredini potrebno je primeniti sledeći postupak:

1) Izmeriti etaloni izvor - kanister na detektoru koji se koristi. Izračunati efikasnost (E) za detektor u CPS/Bq. Ova vrednost se koristi za sva merenja koja se vrše toga dana.
2) Izmeriti "fon" kanistera na detektoru. Ova vrednost se koristi za korekciju na fon svih merenja izvršenih toga dana.
3) Izmeriti na analitičkoj vagi kanister koji se analizira i na taj način odrediti težinski prinos vode u gramima apsorbovane za period ekspozicije koji je označen sa (g) na Sl.1.

4) Koristiti Sl.1 i preko prinosa vode (g) odrediti inicijalni kalibracioni koeficijent CF.

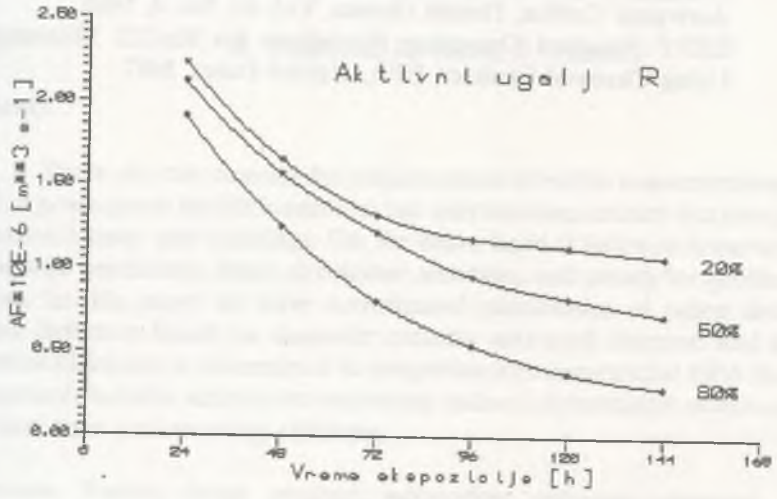
5) Ukoliko je period ekspozicije duži od 48 časova, inicijalni CF mora biti korigovan da predstavlja stvarno vreme ekspozicije datog kanistera. Ovo se postiže korišćenjem prinosa vode da se izabere odgovarajuća vlažnost, Odgovarajuća kriva bira se na osnovu sledećih kriterijuma (7):

Težinski prinos	Kriva
manji od 1.0 g	20%
1.0 - 4.0 g	50%
veći od 4.0 g	80%

Na osnovu određenog prinosa vode, vrši se izbor krive relativne vlažnosti, određuje se podešavajući faktor (AF) koji je u funkciji vremena ekspozicije i koristi se za korekciju inicijalnog kalibracionog faktora (CF), za dobijanje krajnjeg CF.

$$\text{Krajnji CF} = \text{Inicijalni CF} \times \frac{\text{AF za dato vreme ekspozicije}}{\text{AF za dva dana (48h) eksozicije}}$$

Iz gornjeg izraza se vidi da ukoliko je vreme ekspozicije 48h, AF=1,0 i inicijalni CF jednak je krajnjem CF.



Slika 2. Zavisnost podešavajućeg kalibracionog faktora (AF) od vremena ekspozicije

Na Slici 2. date su vrednosti podešavajućeg kalibracionog faktora (AF) u zavisnosti od dužine vremena ekspozicije za detektor sa filterom od aktivnog uglja tipa R, koji pokazuje najveću RED.

Slika 2. Zavisnost podešavajućeg kalibracionog faktora (AF) od vremena ekspozicije

Minimalno detektibilna aktivnost (MDA) za merenje radona kanisterima sa aktivnim ugljem je funkcija brzine brojanja fona brojačkog sistema i vremena brojanja. MDA za 3σ merne neodređenosti za kanistere sa najosetljivijim aktivnim ugljem tipa KZ-81 i R iznosi 5.5 Bq/m^3 i $5.8/m^3$ respektivno.

LITERATURA:

[1] Durrani, S.A. and Bull, Solid State Nuclear Track Detection, Pergamon Press, Oxford, pp. 165, 1987.

[2] Abu-Jarad, F. et al., A study radon emitted from building materials using plastic alpha-track detectors, Phys.Med.Biol. 25, pp. 683, 1980.

[3] Benderać, R. et al., Application of a new home made track detectors CN-92 in radon measurements, Proceedings of Radiation Protection - selected Topics, pp. 99-103, Kupari,1989.

[4] Cohen, B.L. and Cohen, E.S., Theory and Practice of radon Monitoring by Adsorption in Charcoal, Health Physics, Vol. 45, No. 2, 1983.

[5] Prichard, H.M. and Marion, K., A Passive Diffusion Rn-222 Sampler Based on Activated Carbon Adsorption, Health Physics, Vol. 48, No. 6, 1985.

[6] George, A.C., Passive, Integrated Measurement of Indoor Air Using Activated Carbon, Health Physics, Vol. 46, No. 4, 1980.

[7] EERF Standard Operating Procedures for Rn-222 Measurement Using Charcoal Canister, EPA, United States, 1987

MOGUĆNOST PRIMENE AKTIVNIH UGLJEVA ZA MERENJE KONCENTRACIJE RADONA

R. Benderać, D. Ristić, G. Pantelić

Rezime

Postoje dva razloga za merenje koncentracije radona: sa jedne strane radon predstavlja opasnost po zdravlje, pošto se njegovi inhalirani potomci smatraju jednim od glavnih uzročnika raka pluća, a s druge strane dolazi se do otkrivanja nalazišta urana, proricanja pojava zemljotresa, proučavanje vulkanskih aktivnosti i ispitivanje izvora geotermalne energije. U ovom radu ispitivana je mogućnost detekcije radona putem pasivnih detektora na bazi aktivnog uglja domaće proizvodnje, Industrije "Miloje Zakić" iz Kruševca. Ispitavana je njihova relativna efikasnost za detekciju u odnosu na američki komercijalni detektor (EPA) i najveća osetljivost je dobijena za aktivni ugalj tipa R (94.1%). Određivana je donja granica detekcije, uticaj prinosa vode i dužina vremena ekspozicije.

Ključne reči: Radon; potomci raspada; adsorpcija; aktivni ugalj; prinos vode; vlažnost; kalibracioni faktor; RED - relativna efikasnost detekcije.

SOME POSSIBILITIES ACTIVATED CHARCOAL FOR RADON CONCENTRATION MEASUREMENT

R. Benderać, D. Ristić, G. Pantelić

Abstrakt

There are two reasons for measurement of radon concentration. On the one hand, it poses grave health hazards to not only uranium miners but also people living in normal houses and buildings. On the other hand it helps in mineral exploration, earthquake prediction, study of volcanic activities, and search for geothermal energy sources. In this paper we have investigated possibilities of radon detection using passive detectors based on domestic industry activated charcoal and their relative detection efficiency is determined in comparisson to commercial EPA detector. Also, minimum detectable activity for measuring radon is determined, effect on water gain, exposure time and counting efficiency.

Keywords: Radon; decay product; adsorption; activated charcoal; water gain; humidity; calibration factors; RED - relative efficiency detection.

18.

EFIKASNOST KONCENTRIČNOG SKENOVANJA POVRŠINE TRAG DETEKTORA MIKROSKOPOM

Đordje Bek Uzarov
Institut za nuklearne nauke - Vinča, Beograd
Dragoslav Nikezić,Dragana Kostić, Dragana Krstić, Olivera Čuknić
Prirodno matematički fakultet, Kragujevac

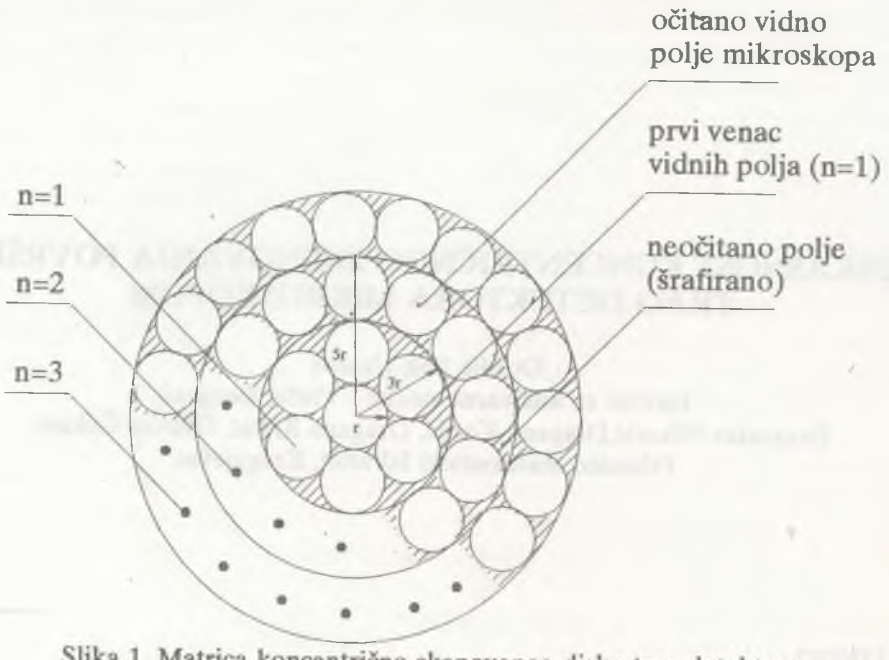
1. UVOD

Merenje radona često se obavlja trag detektorima smeštenim na dnu tzv. difuzione komore. Komora je sa gornje strane zatvorena filter papirom. Razlozi za ovakvo merenje su što je u ovom slučaju izbegnuto taloženje prašine i vlage na detektoru i što je ublažena zavisnost osetljivosti detektora od faktora ravnoteže izmedju radona i potomaka. Medjutim, drugi problem se pojavljuje u ovakvom merenju. To je taloženje radonovih potomaka na unutrašnjim zidovima komore, što menja geometriju ozračivanja detektora; time je promenjena geometrijska efikasnost pa se menja i kalibracioni koeficijent.[1] Deo radonovih potomaka koji se nataloži na zidovima zavisi od više različitih faktora koje nije moguće kontrolisati u toku merenja. Medjutim, rešenje se može naći merenjem radijalne raspodele gustine tragova na detektoru. Da bi se izmerila raspodela gustine tragova potrebno je merenje vršiti tako da se vidno polje mikroskopa pomera po krugu čiji je centar u centru detektora.

U ovom radu je odredjena greška takvog načina merenja gustine tragova.

2. DEFINICIJA GEOMETRIJSKE MATRICE SKENOVANJA

Neka se mikroskopiranje, tj. brojanje tragova na površini trag detektora izvodi tako što se brojanje započinje vidnim poljem postavljenim u centar diska trag detektora. Pošto se to vidno polje očita, ono se pokriva neprozirnom kružnom maskom veličine vidnog polja i nastavi mikroskopiranje tako što se sledeća vidna polja koncentrično redjaju po obodu maske, kako je prikazano na slici 1.



Slika 1. Matrica koncentrično skenovanog diska trag detektora

Tako se formira prvi venac koncentričnih vidnih polja označen rednim brojem n=1. Po završetku prvog venca nastavlja analognim postupkom brojanje u vidnim poljima drugog venca, n=2, i tako dalje. Na taj način dobija se definisana geometrijska matrica skenovanja površine detektora prikazana na Slici 1.

Površine koncentričnih kružnih prstenova.

Sa Slike 1. se vidi da očitanu površinu detektora čini zbir površina kružnih vidnih polja, a neočitana-previdjena površina je na slici obeležena šrafirano. Veličina šrafirane površine očigledno je jednaka razlici izmedju cele površine prstena, čiji je veći poluprečnik 3r a manji je r, umanjene za površine koju čine vidna polja u vencu čiji je redni broj n. Ako je poluprečnik vidnog polja r onda će njegova kružna površina biti $P=r^2\pi$. Sa slike 1. je takodje očigledno da će celokupna površina prvog prstena u kome se nalazi prvi venac vidnih polja (n = 1), biti:

$$P_{n=1} = [(3r)^2 - r^2]\ \pi = 8r^2\pi \qquad (1)$$

Analogno se dobija za površinu drugog prstena označenu sa n=2, da je $P_{n=2} = 16r^2\pi$. Ponavljanje postupka pokazuje da je stvarna površina svakog narednog prstena jednaka celobrojnom multiplu od 8n vidnih polja, pa opšti član za površinu n-tog prstena ima oblik:

$$P_{cn} = [\ (2n+1)^2 - (2n-1)^2]\ r^2\ \pi = 8nr^2\pi = N_{cn}r^2\pi_0 \qquad (2)$$

gde je sa n označen redni broj koncentričnog prstena (ili venca vidnih polja) oko prvog vidnog polja, a sa N celobrojni multipl sa kojim kada se množi površina jednog vidnog polja $P_0=r^2\pi$ dobija se celokupna ozračena površina n-tog prstena.

3. BROJ VIDNIH POLJA U VENCU NA POVRŠINI PRSTENA.

Iz jednačine (2) sledi da je površina prvog prstena jednaka 8 površina vidnih polja. Medjutim, sa slike 1. se vidi da na toj površini može se smestiti svega 6 vidnih polja. Otuda proizilazi da šrafirani deo površine čine dva vidna polja. Dakle, realan broj vidnih polja koji se može smestiti na površinu datog prstena je manji ili jednak celobrojnom muiltiplu od 2r obima kružnice koja prolazi sredinom datog prstena. Obim srednje kružnice je: $2rn\pi$.

Budući da su vidna polja u vencu nanizana sa centrom na rogljevima mnogougla to njihov broj N_s, treba da bude ceo broj i označava stvarni broj skenovanih vidnih polja smeštenih na površini $N_sr^2\pi$. Očigledno je da je broj N_s manji od broja N_c, što će reći da je obim kruga opisanog poluprečnikom vidnog prstena manji od zbira stanica mnogougla ili, što je isto, manji od proizvoda: N_s2r.

Kako je obim kruga koji prolazi sredinom vidnog polja O_n izražen u funkciji poluprečnika vidnog polja i rednog broja venca jednak $O = 2r\ 2n\pi$, to će važiti nejednakost, da je:

$$N_s \cdot 2r \leq O_n = 2r \cdot 2n\pi \qquad (3)$$

gde je N_s broj skenovanih polja jer je dijametar srednje kružnice u funkciji poluprečnika vidnog polja r i rednog broja prstena n jednaka D=2r(2n).

Neka traženje opšteg izraza za srednji obim prstena bude tako da broj 2r bude izvučen kao koeficijent ispred izraza za obim- O_n kao multipl; to će omogućiti njegovo skračivanje u nejednačini (3). Tako se za prvi obim (n=1) dobija da je: $O_1 = (2r)2p$; drugi, je: $O_2 = (2r)4\pi$, i treći, $O_3 = (2r)6\pi$. Odakle proizilazi da opšti izraz za obim srednje kružnice u prstenu n ima sledeći oblik:

$$O_n = 2r2n\pi \qquad (4)$$

Kada se jednačina (4) uvrsti u jednačinu (3) dobija se opšti uslov za broj skenovanih polja u prstenu n-tog reda iskazan nejednačinom:

$$N_{sn} \leq n \cdot 2\pi \qquad (5)$$

Pri čemu je N_{sn}=1,2,3,..,k, vidnih polja na površini n-tog prstena. Dakle, broj vidnih polja N_{sn} koji se može smestiti na površini n-tog prstena manji je ili je jednak proizvodu od tog rednog broja n i broja 2π. Broj N_{sn} je uvek ceo racionalan broj.

4. ODREĐIVANJE VELIČINE PREVIĐENE-NESKENOVANE POVRŠINE

Površina koja nije skenovana pod mikroskopm (šrafirani deo) dobija se kada se od cele površine prstena P_{cn} koja je prema jednačini (2), jednaka multiplu od N_{cn} vidnih polja, oduzme broj skenovanih polja N_{sn} vidnih polja, definisanih jednačinom (5), tj. može se pisati da je propušteni broj vidnih polja - N_{pn} u prstenu n jednak:

$$N_{pn} = N_{cn} - N_{sn} \qquad (6)$$

Množenjem leve i desne strane jednačine (6) sa izrazom za površinu jednog vidnog polja:

$$P_0 = r^2 \pi, \qquad (7)$$

dobijaju se vrednosti odgovarajućih: celokupnih -P_c, skenovanih -P_s i propuštenih -P_p površina, u n-tom prstenu, dakle:

- Celokupna površina n-tog prstena . . . . . $P_{cn} = N_{cn} r^2 \pi$

- Skenovana površina u n-tom prstenu . . $P_{pn} = N\, r^2\, \pi,$ (8)
- Neskenovana površina . . . . . $P_{sn} = N_{sn} r^2 \pi$

Dakle, postavljena koncentrična matrica skenovanja omogućava da se sve analizirane površine na disku čvrstog detektora mogu izraziti u funkciji površine vidnog polja mikroskopa kao elementarnog kvanta površine pomnožene celobrojnim umnošcima kojima se izražavaju sve analizirane -merene površine svakog prstena ozračenog čvrstog detektora.

Iz jednačine (6) proizilazi da će celokupna analizirana površina P_c, za ceo disk detektora biti jednaka:

$$P_c = r^2 \pi [1 + \sum_{n=1}^{m} N_{cn}] \qquad (9)$$

Cela skenovana površina će biti jenaka: (14)

$$P_s = r^2\pi \sum_{n=1}^{m} N_{sn} \qquad (10)$$

Deo površine detektora koja je izostavljena ("preskočena") će biti jednaka:

$$P_p = r^2\pi \sum_{n=1}^{m} N_{pn} \qquad (11)$$

5. RELATIVNA EFIKASNOST SKENOVANJA

Pod relativnom efikasnošću skenovanja podrazumeva se relativni odnos površina koje su podvrgnute brojanju- skenovanju prema celokupnoj površini analiziranog diska detektora, tj.

$$e_f = \frac{P_s}{P_c} = \frac{\sum_{n=1}^{m} N_{sn}}{1 + \sum_{n=1}^{m} N_{sn}} \qquad (12)$$

6. GREŠKE ODREDJIVANJA ANALIZIRANIH POVRŠINA

Greške odredjivanja površina traže se iz jednačina (8), (9), (10) i (11) u kojima izrazi pod zagradom predstavljaju proste realne cele brojeve, pa im je greška jednaka nuli [2],[3]. Tako da u svim izrazima greška zavisi isključivo od prvog člana sa desne strane jednačine tj. od poznavnja površine vidnog polja $P_0 = r^2\pi$. Tako apsolutna greška poznavanja površine jednog vidnog polja je:

$$\Delta_{P_0} = 2r\pi\Delta_r \qquad (13)$$

odnosno njena relativna greška,

$$\delta_{P_0} = \frac{2r\pi\Delta_r}{P_0} \qquad (14)$$

Celokupna greška poznavanja skenovane površine je:

$$\Delta_{P0}=\frac{2r\pi\Delta_r}{P_0}\sum_{n=1}^{n}N_{sn} \qquad (15)$$

7. KOMENTARI I PREPORUKE

1. U skladu sa jednačinom (5), skenovanje svakog prstena može se smatrati korektnim ako je u njemu pregledano,tj. skenovano N_{sn} vidnih polja.
2. Ako je gustina tragova homogena vidna polja se mogu i preklapati ali njihov broj mora biti za svaki dati prsten tačan.
3. Za efikasnu površinu detektora uzimati skenovanu površinu izraženu jednačinom (10).
4. Ako se nadje velika razlika u površinskoj gustini odbroja izmedju venaca u različitim prstenovima treba posebno povesti računa o nehomogenosti izlaganja detektora.

8. ZAKLJUČAK

Predložena matrica skenovanja tragova na disku čvrstog detektora izražava sve veličine analiziranih površina kao celobrojne multiple površine vidnog polja mikroskopa i broja tih vidnih polja.

Sve površine i greške poznavanja površina zavise samo od poznavanja poluprečnika vidnog polja mikroskopa.

Mana izložene metode kružnog skenovanja je u teškoći da se sa dovoljnom preciznošću operacije maskiranja i redjanja vidnih polja izvede geometrijski korektno.

Prednost je u tome da ako je površinska gustina tragova na detektoru konstantna, vidna polja se mogu i delom preklapati.

LITERATURA

1. Nikezić D., Marković P., Bek-Uzarov Đ., Determination of Calibration Coefficient for Radon Measurements Using a Track Detector. Health Physics 64 str 628, 1993.
2. A.A.Sveshnikov. OSNOVI TEORII OSHIBOK Izd. Leningradskogo Universiteta. Leningrad. 1972.
3. A.Z. Rumshinskih. VICHISLITELNII LABORATORNII PRAKTIKUM. Gos. izd. fiz-mat. lit.Moskva.1963.

EFIKASNOST KONCENTRIČNOG SKENOVANJA POVRŠINE TRAG DETEKTORA MIKROSKOPOM

Đordje Bek Uzarov, Dragoslav Nikezić, Dragana Kostić, Dragana Krstić, Olivera Čuknić

Rezime

Brojanje tragova teških naelektrisanih čestica na površini čvrstog trag detektora kružnog oblika, vrši se mikroskopom pomerajući korak po korak kružno polje mikroskopa po povrpšini detektora. Ne postoji način da se celokupna površina detektora prekrije kružnim vidnim poljima, te tako cela površina detektora nije skenovana i deli se na skenovani i neskenovani deo. Odnos neskenovanog prema skenovanom delu površine zove se efikasnost skenovanja tragova. Poznavanje stvarno skenovane površine je vrlo važno zbog tačnog odredjivanja površinske gustine tragova eksponiranog trag detektora.

U radu se predlaže primena matrice koncentričnog kružnog prekrivanja celokupnog polja detektora oko prvog centralnog polja u sredini detektora. Pokazuje se da se na taj način dobija celobrojni broj vidnih polja u vencu što omogućava vrlo precicizno odredjivanje veličine skenovane i neskenovane površine.

Tačno odredjivanje skenovane i neskenovane površine omogućuje i tačnije nalaženje efikasnosti skenovanja kao i tačnije nalaženje površinske gustine tragova - osnovnog parametra u merenjima čvrstim trag detektorom.

Neizvesnosti odredjivanje efikasnosti skenovanja tragova kao i površinske gustine tragova je u radu takodje obradjena.

Ključne reči: skenovanje trag detektora, efikasnost brojanja tragova, skenovanje tragova

EFFICIENCY OF A CONCENTRIC MATRIX TRACK DETECTOR SURFACE SCANNING

Đordje Bek Uzarov, Dragoslav Nikezić, Dragana Kostić, Dragana Krstić, Olivera Čuknić

Abstract

Heavy particle ionizing radiation track counting on the surface of a solid state round surface detector is made using the microscope and scanning step by step by a round field of vision. The whole solid state detector surface could not be fully or complitely covered by round fields of visions. Therefore detector surface could be divided on the two parts, the larger surface, being under fields of vision, really scanned and no scanned missed or omitted surface. The ratio between omitted and scanned surfaces is so called track scanning efficiency. The knowledge of really

counted, or scanned surface is a important value for evaluating the real surface track density an exposed solid state track detector.

In the paper a matrix of a concentric field of vision made around the first microscope field of vision placed in center of the round disc of the scanned track detector is proposed. In a such scanning matrix the real scanned surface could be easy calculated and by the microscope scanning made as well. By this way scanned surface is very precisely obtained as well.

Precise knowledge of scanned and omitted surface allows to obtain more precise scanning efficiency factor as well as real surface track density, the main parameter in solid state track detection measurements.

The uncertainties of scanning efficiency and track density are all so in paper treated.

Key words: track detector scanning, track efficiency counting, track scanning.

Glava IV

Radioaktivnost građevinskih materijala

19.

PRIRODNI RADIONUKLIDI U GRADJEVINSKIM MATERIJALIMA SA OSVRTOM NA NIVO RADONA U STAMBENIM PROSTORIJAMA

Vukašin Radmilović
Savezno ministarstvo za rad, zdravstvo i socijalnu politiku
Bulevar AVNOJ-a 104
11070 Novi Beograd

1. UVOD

Najveći deo izloženosti jonizujućem zračenju stanovništva potiče od prirodnih izvora, kao ozračivanje spolja (eksterno) ili udisanje vazduha, hrane i vode za piće (interno ozračivanje). Prema podacima UNSCEAR-a [1] od "normalne" ukupne doze iz prirodnih izvora od oko 2 mSv/g, na ^{238}U seriju otpada 1,04 mSv, a na ^{232}Th seriju 0,33 mSv/g (tab. 1.). U zemljištu su prisutni: ^{238}U odnosno ^{226}Ra od 10 do 50 Bq/kg i ^{232}Th od 7 do 50 Bq/kg. Tehnološki nepromenjeni prirodni radionuklidi zemljišta u Srbiji su zadovoljavajuće ispitani [2]

Radon (^{222}Rn) je radioaktivni inertan gas, 7,5 puta teži od vazduha. Nastaje raspadom ^{238}U odnosno ^{226}Ra, a toron (^{220}Rn) iz ^{232}Th. ^{222}Rn ima 20 puta jače delovanje od ^{220}Rn. Iz praktičnih razloga oba radona i njihovi potomci se podrazumevaju pod pojmom "radon" [3] Efektivni ekvilibrijum radonovih potomaka od 3 Bq/m^3 odgovara 1,5 Bq/m^3 EER. Radon ima fizičko vreme poluraspada 3,8 dana, vreme polueliminacije iz pluća 30 minuta odnosno u ostalih tkiva 15 minuta. Emituje alfa čestice energije 5,5 MeV.

procena odnosa doze i raka pluća kod stanovništva koje je izloženo udisanju radona i to:

Apsolutna godišnja incidenca raka pluća = 1 do 3 x (C x Fo)/10^6, gde je C prosečna godišnja koncentracija radona u Bq/m^3, a Fo je faktor boravka u stambenim prostorijama koji iznosi od 0 do 1 [4]

Procenjeno je da bi prosečna koncentracija radona od 50 Bq/m^3 mogla da prouzrokuje 10% svih slučajeva raka pluća, a odgovarajuće veće koncentracije bi mogle izazvati i veće rizike. Povećan nivo radona i pušenje mogao bi povećati rizik za red veličine [4]

Koncentracije radona u spoljnom vazduhu su niske i kreću se od 0,3 do 9,6 Bq/m^3 odnosno 3 Bq/m^3 u proseku.

U vazduhu stanova i kuća, zavisno od sadržaja ^{226}Ra u gradjevinskim materijalima i u zemljištu na kome su izgradjeni, ventilacije i nivoa radona u vodi, koncentracije radona se kreću od 5 do 60 Bq/m^3 odnosno prosečno 25 Bq/m^3. Krajem 70-tih godina u švedskoj i Finskoj, a kasnije u SAD i Kanadi izmerene su koncentracije radona u stanovima koje su 5.000 puta odnosno 500 puta prelazile nivoe radona u spoljnom vazduhu [3] Gradjevinski materijali sa povećanim nivoom ^{238}U odnosno ^{226}Ra su: granit, stipsni škriljac, šljaka od kalcijum silikata, gips sa sadržajem fosfora, cigla od aluminijumovog mulja i šljaka iz visokih peći [3]

U Finskoj voda iz dubokih reni bunara sadrži visoke koncentracije radona koje su izazvale njegov nivo od 8.500 Bq/m^3 u kupatilu, a 200 Bq/m^3 u spavaćoj sobi [4]

Tabela 1. Procena izloženosti ljudi prirodnim izvorima radijacije, [1]

Izvor	Prosečna god. efek. ekv. doza (mSv)	Procent (%)
Kosmička i kosmogena		
Spoljna izlož.	0,3	15
Unutraš. izlož.	0,01	0,5
Zemaljska		
Spoljna izlož.	0,06	3
Unutrašnja	0,29	14
Unutraš. izlož. ^{40}K i Rb^{87}	0,19	9
^{238}U serija		
Spolj. inhal.	0,06	3
Unutr. inhal.	0,77	38
Ingestija	0,14	7
^{232}Th serija		
Spolj. inhal.	0,03	1,5
Unutar. inhal.	0,17	9
Ingestija	0,02	1

2. PODACI O PRIRODNIM RADIONUKLIDIMA U GRADJEVINSKIM MATERIJALIMA

U monitoringu radionuklida u životnoj sredini godinama se vrši ispitivanje radionuklida u gradjevinskim materijalima. Iz podataka na tabeli 2. vidi se da je 1992. godine ispitano 13 vrsta gradjevinskih materijala sa ukupno 55 uzoraka. Koncentracija ^{226}Ra, ^{232}Th i ^{40}K bila je zadovoljavajuća u svim uzorcima [5,6] Institut za medicinu rada i radiološku zaštitu "Dr D. Karajović" je proračunao jačinu apsorbovane doze gama zračenja i efektivne ekvivalentne doze za pojedince iz stanovništva koji žive u stanovima od cigle ili betona, što je prikazano na tabeli 3. Prosečna efektivna ekvivalentna doza iz gradjevinskih materijala iznosila je 0,318 mSv/g, a kolektivna efektivna ekvivalentna doza za stanovništvo u Srbiji iznosila je 3.000 čovek. siverta [5]

Marković i sar. su merili ekspozicionu dozu u zatvorenim prostorijama u 40 poslovnih zgrada, stanova i kuća u Nišu, Kragujevcu i Arandjelovcu. Razlika doze unutar, usrednjeno uzeta, je bila oko 0,147 pC/kgs. Najveće vrednosti se prema autorima, mogu očekivati u kućama gradjenim od kamena [7]

Kolektivna efektivna ekvivalentna doza iz prirodnih izvora za stanovništvo Srbije procenjena je 1988. godine na 28.800 čovek. siverta [2]

Tabela 2. Aktivnost radionuklida u gradjevinskim materijalima u Srbiji (mereno 1992.)[5]

Broj građevinskih materijala	Ukupan broj uzoraka	Koncentracija [Bq/kg] (min - maksim.)		
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
13	55	0.4 - 360	0.8 - 108.2	3 - 761.2
Vrste građevinskih materijala		kreč, fosfatni gips	šljaka, pepeo	fosfatni gips, cigla
Dozvoljena koncentracija [Bq/kg]		400	300	5 000

Tabela 3. Proračun jačine apsorbovane doze gama zračenja i efektivne ekvivalentne doze za pojedinca u stanovima od cigle i betona [5]

Vrsta gradjevinskog materijala	Jačina apsorbovane doze	Efektivna ekvivalentna doza
Cigla	0,780 mGy/g	0,436 mSv/g
Beton	0,430 mGy/g	0,240 mSv/g
Prosek:	0,605 mGy/g	0,318 mSv/g

Kolektivna efektivna ekvivalentna doza za stanovništvo Srbije od radionuklida u gradjevinskim materijalima u stanovima iznosi 3.000 čovek siverta/godina.

3. PODACI O RADONU

Prva merenja radona u kućama u okolini Kalne izvršena su 1964. godine kada je izmerena koncentracija od 750 Bq/m^3 [8]

U Pravilniku o monitoringu radioaktivnosti životne sredine iz 1991. godine pripisano je ispitivanje radona u stanovima i kućama u pojedinim gradovima [9]

Na tabeli 4. dati su nivoi radona u stanovima i kućama u Srbiji 1992. godine [5]. Ispitivanje je obavljeno u dnevnoj i spavaćoj sobi stanova u prizemlju, prvom ili drugom spratu kao i u podrumu ukoliko ga zgrade imaju. Od 130 u 19 stanova (14,60%) indikovana je preporuka za sprovodjenje jeftinih mera i u dva stana (1,53%) skupih sanacionih mera. Stanovi i kuće sa većim koncentracijama radona su stari izgradjeni pre više decenija.

Na tabeli 5. dati su nivoi radona u stambenim prostorijama prema ranijim i novim medjunarodnim preporukama [10] Gradjevinski standard za izgradnju novih stanova i kuća je 100 Bq/m^3 radona kao prosečni godišnji nivo, 200 Bq/m^3 za preporuku jeftinih sanacionih mera i 600 Bq/m^3 za preporuku skupih sanacionih mera.

Tabela 4. Koncentracija radona u stambenim objektima u Srbiji 1992. [5]

	<100	100-200	200-400	400-600	>600
Beograd	55	8	10	4	2
Novi Sad	23	2	0	0	0
Knjaževac	6	2	2	0	0
Niš	5	3	2	0	0
Ostala mesta	3	2	1	0	0
Ukupno	92	17	15	4	2
Procenat	70,76	13,07	11,53	3,07	1,53

Tabela 5. Akcioni nivoi koncentracije radona u stambenim prostorijama prema ranijim i novim medjunarodnim preporukama

	Vrsta preporuke	ICRP39, 1984.	SZO, 1985.	Međunar. org. 1994
		Godišnji prosečni nivoi Bq/m^3		
1.	Gradjevinski standard za izgradnju stanova i kuća	100	100	-
2.	Jeftine sanacione mere	200	preko 100	200
3.	Skupe sanacione mere	200*F	preko 400	600

*F = faktor sa vrednošću 2 ili 3.

Sanacione mere su zasnovane na:

- optimizaciji zaštite, tj. "cost-benefit" analizi
- dobrovoljnosti vlasnika odnosno korisnika stanova i kuća

4. MERE ZA REDUKCIJU RADONA

- Terene sa povećanim sadržajem ^{226}Ra (25 do 50 Bq/kg), odnosno sa povećanim nivoom spoljašnjeg gama zračenja treba pažljivo razmatrati pre odluke za izgradnju stambenih objekata na njima;

- Imajući u vidu zdravstveni značaj radona, trebalo bi u Beogradu proceniti broj starih stanova i kuća i stanara u njima i pristupiti u reprezentativnom uzorku ispitivanju koncentracije radona u njima;

- U skladu sa novom preporukom, u stanovima i kućama sa preko 200 Bq/m^3 radona kao godišnji prosek indikovano je predlaganje jeftinih sanacionih mera, a u objektima sa preko 600 Bq/m^3 radona indikovano je predlaganje skupih sanacionih mera od strane tima (arhitekta, dipl. fizičar koji se bavi zaštitom od jonizijućih zračenja i gradjevinski tehničar);

- Od jeftinih mera mogle bi doći u obzir: zaptivanje oštećenja i ispunjavanje pukotina na podu, zidu i medjusobnim spojevima i pored instalacija, oblaganje podova i zidova plastičnim materijalom (poliamid, PVC i dr.), ili premazivanje u tri sloja masnom bojom desetostruko smanjuje emisiju radona;

- U programu štednje energije treba izbegavati rizik od povećanja radona u stambenim i drugim objektima;

- Nove gradjevinske materijale potrebno je sistematski kontrolisati u pogledu nivoa radionuklida i posebno, efikasno kontrolisati gradjevinske i druge materijale iz uvoza (mermer, gips, nove gradjevinske proizvode, fosfor za proizvodnju veštačkih djubriva i dr., tab. 6.);

- Ukoliko se utvrdi veći procenat starih stanova i kuća sa povećanim nivoom radona u njima, trebalo bi u epidemiološke studije raka pluća uključiti i nivo radona u stambenim prostorijama.

Tabela 6. Primeri postojećih i budućih izlaganja prirodnim izvorima jonizujućih zračenja [1]

Primeri postojećih izlaganja na koje se može uticati samo sanacionim merama		Primeri budućih izlaganja koje mogu biti administrativno kontrolisane	
1.	življenje u postojećim kućama	1.	Izgradnja novih kuća
2.	Održavanje postojeće proizvodnje gradj. materija.	2.	Proizvodnja gradj.mat. u novim pogonima
	-	3.	Smanjenje ventilacije (konzervacija energije)
3.	Snabdevanje vodom iz postojećih vodovoda	4.	Snabdevanje vodom iz novih vodovoda
4.	Upotreba vazdušnog saobraćaja na dosadašnji način		-
5.	Sagorevanje prirodnog gasa iz postojećih bušotina	5.	Sagorevanje prirodnog gasa iz novih bušotina
6.	Upotreba djubriva iz postojećih fabrika	6.	Upotreba djubriva iz novih fabrika
7.	Upotreba hrane proizvedene na dosadašnji način		-

LITERATURA

1. ICRP publ. 39 Principles for Limiting Exposure of the Public to Natural Sources of Radiation, Pergamon Press. Oxford, 1984, 1-8.
2. Institut za medicinu rada i radiološku zaštitu "Dr. D. Karajović" i Institut za nuklearne nauke "Vinča" "Zaštita": *Primena jonizijućih zračenja u medicini, poljoprivredi, industriji i uticaj na ozračivanje stanovništva na teritoriji R. Srbije, primenom izvora ovih ozračivanja kao i ozračivanja stanovništva usled černobilskog udesa*, Beograd, novembar 1988, 4-11.
4. WHO, Euro Office: Indoor Air Quality: Radon and Formaldehyde, Copenhagen, 1986, 1-18.
3. UNEP: Radiation, Effects, Risk, Nairobi, 1985, prevod E. časar: Radijacija, efekti, rizik, Nolit, Beograd, 1986, 13-25.
5. Institut za medicinu rada i radiološku zaštitu "Dr. D. Karajović": *Izveštaj o sprovodjenju Programa ispitivanja radioaktivnosti u životnoj i radnoj sredini na teritoriji R. Srbije u 1992. godini*, Beograd, 1993, 46-51, 64-67.
6. Pravilnik o maksimalnim granicama radioaktivne kontaminacije čovekove sredine i o vršenju dekontaminacije, Sl. list SFRJ br. 8/87.
7. Marković P. i sar.: *Merenje ekspozicione doze u zatvorenim prostorijama*, Zbornik radova XIV jugoslovenskog simpozijuma za zaštitu od zračenja, Novi Sad, 8-11.06.1987, 42-44.

8. Hajduković D.: *Trideset godina merenja radona-222 u radnoj i životnoj sredini (1960-1990)*, Zbornik radova XVI jugoslovenskog simpozijuma za zaštitu od zračenja, Neum, 28-31.05.1991, 39-44.
9. Pravilnik o mestima i vremenskim intervalima sistematskog ispitivanja sadržaja radionuklida u životnoj sredini, ranom otkrivanju i obaveštavanju o radioaktivnoj kontaminaciji životne sredine, Sl. list SFRJ br. 84/91.
10. IAEA: International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources, 11. april 1994, 77, 160.

PRIRODNI RADIONUKLIDI U GRADJEVINSKIM MATERIJALIMA SA OSVRTOM NA NIVO RADONA U STAMBENIM PROSTORIJA

Vukašin Radmilović

Rezime:

U radu su dati izvori prirodnog zračenja u gradjevinskom materijalu i posebno diskutovani nivoi radona kao rizik za dobijanje kancera pluća. Takodje su prezentirane granične vrednosti za radon i predložene mere za smanjivanje koncentracija radona.

Ključne reči: Radionuklidi, materijali, radon, mere

TERRESTRIAL RADIATION SOURCES IN DWELLINGS

Vukašin Radmilović

Abstract:

Terrestrial radiation sources in dwellings, especially action level of radon in dwellings as a possible risk for lung cancer are discussed. Previous and new guidelines for action levels for radon and measures for its reduction are presented.

Keywords: Radionuclides, building materials, soil, radon, measures.

20.

ODREDJIVANJE SADRŽAJA PRIRODNIH RADIONUKLIDA U GRADJEVINSKOM MATERIJALU

Dragana Todorović
Institut za nuklearne nauke "Vinča",
Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine,
PP 522,11001 Beograd

Dragana Popović
Veterinarski fakultet, Katedra za fiziku,
Bul.JNA 18,11000 Beograd

Gordana Djurić
Veterinarski fakultet, Katedra za radiologiju i radijacionu higijenu
Bul.JNA 18,11000 Beograd

1. UVOD

U ukupnom ozračivanju stanovništva jonizujuće zračenje u stambenim objektima čini čak do 80% od godišnje doze od oko 2.4 mSv. Ovo zračenje je pre svega rezultat prisustva prirodnih radionuklida u gradjevinskim materijalima koji se koriste u visokogradnji - stambenim i javnim objektima. Najznačajniji su članovi tri radioaktivna niza (U-235, U-238, Th-232) i K-40. U nekim gradjevinskim materijalima sadržaj prirodnih radionuklida je povećan u odnosu na zemljište, na primer u granitu, aluminijumskim škriljcima, vulkanskom tufu itd. U drugim, povećan sadržaj prirodnih radionuklida je posledica korišćenja sekundarnih sirovina iz industrijskih postupaka. Takvi su elektrofilterski pepeo, dobijen sagorevanjem uglja u termoelektranama,

boksitne rude i sl. Upotreba fosfatnog gipsa na primer, može da poveća sadržaj radona u zatvorenim prostorijama i za faktor 102 [1,2].

Proizvedeni radionuklidi, pre svega Cs-137, mogu da se nadju u gradjevinskom materijalu pretežno kao rezultat taloženja iz radioaktivnih padavina na površinske kopove peska, zemlje i sl.

Sistematska merenja radioaktivnosti gradjevinskih materijala i proračun doze zračenja u stambenim objektima u svetu počinju osamdesetih godina. Većina evropskih zemalja, kao i SAD i Kanada, donele su preporuke o interventnim nivoima za doze zračenja u zatvorenom prostoru i koncentraciju pojedinih radionuklida, pre svega radona, u gradjevinskom materijalu, stambenim i javnim objektima. Ovo reguliše i veći broj publikacija i preporuka od strane Medjunarodne zdravstvene organizacije (WHO), Medjunarodne komisije za zaćtitu od zračenja (ICRP), Komisije Ujedinjenih nacija za ispitivanje atomske energije (UNCEAR), Komisije zemalja Evropske zajednice (CEC) i drugih me.djunarodnih i nacionalnih institucija koje se bave ovom problematikom. Prema ovim preporukama, stanovništvo ne bi trebalo godišnje da primi više od 0.7 mSv od zračenja iz gradjevinskog materijala, odnosno ukupni indeks gama zračenja za gradjevinski materijal za najznačajnije radionuklide K-40, Ra-226 i Th-232 ne bi smeo da predje vrednost 1. Većina evropskih zemalja prihvatila je ove preporuke, medjutim Švedska i skandinavske zemlje, zbog klimatskih i geoloških uslova dozvoljavaju znatno veće koncentracije radona u stambenim objektima - za buduću gradnju do 200 Bq/m^3, dok interventni nivo iznosi čak 800 Bq/m^3 [3,4].

U našoj zemlji ne postoje standardi niti metrološka uputstva koja neposredno obradjuju ovu problematiku, iako se ona posredno i delimično obradjuje u zakonskoj i podzakonskoj regulativi koja se odnosi na zaštitu životne sredine, jonizujuća zračenja i nuklearnu instrumentaciju. Osnovni kriterijumi za osnivanje i organizaciju akreditovanih laboratorija regulisani su Zakonom o standardizaciji Sl.list 37/88 i 23/91 i medjunarodnim standardima EN 45001, 45002 i 45011, usvojenih od strane Evropskog udruženja za standardizaciju, u Luksemburgu 1989 godine. Ti kriterijumi daju okvir za prostornu i kadrovsku organizaciju laboratorije, izbor i opis metoda i nuklearnih merila, postupaka za kalibraciju, uzorkovanje i izbor i opis postupaka za proveru kvaliteta dobijenih rezultata i njihovu prezentaciju [5,6].

U tom smislu, cilj ovog rada, koji je radjen u okviru Projekta Fonda za tehnološki razvoj republike Srbije "Razvoj i unapredjenje metrologije, standardizacije i kontrole kvaliteta" (S.6.0052) jeste razmatranje nekih od mogućih izvora grešaka pri odredjivanju sadržaja prirodnih radionuklida u sirovinama za gradjevinski materijal i finalnim proizvodima. Rezultati ovih ispitivanja treba da budu osnova za ustanovljavanje sveobuhvatnog sistema kontrole kvaliteta gradjevinskih materijala sa aspekta radioaktivnosti.

2. MATERIJAL I METODA

Aktivnost prirodnih radionuklida odredjivana je u uzorcima sirovina za gradjevinski materijal (rovni i kvarcni pesak, cement, negašeni kreč, Al prah) i finalnom proizvodu - siporeksu, vrsti lakog (gas) betona koji se koristi u visokogradnji. Uzorci su uzeti na mestu proizvodnje, po metodi slučajnog uzorka,

usitnjeni, homogenizovani i sušeni do konstantne mase na temperaturi od 105°C. Gustina uzoraka je bila 0.3-1.3 g/cm^3. Uzorci su odmeravani u standardne Marinelli posude (0.5 l), koje su zatapane voskom i ostavljane do 30 dana (pre merenja) radi uspostavljanja radioaktivne ravnoteže [7].

Aktivnost radionuklida merena je na dva HPGe detektora (D1 i D2), različitih relativnih efikasnosti (23% i 20%, respektivno), pod istim radnim i ambijentalnim uslovima. Oba detektora se nalaze u kućištima od olovnih cigala (debljina 10 cm), sa slojem bakra (3 mm) i gvoždja (10 mm D1, 6 mm D2) sa unutrašnje strane kućišta. Dimenzije kućišta su 45 cm x 45 cm x 45 cm. Detektori se nalaze na postoljima od drvenih i olovnih ploča, u centru kućišta, na oko 17 cm od zidova. Medjutim, postoje izvesne razlike u konstrukciji zaštite izmedju detektora 1 i detektora 2: gornja površina zaštitnog kućišta detektora 2 je pokrivena dodatnim pokretnim Pb pločama, koje zatvaraju slobodne prostore izmedju cigala.

Energetska kalibracija izvršena je pomoću standardnog niza tačkastih izvora (Coffret d'etalon ECGS-2, Sacle) koji sadrži radionuklide Ba-133, Co-57,60 i Cs-137 (aktivnost reda veličine 10^3 Bq na dan 25.11.1977). Geometrijska efikasnost odredjena je pomoću referentnog radioaktivnog materijala - zemlje, kontaminiranog nizom radionuklida Na-22, Co-57,60, Y-88, Ba-133, Cs-137, aktivnosti izmedju 122-355 Bq/kg (ukupno 1451 Bq/kg na dan 01.07.1991.g.) odredjene sa ukupnom mernom nesigurnošću 5% (National Office of Measures OMH, Budapest) [8].

Aktivnost Ra-226 i Th-232 odredjena je preko njihovih potomaka Bi-214, Pb-214 i Ac-228, Tl-208, respektivno. Aktivnost U-235 je odredjena na energiji od 185,7 keV, sa korekcijom na Ra-226 (186 keV). Korekcija na samoapsorpciju nije vršena, obzirom da nije bilo značajnih razlika izmedju dobijenih koncentracija za Ra-226 i Th-232 na pojedinim linijama spektra [9].

Vreme merenja je bilo od 80.000 do 300.000 s zavisno od ukupne aktivnosti uzorka. Spektar osnovnog zračenja (fon) je sniman jedanput mesečno, tokom cele godine (vreme merenja 250.000 - 400.000 s). Radi ocene kvaliteta merenja, merenja su ponovljena u različitim vremenskim intervalima, zbog sezonskih varijacija u nivou osnovnog zračenja, kao posledica difuzije radona i potomaka iz zemljišta i kroz slojeve vazduha. Ove varijacije mogu iznositi i do 30%, sa maksimalnim vrednostima u oktobru i martu.

Rezultati su statistički obradjeni prema Shauvenet-ovom kriterijumu, na računaru IBM PS-2 (program obrade spektra - Spectran-AT).

3. REZULTATI I DISKUSIJA

Rezultati odredjivanja specifične aktivnosti (Bq/kg) prirodnih radionuklida u sirovinama za gradjevinski materijal i finalnom proizvodu (rovni i kvarcni pesak, cement, negašeni kreč, aluminijumski prah i siporex gas beton) na HPGe detektorima D1 i D2, prikazani su u Tabeli 1. U Tabeli su date srednje vrednosti ponovljenih merenja u toku proleća/leta i jeseni, 1993.godine.

Tabela 1. Aktivnost prirodnih radionuklida (Bq/kg) u gradjevinskom materijalu

Uzorak		U-235	Ra-226	Th-232	K-40
Rovni pesak	D1	0.77±0.08	11.2±0.9	12.0±1.0	219±15
	D2	1.0±0.1	12.0±1.0	12.0±1.0	241±20
Kvarcni pesak	D1	0.42±0.05	4.7±0.5	3.5±0.4	82±6
	D2	0.50±0.04	6.1±0.6	3.7±0.5	87±7
Cement	D1	3.3±0.3	45±3	16±2	212±15
	D2	3.6±0.3	49±4	17±2	238±19
Negašeni kreč+	D1	-	-	-	-
	D2	0.45±0.40	4.3±0.5	1.9±0.3	43±4
Siporex (prah)	D1	0.68±0.07	7.4±0.4	5.1±0.5	108±8
	D2	0.70±0.08	9.4±0.9	5.4±0.6	121±10

+ usled hemijske reakcije u uzorku,došlo je do promene njegove strukture,što je onemogućilo odredjivanje specifične aktivnosti radionuklida.

U uzorcima aluminijumskog praha, koji se u proizvodnji gas betona koristi zbog svoje izuzetne površinske aktivnosti, nisu nadjeni prirodni radionuklidi, što se i očekivalo, obzirom da se radi o tehnološki čistom aluminijumu.

Rezultati prikazani u Tabeli 1. pokazuju da su dobijene vrednosti specifične aktivnosti radionuklida na detektoru 1 manje od istih vrednosti na detektoru 2, koji ima nižu relativnu efikasnost ali bolju konstrukciju zaštite. Razlike iznose 5% i 9% za Th-232 i K-40, respektivno i 15% za Ra-226 i U-235. Razlike ne zavise od nivoa specifične aktivnosti radionuklida i vrste uzorka (građevinski materijal). Dobijene vrednosti se uglavnom nalaze u opsegu aktivnosti prirodnih radionuklida u gradjevinskim materijalima iz naše zemlje i ostalih evropskih zemalja, ili su nešto niže [10,11].

Greška pojedinačnog merenja procenjena je standardnim postupkom aditivnosti i majorizacije grešaka i bila je u opsegu 8-15% zavisno od nivoa aktivnosti uzorka. Najveći doprinos u ukupnoj greški pojedinačnog merenja daju greške u odredjivanju geometrijske efikasnosti (6-8%) i greške odredjivanja odbroja pod fotovrhom (3-4%), dok greške odredjivanja ostalih relevantnih parametara za procenu aktivnosti (masa uzorka, vreme merenja, verovatnoća gama raspada) iznose manje od 1% [12].

Odredjivanje geometrijske efikasnosti pomoću referentnog materijala - zemlje daje zadovoljavajuće rezultate ako se radi o rutinskim merenjima aktivnosti radionuklida u gradjevinskom materijalu. Za preciznija merenja potrebno je ustanoviti sekundarni standard za svaku vrstu gradjevinskog materijala posebno - pesak, cement, kreč, cigla, gas beton - obzirom na razlike u specifičnoj gustini i drugim fizičko-hemijskim karakteristikama (poroznost, veličina čestica, itd.). U tom cilju, u laboratoriji je u toku izrada sekundarnih standarda (referentnih materijala) za gradjevinske materijale na bazi monacita.

Treba takodje napomenuti da su greške odredjivanja odbroja pod fotovrhom, veće kod odredjivanja prirodnih radionuklida nego kod odredjivanja fisionih produkata, obzirom da se aktivnost prirodnih radionuklida odredjuje na energijama spektra osnovnog gama zračenja.

Spektar fona (imp/1000 s) za detektor 1 i detektor 2 prikazan je u Tabeli 2. Spektar je snimljen u oktobru 1993.godine, (vreme merenja 250.000 s, geometrija standardna Marinelli posuda 0.5 l). Zvezdicama su označene energije na kojima je odredjivana aktivnost prirodnih radionuklida u gradjevinskom materijalu. D1/D2 predstavlja odnos odbroja pod fotovrhom za detektor 1 i detektor 2 na datoj energiji i on se ne menja tokom godine, u granicama greške merenja. Pokazalo se da je detektor 2 sa boljom konstrukcijom zaštite manje

Tabela 2. Spektar fona (imp/1000 s) za detektor 1 i detektor 2 (oktobar 1993, 250.000 s)

Radionuklid	E (keV)	D1	D2	D1/D2
Pb-210	46.0	1.2	1.5	0.8
Th-234 *	63.3	5.3	2.2	2.4
PbX	72.8	20	6.5	3.1
PbX	87.0	12	5.3	2.3
Th-234	92.5	5.4	2.2	2.4
U-235*	185.7	7.4	3.3	2.2
Pb-212+	238.6			
Pb-214	+241.5	12.5	6.3	1.9
Pb-214*	295.2	19.4	8.3	2.3
Pb-214*	351.9	32	8.3	3.9
Anihil.	511.0	15	10	1.5
Tl-208*	583.1	1.0	0.6	1.7
Bi-214*	609.3	23	9	2.6
Ac-228*	911.1	0.6	0.5	1.2
Bi-214*	1120.3	4.6	1.5	3.1
Co-60	1173.2	1.9	0.4	4.8
Bi-214	1238.1	1.7	0.7	2.4
Co-60	1332.5	1.6	0.3	5.3
K-40*	1460.8	1.8	1.2	1.5
Bi-214*	1764.5	3.8	1.4	2.7

osetljiv na sezonske varijacije fona, pa se nešto niže vrednosti aktivnosti prirodnih radionuklida u gradjevinskim materijalima dobijene merenjima na detektoru 1, mogu pripisati većim varijacijama fona koje utiču na grešku odredjivanja ukupne aktivnosti.

Dužina merenja može usloviti dodatnu grešku u odredjivanjima aktivnosti prirodnih radionuklida, obzirom da u toku samog merenja može doći do promena fona. Izvor greške predstavlja i usrednjavanje vrednosti fona za duži vremenski period, posebno kod rutinskih merenja.

LITERATURA

1. Djordjević,S.: *Uticaj gradjevinskih materijala u izgradnji stanova na zdravlje*, Zbornik Savetovanja o uticaju gradjevinskih materijala na mikroklimat stambenog prostora, Kanjiža, p.7-15, 1990.
2. Križman,M.: *Izloženost prirodnom zračenju u stambenim prostorijama i problematika povišenih koncentracija radona-222*, Zbornik radova sa Savetovanja o uticaju gradjevinskog materijala na mikroklimat stambenog prostora, Kanjiža, p.24-40, 1990.
3. Fisenne,I.M.: *Long-lived (natural) radionuclides in the environment*, in Final Report from Vth Inter.Symp. on Natural Radiat.Environm., EUR14 411, CEC, p.187-255, Luxembourg, 1993.
4. *Sources and Biological Effects of Ionizing Radiation*, UNCEAR Publ., New York, 1988.
5. Djurić,G., D.Popović, V.Spasić-Jokić: *Kontrola radioaktivnosti gradjevinskih materijala*, Kvalitet,3-4, Beograd, p.29-32, 1993.
6. Popović,D., G.Djurić, D.Todorović: *Standardization of radioactivity monitoring and Control Quality System for Building Materials*, Proceed. 1st Inter.Workshop on Radon Indoor Remedial Action, Rimini, p.67, 1993. (in Radiation Protection Dosimetry, in press).
7. *EML Procedures Manual, HASL-300*, US Energy Dept., New York, 1992.
8. Kandić,A., i sar.: *Interkomparacija poluprovodničkih HPGe detektora*, Zbornik radova XVII sastanka JDZZ,Beograd,p.195-198,1993.
9. Debertin,K., R.G.Helmer: *Gamma ray and X ray spectrometry with semiconductor detectors*, Elsevier Science Publishers, Amsterdam, 1988.
10. Nikezić,D.: *Doprinos eksperimentalnom i teorijskom proučavanju izloženosti pojedinca i stanovništva jonizujućem zračenju u zatvorenim prostorijama*, Doktorska disertacija, Univerzitet u Kragujevcu, 1990.
11. Louizi,A. et al.: *Measurements of natural radioactivity in Greek building materials*, Proceed. 1st Mediterranean Congress on Rad.Prot., Athens, 1994.
12. Šmelcerović,M., G.Djurić, D.Popović: *On sistematic and statistic errors in radionuclides mass activity estimation, in Radiation Protection-Selected Topics*, INS "Vinča", p.476-481, 1989.

ODREDJIVANJE SADRŽAJA PRIRODNIH RADIONUKLIDA U GRADJEVINSKOM MATERIJALU

Dragana Todorović, Dragana Popović , Gordana Djurić

Rezime

Odredjen je sadržaj prirodnih radionuklida (U-235, Ra-226, Th-232, K-40) u sirovinama za gradjevinski materijal (rovni i kvarcni pesak, cement, negašeni kreč, Al prah) i finalnom proizvodu (gas beton-siporex). Aktivnost radionuklida merena je na dva HPGe detektora, različitih relativnih efikasnosti i konstrukcije zaštite.

Koncentracije za U-235 bile su u granicama od 0.42 do 3.6 Bq/kg, za Ra-226, od 4.3 do 12.0 Bq/kg za Th-232 od 1.9 do 17 Bq/kg a za K-40 od 43 do 241 Bq/kg.

Ključne reči: radionuklidi, gradjevinski materijal, spektrometrija gama zračenja, kontrola kvaliteta

CONTENTS OF NATURAL RADIONUCLIDES IN BUILDING MATERIALS

Dragana Todorović, Dragana Popović and Gordana Djurić

Abstract

The contents of natural radionuclides (U-235, Ra-226, Th-232, K-40) in row building materials (simple and quartz sand, cement, unhydrated lime, aluminium powder) and final product (siporex extended concrete) were determined on two HPGe detectors by standard gamma spectrometry. The detectors have different relative efficiences and are placed in differently constructed Pb shieldings.

Key words: radionuclides, building materials, gamma spectrometry, Quality Control

21.

UPOREĐIVANJE GAMA-RADIOAKTIVNOSTI NEKIH GRAĐEVINSKIH MATERIJALA

Stanko Dapčević, PerkoVukotić
Prirodno-matematički fakultet, 81000 Podgorica,Cetinjski put b.b.

1. UVOD

Iskustvo pokazuje da je u otpadnim materijalima nekih vidova industrijske proizvodnje, koncentracija radioaktivnih supstanci često povećana u odnosu na njihovu prosječnu koncentraciju u prirodi. Princip ekonomičnosti u proizvodnji doveo je do savremenih tehnologija, koje ovakav otpad koriste pri proizvodnji novih građevinskih materijala. Propisima u svijetu i kod nas definisane su dozvoljene granice aktivnosti radionuklida u građevinskim materijalima. Maksimalne granice aktivnosti radionuklida u materijalau koji se upotrebljavaju u visokoj gradnji ne smiju biti veše od 400 Bq/kg za Ra-226, 300 Bq/kg za Th-232, 5000 Bq/kg za K-40 i za ukupan zbir vještačkih radionuklida 4000 Bq/kg, pri čemu mora biti

$$\frac{C_{Ra}}{4\cdot10^2}+\frac{C_{Th}}{3\cdot10^3}+\frac{C_K}{5\cdot10^3}+\frac{C_v}{4\cdot10^3}\le 1$$

gdje su C_{Ra}, C_{Th}, C_K i C_v specifične aktivnosti radionuklida [1]. No i pored jasnih uputstava, mije nam poznato, bar što se tiče Crne Gore, da proizvođači građevinskih materijala daju podatke o njihovoj radioaktivnosti. Nije nam takođe poznato da takve

podatke daju ili traže investitori, izvođači radova, ili nadležne inspekcijske službe, niti u formi atesta ovlašćenih institucija, niti u vidu informacije. Za takve podatke, međutim, stanovništvo se sve više interesuje, jer su informacije iz oblasti ekologije sve prisutnije u javnosti. Podaci govore da stanovništvo razvijenih zemalja oko 80% vremena provodi u stanovima i proizvodnim pogonima, kao i da je srednji nivo ozračenosti stanovništva koje živi u stanovima nove tehnologije tri puta viši od doze koju ti stanovnici dobiju za cio život od rendgenskih snimanja i drugih medicinskih ispitivanja uz korišćenje izvora zračenja [2] .

U laboratoriji za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore, nedavno smo postavili metod za određivanje radioaktivnosti krupnih uzoraka merenjem γ zračenja [3]. Metod ne zahtijeva standardni uzorak i daje slobodu izbora geometrije mjerenja. On je poluempirijski. Potrebno je prethodno eksperimentalno odrediti krivu efikasnosti detektora za referentnu geometriju, t.j. za tačkaste izvore na relativno velikom rastojanju od detektora (većem od 15-tak santimetara). Na osnovu poznavanja fizičkih parametara detektora, geometrije snimanja i hemijskog sastava uzorka, kompjuterski program EXTSANGLE izračunava efikasnost detektora za bilo koju geometriju snimanja cilindričnog izvora (uzorka), radijusa manjeg ili većeg od radijusa kristala detektora. Program uzima u obzir slabljenje γ-zraka u svim apsorpcionim slojevima na njihovom putu od mjesta nastajanja do aktivne zone kristala.

Metod smo primijenili na određivanje prirodne γ-radioaktivnosti različitih vrsta građevinskih materijala, sa ciljem da, sa aspekta radiološke bezopasnosti, uporedimo sa "klasičnim" građevinskim blokom materijale urađene od industrijskog otpada .

2. OPIS UZORAKA I METOD MJERENJA

Metodom spektrometrije γ-zračenja analizirali smo tri uzorka: uzorak 1. je "klasični" građevinski blok, izrađen od agregata iz rijeke Morače; uzorak 2. je blok od šljake; uzorak 3. je vatrostalna opeka, preuzeta nakon remonta visoke peći i korišćena za individualnu gradnju.

Neophodna hemijska analiza uzoraka urađena je u laboratoriji Rudnika uglja u Pljevljima. Hemijski sastav uzoraka dat je u Tabeli 1.

Tabela 1. Procentni hemijski sastav uzoraka

	UZORAK 1	UZORAK 2	UZORAK 3
SiO_2	12.00	31.98	69.06
Al_2O_3	2.13	12.70	23.00
Fe_2O_3	1.31	5.07	2.83
CaO	45.17	18.69	0.99
MgO	3.76	5.09	1.01
SO	nije rađen	0.06	nije rađen
O	35.45	22.67	0.45

Uzorci su mehanički sitnjeni, zatim mljeveni u ahatnom mlinu i, nakon prosijavanja do krupnoće zrna manje od 0.8 mm, smješteni u plastične cilindrične posude prečnika 95 mm. Posude su hermetički zatvorene i ostavljene da bi se uspostavila radioaktivna ravnoteža Ra-226 i Bi-214. Mase uzoraka su od 500-800g.

Spektri γ-zračenja uzoraka snimani su 4000-kanalnim spektrometrom. HPGe detektor ima efikasnu zapreminu 91 cm^3, efikasnost 21 %, odnos pik/Compton 52,4:1 i FWHM 1.87 keV (za energiju 1332.51 keV). Spektri uzoraka su mjereni 80-170 ks, zavisno od aktivnosti pojedinog uzorka, a snimani su u istoj geometriji, postavljeni neposredno nad kapom detektora. Spektar γ-fona laboratorije sniman je 130 ks.

3. REZULTATI

Aktivnost radionuklida K-40 urađena je preko g-linije na 1461 keV, aktivnost Th-232 određena je preko g-linija 338 keV i 911 keV radionuklida Ac-228 iz torijumskog niza, a za određivanje aktivnosti Ra-226 iz uran-radijumskog niza korišćene su linije na 295 keV, 352 keV i 609 keV. Pomoću programa EXTSANGLE određeni su odnosi efektivnih prostornih uglova za mjernu i referentnu geometriju i izračunate efikasnosti detektora po metodu opisanom u radu [3] .

Dobijene vrijednosti aktivnosti uzoraka date su u Tabeli 2. Na osnovu rezultata prikazanih u radu [3], može se procijeniti da je tačnost dobijenih vrijednosti za specifične aktivnosti uzoraka bolja od 15%.

Tabela 2. Aktivnosti K-40, Ra-226 i Th-232 u analiziranim uzorcima

Radionuklid	Specifična aktivnost		
	Uzorak 1	Uzorak 2	Uzorak 3
K-40	83	191	557
Ra-226	24	72	318
Th-232	7	48	128

Iz Tabele 2 vidi se da je aktivnost K-40 u uzorcima 2. i 3. u odnosu na uzorak 1. veća za 2.5 odnosno 7 puta respektivno, aktivnost Ra-226 za 3 odnosno 13 puta, a aktivnost Th-232 veća je za 7 odnosno 18 puta. Svi analizirani materijali ispunjavaju uslove za upotrebu u visokoj gradnji, propisane Zakonom. No bez obzira na to, nameće se zaključak da je od ispitivanih materijala "klasični" betonski blok, najpoželjniji materijal za gradnju objekata opšte namjene.

U svakom slučaju, očigledno je da se, sa aspekta zaštite od jonizujućih zračenja, mora voditi računa o izboru građevinskog materijala.

4. ZAKLJUČAK

Donja granica štetnog dejstva jonizujućeg zračenja na žive organizme ne postoji, pa je neophodno da se i najmanje promjene koncentracija aktivnosti

radionuklida u životnoj i radnoj sredini registruju, kvantifikuju i po mogućnosti procijene dugoročni efekti i mogući rizici koji mogu nastati zbog tih promjena. Neophodno je obavezati proizvođače svih građevinskih materijala da se pridržavaju propisanih normi o dozvoljenim granicama aktivnosti radionuklida u njima, t.j. da prije njihovog puštanja u promet moraju pribaviti odgovarajući atest.

LITERATURA

1. Službeni list SFRJ 8/87.
2. Vrednie himičeskie veščestva -radioaktivnie veščestva, izdat. "Himija", Lenjingrad, 1990, str. 11.
3. P. Vukotić, S. Dapčević, S. Jovanović, F. Boreli: "Određivanje aktivnosti krupnih uzoraka primjenom programa "EXTSANGLE", IV Savjetovanje "Izlaganje stanovništva Jugoslavije jonizujićem zračenju iz prirode", Beograd, 21-22.06.1994 god.

UPOREĐIVANJE GAMA-RADIOAKTIVNOSTI NEKIH GRAĐEVINSKIH MATERIJALA

Stanko Dapčević, Perko Vukotić

Rezime:

Izmerene su specifične aktivnosti radionuklida u različitim gradjevinskim materijalima koji su dobijeni preradom nekih industrijskih otpadnih materijala. Dobijene vrednosti aktivnosti K-40, Ra-226 i Th-232 su uporedjene sa vrednostima za klasični betonski blok.

Ključne riječi: prirodna radioaktivnost, građevinski materijali.

COMPARISON OF GAMMA-RADIOACTIVITIES IN SOME BUILDING MATERIALS

S. Dapčević, P. Vukotić

Abstract

There are today on the market various building materials, which are made of industrial waste products. Specific activities of the radionuclides K-40, Ra-226 and Th-232 in two of such materials are analyzed, and compared to the corresponding ones in a "classic" concrete block.

Key words: natural radioactivity, building materials.

Glava V

Metode merenja prirodnih radionuklida

22.

SPECIFIČNI PROBLEMI MERENJA PRIRODNIH RADIONUKLIDA

Ištvan Bikit, Jaroslav Slivka, Ljiljana Čonkić, Miodrag Krmar
Institut za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu
Trg Dositeja Obradovića 4,21000 Novi Sad

1. UVOD

U eri napretka nuklearne tehnologije, proizvodnje veštačkih radionuklida, intenzivnijeg korišćenja nuklearne energije, pa i akcidentalnih situacija na nuklearnim postrojenjima praćenih kontaminacijom velikih naseljenih regiona, pažnja javnosti svakako nije fokusirana na problem prirodne radioaktivnosti. Sa stanovišta potrebe da se kontroliše izlaganje stanovništva jonizujućem zračenju to nikako nije opravdano, jer u normalnim uslovima pretežni deo doze zračenja koje stanovništvo prima potiče ipak iz prirodnih izvora. Već sama ova činjenica je dovoljan argument da se merenju prirodne radioaktivnosti posveti odgovarajuća pažnja, pa će u ovom pregledu biti pobrojani zadaci koji se rešavaju merenjem prirodne radioaktivnosti, zatim metode i tehnike merenja prirodne radioaktivnosti, kao i problemi koji te metode i tehnike prate. Nešto opširnije biće tretirana primena γ-spektroskopije u merenju prirodne radioaktivnosti.

Oblasti nauke i prakse čiji se zadaci rešavaju merenjem aktivnosti prirodnih radionuklida mogu se svrstati u sledeće kategorije

a)kontrola izloženosti stanovništva zračenju iz prirodnih izvora u nativnom stanju,

b)kontrola izloženosti stanovništva zračenju zbog tehnološki povišenih nivoa prirodne radioaktivnosti,

c)praćenje i proučavanje procesa transporta prirodnih radionuklida,

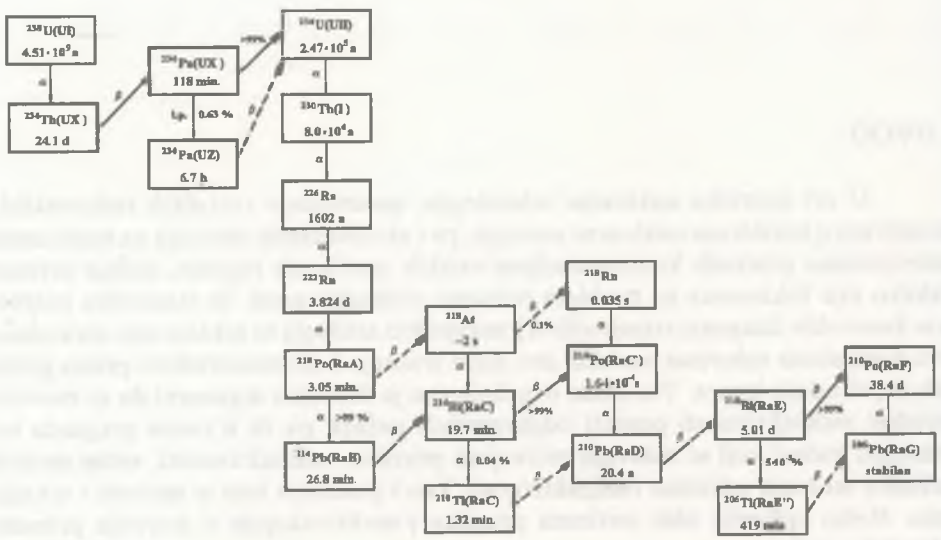
d)radioaktivno datiranje,

e)karakterizacija tipova minerala u geofizici i geologiji, kao i minerala sa meteorita i drugih nebeskih tela,

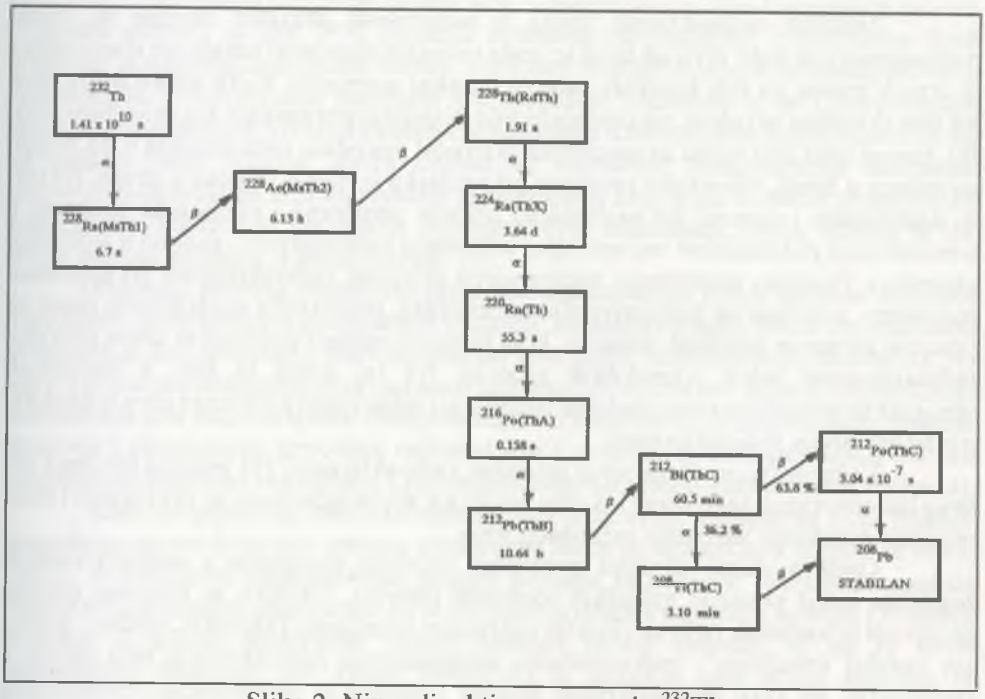
f)lociranje, snimanje, kartiranje i eksploatacija ležišta ruda uranijuma i torijuma,

g) prerada rude radi dobijanja uranijumovog i torijumovog koncentrata.

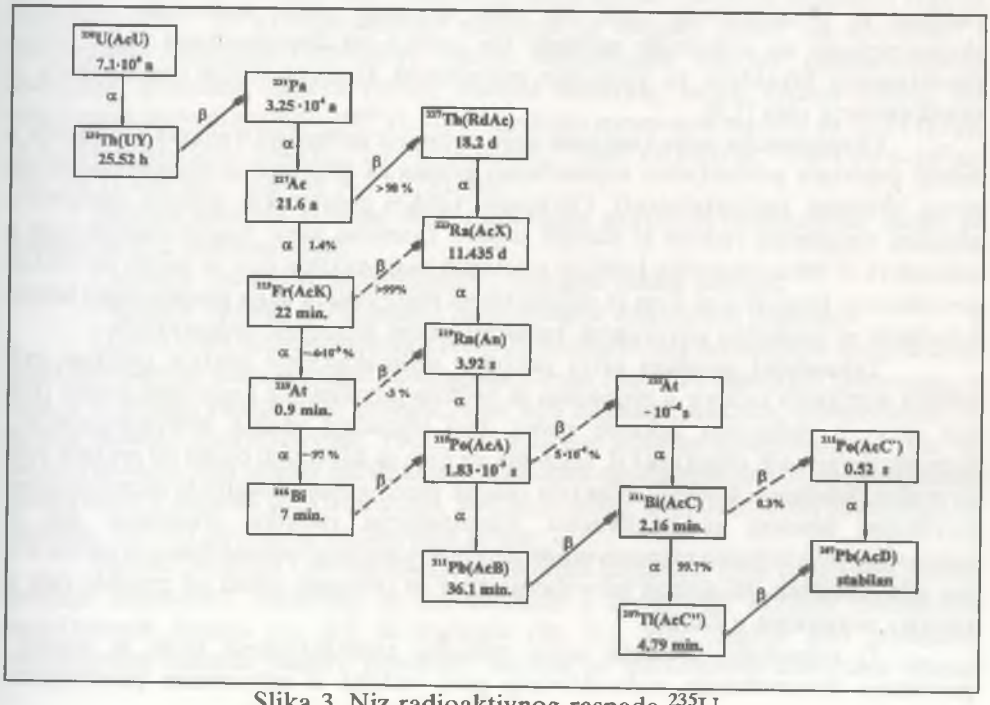
U zračenje iz prirodnih izvora u nativnom stanju (a) ubrajamo kosmičko zračenje i zračenje terestrijalnih izvora u prirodnoj sredini. Kod ovog drugog dominantnu ulogu igra jonizujuće zračenje koje nastaje prilikom radioaktivnog raspada jezgara nekih nestabilnih nuklida sa kraja periodnog sistema elemenata, pri čemu nastaju tri prirodna radioaktivna niza: uranijumov (rodonačelnik ^{238}U, maseni broj A=4n+2, predstavljen na sl.1.), torijumov (rodonačelnik ^{232}Th, A=4n, sl.2.) i uranijum-aktinijumov niz (rodonačelnik u prirodi ^{235}U, A=4n+3, sl.3.), od kojih je ovaj poslednji daje vrlo slab doprinos zbog male zastupljenosti. Značajan izvor prirodnog radioaktivnog zračenja zbog učešća svojih odgovarajućih elemenata u životnim procesima predstavljaju još i nestabilni izotopi kalijuma ^{40}K i vodonika ^{3}H.



Slika 1. Niz radioaktivnog raspada ^{238}U



Slika 2. Niz radioaktivnog raspada ^{232}Th



Slika 3. Niz radioaktivnog raspada ^{235}U

Zračenje radioaktivnih izvora iz nenarušene prirodne okoline se obično podrazumeva za nulti nivo od koga se onda računaju doprinosi ozračenju stanovništva iz drugih izvora, za čiju kontrolu postoje detaljni normativi. Kako efekti malih doza još nisu dovoljno istraženi, od značaja bi bilo detaljnije poznavanje tog prirodnog fona, čiji, barem onaj deo vezan za specifičnu aktivnost prirodnih radionuklida u tlu, beleži, na primer u Srbiji, višestruke promene pri prelasku iz jednih regiona u druge. Na ovo se nadovezuju i sigurno još nedovoljno izučene prostorne i vremenske promene u koncentraciji potencijalno najopasnijeg prirodnog radionuklida - radona u slobodnoj atmosferi. Precizno poznavanje nultog nivoa prirodne radioaktivnosti po pojedinim regionima, posebno na poljoprivrednom zemljištu, predstavlja nezaobilazni osnov za procenu promene zatečene situacije, koja bi mogla nastati poećanjem nivoa prirodne radioaktivnosti usled tehnoloških procesa. Na taj način bi bilo u budućnosti omogućeno proračunavanje dodatne izloženosti stanovništva zračenju zbog tehnološki povišenih nivoa radioaktivnosti.

Tehnološki povišeni nivoi prirodne radioaktivnosti (b) postaju predmet sve šireg interesovanja, iako samo lokalno povišenje nivoa uglavnom ne prevazilazi i inače prisutne prostorne varijacije prirodnog fona.

Ovde možemo ubrojati povećanje sadržaja uranijuma u poljoprivrednom zemljištu usled primene veštačkih fosfornih đubriva. Ukoliko se fosforno đubrivo proizvodi iz fosfatnih ruda sa visokim sadržajem uranijuma (Maroko, Jordan), gotovo sav sadržaj uranijuma - rodonačelnika uranijumovog radioaktivnog niza prelazi u superfosfat, pa tako poljoprivredni regioni (zajedno sa površinskim i podzemnim vodama) postaju oblasti malog, ali trajnog povećanja prirodne radioaktivnosti. Nuzprodukt proizvodnje superfosfata - fosfogips u istom procesu nosi sa sobom radijum iz uranijumovog niza, pa tako deponije ovog materijala, uglavnom skoncentrisane na pojedinim mestima (za razliku od dispergovanog superfosfata) predstavljaju lokalitete sa primetno povećanom koncentracijom radionuklida iz uranijumovog niza [1,2].

Eksploatacija uglja i njegovo sagorevanje u termoelektranama predstavlja u našim uslovima potencijalno najznačajniji proces za stvaranje tehnološki povišenih nivoa prirodne radioaktivnosti. Otvaranje velikih površinskih kopova omogućava ubrzanu emanaciju radona iz dubljih slojeva Zemljine kore. Sagorevanjem uglja u atmosferu se izbacuju velike količine prirodnih radionuklida koje se talože na velikim površinama. Pepelišta na koja se odlažu ostaci sagorevanja uglja predstavljaju takođe lokalitete sa primetno povećanom koncentracijom prirodnih radionuklida.

Tehnološki povišeni nivoi prirodne radioaktivnosti nastaju prilikom svih velikih zemljanih radova: u rudnicima sa velikim površinskim kopovima uopšte (kod nas napr. u rudnicima bakarne rude), kod izgradnje velikih hidroenergetskih i hidromelioracionih objekata i sl. Jalovišta na koja se deponuju ostaci od prerade rude sa malim sadržajem korisnih minerala takođe predstavljaju lokalitete sa potencijalno povišenim nivoom radioaktivnosti. Eksploatacija rudnika uranijuma, gde se manipuliše potencijalno najmasivnijim izvorima prirodnog radioaktivnog zračenja, kod nas nije aktuelna, ali postoji jalovište na koje su odlagani ostaci od prerade rude iz rudnika uranijuma u Kalni.

U tehnološki povišene nivoe prirodne radioaktivnosti može se uvrstiti i povećanje koncentracije radioaktivnog gasa radona u zatvorenim prostorijama.

Procenjuje se da radon učestvuje sa oko 50% u individualnoj dozi koja potiče od svih prirodnih izvora i sa oko 75% godišnje efektivne ekvivalentne individualne doze primljene iz terestrijalnih izvora uopšte. Veći deo te doze dobija se inhalacijom ovog radionuklida, u zatvorenom prostoru, gde se radon, emaniran iz tla i građevinskih materijala nagomilava. Stvarna koncentracija radona u zatvorenim prostorijama zavisi od velikog broja faktora, među kojima su najvažniji: koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida u građevinskim materijalima koji ulaze u sastav građevinske konstrukcije, koeficijent emanacije radona iz ovih materijala, dotok radona iz tla, brzina izmene vazduha u prostoriji itd. [3].

Praćenje procesa transporta prirodnih radionuklida (c), u realnim uslovima u zemljištu, površinskim i podzemnim vodama, atmosferi prema živim organizmima nemoguće je bez preciznog merenja obično vrlo malih koncentracija aktivnosti. Na osnovu podataka dobijenih ovakvim merenjima mogu se stvarati modeli translokacije radionuklida pod odgovarajućim fizičko-hemijskim uslovima sa krajnjim ciljem procene usvajanja i akumulacije prirodnih radionuklida u pojedinim karikama lanca ishrane i konačno u ljudskom organizmu i proračuna odgovarajućeg radijacionog rizika [4].

Kako je poluživot radioaktivnih jezgara date vrste veličina na koju fizičko-hemijske promene kroz koje prolaze elementi u čijem su ona sastavu uopšte ne utiču, i pošto se poluživoti radioaktivnih jezgara poznaju sa velikom preciznošću, zakon radioaktivnog raspada omogućuje da se na osnovu odnosa polaznog izotopa i krajnjeg produkta u nekom materijalu odredi polazno vreme raspada, tj. da se izvrši radioaktivno datiranje (d). Pored poteškoća u merenju vrlo malih količina ili aktivnosti, kod metoda radioaktivnog datiranja značajne probleme predstavljaju pretpostavke o polaznom izotopskom sastavu datiranog materijala. Zahvaljujući tome što je poluživot veličina koja kod različitih jezgara uzima vrlo širok dijapazon redova veličina (10^{-20}s - 10^{20}a), radioaktivno datiranje je moguće počev od istorijskih i preistorijskih događaja (10^{2}-10^{3}a), preko određivanja starosti paleontološkog materijala, geoloških slojeva (10^{6}a), starosti minerala, stena, rudnih ležišta, do određivanja starosti svemira (10^{10}a). Ovde možemo spomenuti metode sa ^{3}H/H (12a), ^{14}C/C (5.6·10^{3}a), He/U, He/Pb, ^{235}U/^{238}U (4.5·10^{9}a), ^{207}Pb/^{206}Pb (~10^{9}a), ^{204}Pb/^{206}Pb (~10^{10}a), ^{40}K/^{40}Ar (1.3·10^{9}a), ^{87}Rb/^{87}Sr (4.7·10^{10}a) itd.

Metode merenja količine ili koncentracije prirodnih radionuklida mogu se podeliti na dve osnovne vrste:

- metode vezane za identifikaciju i brojanje samih nuklida,
- metode vezane za brojanje i identifikaciju nuklearnih događaja.

U prvu vrstu možemo ubrojati sve radiohemijske mikroanalitičke metode koje mogu biti uspešne kada se radi o razdvajanju atoma različitih hemijskih elemenata, a kada je u pitanju razdvajanje izotopa, osim kod najlakših nuklida, nezaobilazne su metode masene spektrometrije. Preciznost klasične masene spektrometrije, gde se naelektrisavanje jona postiže uklanjanjem nekolicine spoljašnjih elektrona, prevazilazi akceleratorska masena spektrometrija, kod koje može, u zavisnosti od primenjenog ubrzanja, doći do potpunog ogoljavanja jezgra.

Metode brojanja i identifikacije nuklearnih događaja, koje će se ovde jedine opširnije razmatrati, zasnivaju se na detekciji i registraciji efekata interakcije naelektrisanih čestica (α-, β-) ili zračenja (γ-, X-), koje nastaje kao posledica radioaktivnog raspada jezgara pojedinih nuklida sa materijalom detektora. Pored

brojanja pojedinačnih akata raspada, moguće je i određivanje vrste emitovanih čestica/zračenja, njihove energije, pa time i identifikacija pojedinih radionuklida u njihovoj smeši (spektroskopija čestica/zračenja). Poznavajući aktivnost uzorka ili preparata A (broj raspada u jedinici vremena) uvek je moguće izračunati broj prisutnih radioaktivnih jezgara N, naravno, uz preduslov da je poznata verovatnoća raspada - dezintegraciona konstanta λ ili sa njom direktno povezan poluživot T

$$A = N\lambda = N\frac{\ln 2}{T}$$

Prirodne radionuklide delimo u dve velike grupe, one sa rednim brojem $Z \leq 83$, koji uglavnom nisu međusobno povezani, i čiji pregled je dat u tab.1 [5], i one sa $Z > 83$ koji su članovi tri napred spomenuta prirodna radioaktivna niza.

Tabela 1. Prirodni radionuklidi sa $Z \leq 83$

Izotop	Tip raspada	Period poluraspada
^{3}H	β^-	12.3 a
^{7}Be	K-zahvat,	53.3 d
^{10}Be	β^-	$1.6\ 10^{6}$ a
^{14}C	β^-	$5.73\ 10^{3}$ a
^{22}Na	β^+,γ	2.60 a
^{32}Si	β^-	104 a
^{33}P	β^-	25.3 d
^{35}S	β^-	87.5 d
^{36}Cl	β^-	3.01 a
^{37}Ar	β^-	35 d
^{40}K	β^-, K-zahvat, γ	$1.28\ 10^{9}$ a
^{50}V	β^-	$1.3\ 10^{17}$ a
^{82}Se	β^-	$> 1.4\ 10^{20}$ a
^{85}Kr	β^-	10.7 a
^{87}Rb	β^-	$4.8\ 10^{10}$ a
^{113}Cd	β^-	$>9\ 10^{15}$ a
^{115}In	β^-	$4.4\ 10^{14}$ a
^{123}Te	K-zahvat	$> 10^{13}$ a
^{130}Te	β^-	$2.5\ 10^{21}$ a
^{138}La	β^-, K-zahvat	$1.06\ 10^{11}$ a
^{144}Nd	α	$2.1\ 10^{15}$ a
^{147}Sm	α	$1.06\ 10^{11}$ a
^{176}Lu	β^-	$3.59\ 10^{10}$ a
^{187}Re	β^-	$4.6\ 10^{10}$ a
^{190}Pt	α	$6.0\ 10^{11}$ a

2.STANDARDNI PROBLEMI BROJAČKO-SPEKTROSKOPSKIH METODA MERENJA

Kao merne metode uopšte, i brojačko-spektroskopske metode merenja prirodne radioaktivnosti propraćene su nizom problema zajedničkih za ovu oblast. Ovde na prvom mestu ubrajamo problem reprezentativnosti uzorka. Osim generalnih statističkih zahteva, uzorkovanje mora zadovoljiti čitav niz specifičnih zahteva radi obezbeđivanja komparativnosti rezultata merenja, koja se vrše u različite svrhe. Za pojedine tipove uzoraka iz prirodne sredine, ili hrane, na primer, u literaturi postoji čitav niz detaljno razrađenih preporuka [6,7]. Sasvim je specifično uzorkovanje, na primer, vazduha iz atmosfere (aerosol filtracija).

Pripremu uzorka za merenje treba tretirati kao izvor moguće greške, koja kasnije ne može biti eliminisana ni najpažljivijim merenjima na pouzdanom detektoru/spektrometru. U tom smislu imaju prednost nativni uzorci, ako je koncentracija aktivnosti radionuklida dovoljno velika, odn. ako je granica detekcije instrumenta dovoljno niska. Kod čvrstih uzoraka koji sadrže mnogo vode znatno koncentrisanje se može postići već samim sušenjem na 105°C, što neće poremetiti sadržaj nijednog prirodnog radionuklida, osim tricijuma i radona. Kako i najjednostavnija priprema voluminoznih uzoraka pretpostavlja homogenizaciju, dakle, mrvljenje, sprašivanje, mešanje, radon ne može ostati u potpunoj ravnoteži sa radioaktivnim nizom ni u kom slučaju. Ipak, naknadna ravnoteža se može postići hermetičkim zatvaranjem uzorka pre merenja na vreme od oko 10 poluživota, što za ^{222}Rn iznosi oko 40 d. Kod osušenih rastresitih materijala, kao što su, na primer, uzorci biljaka, dalje koncentrisanje, odn. smanjenje zapremine može se postići kompresijom [8].

Radikalnije koncentrisanje radionuklida postiže se kod organskih uzoraka žarenjem. Ovde je potreban oprez zbog mogućnosti stvaranja volatilnih jedinjenja, za šta opet postoji niz prihvaćenih preporuka za različite uzorke i radionuklide od interesa. Ako je neophodno razlaganje organskih materijala na nižim temperaturama, koristi se postupak tzv. mokrog spaljivanja. Kod vode i vodenih rastvora moguće je potpuno uparavanje do suvog ostatka, gde se prednost, upravo kod prirodnih radionuklida, daje evaporaciji u zatvorenom sistemu (rotacioni evaporator), nad klasičnim postupkom zagrevanja sa velikom otvorenom površinom. Koncentrisanje tricijuma postiže se frakcionom destilacijom i elektrolizom.

Postupak uparavanja za veće količine tečnosti je skup u dugotrajan. Prekoncentracija vodenih rastvora se može postići i različitim fizičko-hemijskim postupcima, kao što je recimo kolekcija radionuklida na jonoizmenjivačkim smolama, ili čisto hemijskim postupcima, kao što je koprecipitacija sa nosačima. Radon se kolektuje adsorpcijom na aktivnom uglju. Da bi se kod ovih postupaka izbegla greška, neophodno je poznavati prinose ovakvih procedura, a njihove eventualne varijacije uračunati u mernu nesigurnost konačnog rezultata merenja. Efikasna zajednička prekoncentracija radionuklida često nije moguća zbog uzajamno ometajućih reakcija, ili nije poželjna zbog nemogućnosti detektora da razlikuje zračenje pojedinih radionuklida i tada se pristupa njihovoj radiohemijskoj separaciji.

3. STANDARDNI PROBLEMI DETEKCIJE I SPEKTROSKOPIJE NAELEKTRISANIH ČESTICA

Ukratko ćemo razmotriti probleme detekcije/spektroskopije naelektrisanih čestica, α- i β- zraka [9]. Spektri α-zraka su linijski i karakteristični za pojedine radionuklide, što je veoma povoljno za identifikaciju radionuklida u α-spektroskopiji. Međutim, prodornost α-čestica kroz materijale je vrlo mala, tako da je procedura pripreme od uzorka do izvora α-zraka pogodnog za spektrometriju, koji mora biti veoma tanak, dosta složena i vezana za hemijske reakcije čiji prinos može biti problematičan. Pošto su i energija čestica i spektralni intenzitet funkcije debljine materijala kroz koji čestica mora da prođe da bi stigla u detektor, potrebne su opsežne korekcije kod kvantitativnog određivanja radionuklida u α-spektrometriji. Posebno je kod multiizotopske analize niskoaktivnih prirodnih izvora razlličitog hemijskog sastava primenljivost α-spektroskopije ograničena.

Prodornost β-čestica je znatno veća, tako da su problemi pripreme "tankog" uzorka sa tog stanovišta manji, ali su spektri β-zraka kontinuirani. Položaji maksimuma energije u spektrima su, doduše, karakteristični za različite radionuklide, ali je analiza spektara koji potiču od različitih radionuklida u većini slučajeva praktično nemoguća. Zato je hemijska separacija radionuklida kod pripreme izvora za detekciju β-čestica od velikog značaja, dok je energijska rezolucija β-čestica u drugom planu.

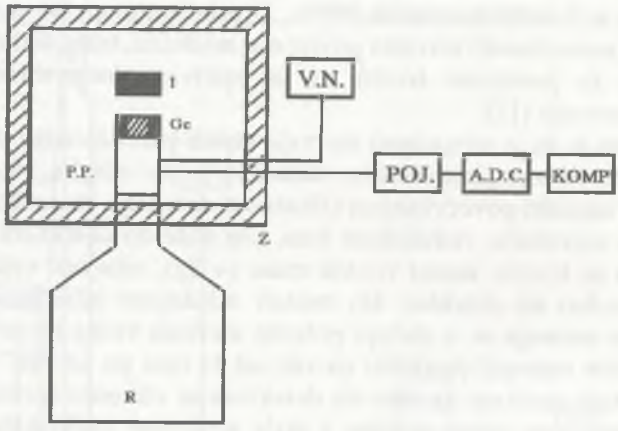
Svi ovi problemi detekcije/spektrometrije naelektrisanih čestica čine određivanje koncentracije aktivnosti radionuklida preko α- i β-čestica relativno manje pouzdanim, pa se, gde god je to moguće, koncentracija aktivnosti određuje γ-spektrometrijskom metodom [10].

4. STANDARDNI PROBLEMI γ–SPEKTROMETRIJE

Određivanje koncentracije aktivnosti radionuklida γ-emitera registracijom energije i intenziteta emitovanih γ-kvanata (γ-spektrometrija) ima niz neospornih prednosti nad detekcijom/spektrometrijom α- i β-čestica. Od početka industrijske proizvodnje visokorezolucionih γ-spektrometara velike osetljive zapremine tehnika γ-spektrometrije postaje dominantna univerzalna tehnika za merenje koncentracije jezgara γ-emitera [11] pretežno zbog toga jer se prihvatljivi pragovi detekcije mogu postići bez ikakvog hemijskog tretmana uzorka.

Važna prednost γ-spektrometrije je činjenica da γ-zraci imaju veliku prodornu moć i da ne postoji ograničeni domet γ-zraka, kakav imamo kod naelektrisanih čestica. Stoga izvor može biti velikih dimenzija, a uz određeni faktor, γ-zraci iz svih delova voluminoznog izvora mogu da doprinesu efikasnoj detekciji. Ova prednost pretvara se u nedostatak u jednom aspektu: zaštita detektora od upadnog zračenja iz okoline je mnogo teža nego u α-spektroskopiji.

Blok šema savremenog poluprovodničkog γ-spektrometarskog sistema je prikazana na sl.4.



Slika 4. Blok šema savremenog poluprovodničkog γ-spektrometarskog sistema. I-izvor, Ge-kristal germanijuma, PP-pretpojačivač, POJ-pojačivač, ADC-analogno-digitalni konertor, KOMP-kompjuter za obradu i čuvanje podataka, R-rezervoar za tečni azot, Z-zaštita od zračenja okoline

Energija γ-zračenja emitovanog iz izvora se u kristalu Ge transformiše u električne impulse čija je visina proporcionalna energiji predatoj kristalu. Ovi signali se preko pretpojačivača vode u glavni pojačivač. Nakon digitalizacije u ADC, signal se registruje u memoriji kompjutera. U spektrlanoj oblasti 20-3000 keV se informacija o energiji i intenzitetu γ-zračenja dobija putem procesa u kojima se totalna energija γ-kvanata deponuje u kristalu Ge. U registrovanom spektru položaj vrha totalne apsorpcije odgovara energiji zračenja, a njegova površina broju registrovanih γ-kvanata, odnosno intenzitetu zračenja. Iz čiste površine karakteristične γ-linije P_u koncentracija aktivnosti A_m u uzorku određuje se pomoću formule

$$A_m = \frac{P_u / t_u - P_f / t_f}{\epsilon I_\gamma m}$$

gde su m masa uzorka, P_f površina vrha totalne apsorpcije od zračenja okoline (fona), t_u, t_f vremena snimanja uzorka (u) i fona (f), ε efikasnost detekcije, a I_γ broj γ-kvanata po jednom radioaktivnom raspadu.

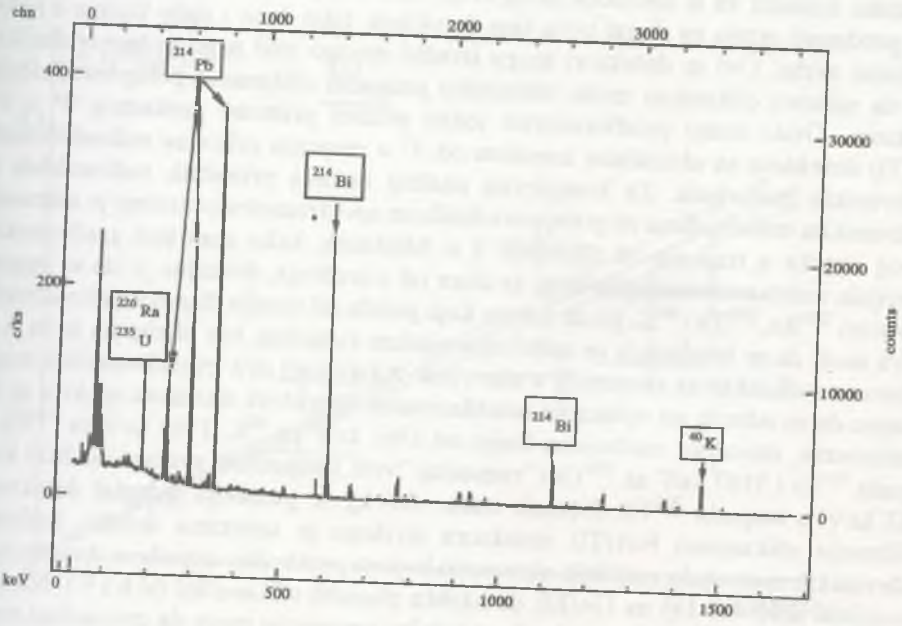
Pri analizi formule 1 treba da se pođe od činjenice da su i radioaktivni raspad i akt detekcije γ-zraka statistički procesi. Znači, P_u i P_f su statističke veličine čije se standardne devijacije mogu proceniti kao $\sigma(P_u) \approx \sqrt{P_u}$ odnosno $\sigma(P_f) \approx \sqrt{P_f}$. Jasno je da i izmerena koncentracija aktivnosti ima statističku prirodu odnosno neizbežnu statističku grešku. Kompletan rezultat γ-spektrometrijskih merenja se piše u obliku $A_m = a_m \pm n\sigma(a_m)$, gde je a_m srednja vrednost rezultata a $\sigma(a_m)$ njegova standardna devijacija. Parametrom n se određuje "nivo poverenja" (confidence level) iskazane statističke

greške. Za n=1 verovatnoća da se prava vrednost nalazi u intervalu ± greške iznosi 68.3%, dok je za n=3 ova verovatnoća 99.7%. U principu se greške mogu iskazati sa proizvoljnim (ali naznačenim) nivoima poverenja, međutim, samo u slučaju kada je $a_m > 3\sigma(a_m)$ može se pouzdano tvrditi da je ispitivana koncentracija aktivnosti registrovana u merenju [12].

Očigledno je da je mogućnost merenja niskih koncentracija aktivnosti bitno zavisna od mogućnosti smanjenja relativne statističke greške $\sigma(a_m)/a_m$. Statistička greška merenja može se smanjiti povećavanjem efikasnosti detekcije, mase uzorka i vremena merenja i, što je najvažnije, redukcijom fona koji stiže do detektora. Kod merenja niskih aktivnosti se koriste uzorci velikih masa (≈ kg), odnosno velike zapremine, smešteni neposredno uz detektor, što znatno usložnjava određivanje efikasnosti detekcije. Vreme merenja se u slučaju potrebe merenja većeg broja uzoraka retko može (iz praktičnih razloga) produžiti na više od 24 časa po uzorku.

Dospevanje zračenja okoline do detektora se efikasno sprečava tek slojem apsorpcionog materijala velike gustine i male sopstvene radioaktivnosti (pasivna zaštita). Za izradu zaštitne komore najčešće se koristi olovo ili gvožđe. Za detekciju γ-zračenja niskih energija (ispod 100 keV) su najpogodnije gvozdene zaštite velike zapremine. U ovakvim komorama ne postoji karakteristično X-zračenje olova i minimalno je rasejanje zračenja iz izvora od zidova komore, što inače takođe podiže kontinum u niskoenergijskom delu merenog spektra. Ovakve komore imaju, međutim, taj nedostatak da može doći do nakupljanja radioaktivnog gasa radona u velikoj zapremini komore, što predstavlja poseban problem ne samo sa stanovišta povećanja fona nego i njegove stalnosti u uslovima dugotrajnih merenja. U komoru velike zapremine se može smestiti i aktivna (antikoincidentna) zaštita [13]. Autori imaju pozitivno iskustvo sa komorom od gvožđa livenog pre početka atmosferskih nuklearnih proba, sa korisnom zapreminom od 1m x 1m x 1m i zidovima debljine 25 cm, koja na HPGe detektoru efikasnosti 25% ima integralni fon u intervalu 30 keV do 3 MeV od oko 1.5 impulsa/s.

Visoka rezolucija poluprovodničkih spektrometara omogućuje vrlo pouzdano određivanje energija γ-prelaza, što je preduslov za uspešnu identifikaciju radionuklida u njihovoj smeši. Energijska kalibracija spektrometra izvodi se najbolje pomoću multiizotopskih kalibracionih izvora sa mnogo γ-linija, jer odstupanje od linearnosti energijske kalibracije može biti za red veličine veće od širine linije. Poseban problem predstavlja stabilnost spektrometarskog sistema u toku dugotrajnih merenja, jer i malo "šetanje" pojačanja dovodi do degradacije rezolucije spektrometra. Jasno je da se pouzdanost i tačnost rezultata merenja povećava ukoliko se koncentracija aktivnosti radionuklida u uzorku određuje iz što više analitičkih linija, odnosno ako se za dobijanje rezultata iskoriste sve spektralne informacije. U slučaju merenja raspada prirodnih nizova uranijuma treba odrediti površine vrhova totalne apsorpcije za oko 100 linija od kojih su mnoge dubleti (sl.5.). Jasno je da se ovakvo merenje ne može obaviti bez sofisticiranih kompjuterskih rutina. Mada danas postoje komercijalni programi visokog stepena automatizacije (MICROSAMPO firme Canberra, OMNIGAM firme ORTEC itd.), njihova primena za merenje niskih aktivnosti bez dodatnih kontrolnih rutina (na primer energijska samokalibracija svakog obrađenog spektra) i bez kontrole pojedinih faza obrade (na primer razlaganja multipleta) može prouzrokovati ozbiljne analitičke greške.



Slika 5. Deo spektra γ-zraka zemlje iz Kalne (fon nije oduzet)

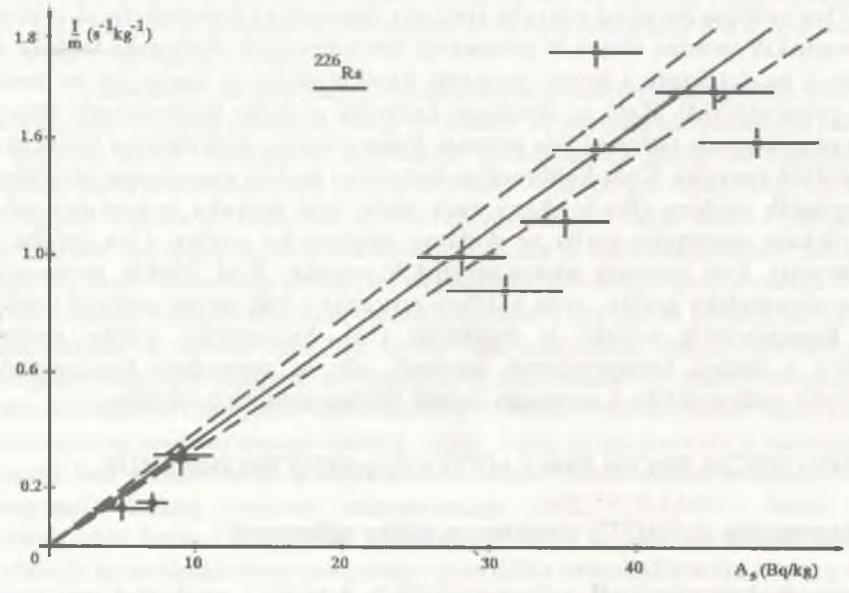
Kao što je već rečeno, određivanje efikasnosti detekcije ε za voluminozne uzorke je problematično i najčešće doprinosi sistematskoj greški apsolutnih merenja sa oko 10%. Ova veličina zavisi od energije zračenja, dimenzija i konstrukcije detektora i fizičko-hemijskih osobina izvora te geometrije izvor-detektor. Računske tehnike za određivanje ε za detektore i izvore poznatih karakteristika se danas još ne mogu pouzdano primeniti [14]. Zato se detektori kalibrišu pomoću kalibracionih izvora, materijala sa primesom radionuklida poznate koncentracije, koji emituju veliki broj γ-zraka različitih energija. Kada kalibracioni materijal i mereni uzorak nisu identičnih fizičko-hemijskih osobina (što je skoro uvek slučaj kod uzoraka iz prirode) usled različitih efekata apsorpcije javlja se dodatna sistematska greška. Ova greška je posebno izrazita kod merenja niskoenergijskih γ-zraka. Kod bliskih geometrija merenja se sistematske greške, reda veličine procenta i više mogu pojaviti i usled sabiranja koincidentnih γ-zraka u detektoru [15]. Sistematske greške postaju zanemarljive u slučaju komparativnih merenja, gde se upoređuju koncentracije aktivnosti istih radionuklida u uzorcima sličnih fizičko-hemijskih osobina.

5. NEKI SPECIFIČNI PROBLEMI I METODE γ-SPEKTROMETRIJE

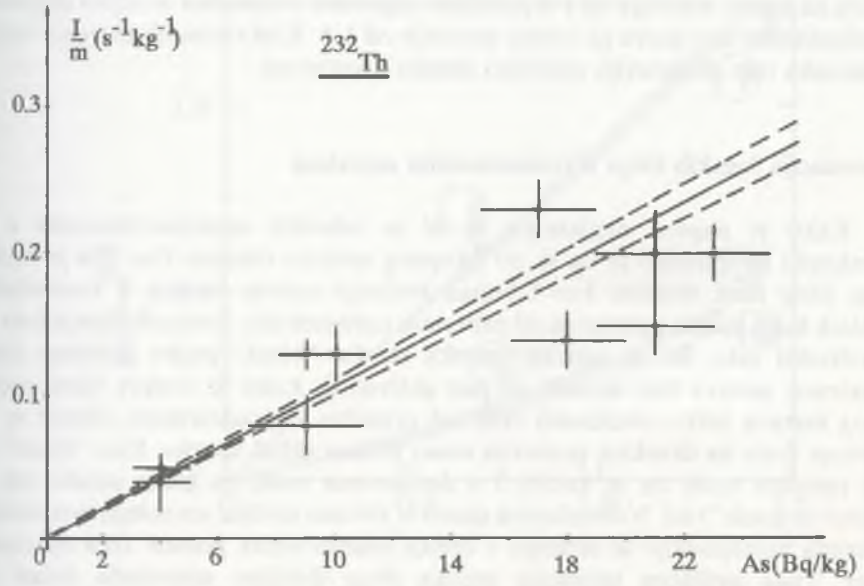
5.1. γ-Spektrometrija sa NaI(Tl) detektorom velike efikasnosti

Pojavom visokorezolucionih poluprovodničkih detektora prethodna generacija detektora korišćenih u γ-spektrometriji-scintilacioni NaI(Tl) detektori u mnogim

oblastima istisnuti su iz upotrebe zbog svoje oko 100 puta slabije rezolucije. Ipak, neke prednosti ostaju na strani ovog tipa detektora, tako da se i dalje koriste u neke specijalne svrhe. Ovi se detektori mogu izraditi mnogo veći nego poluprovodnički, tako da njihova efikasnost može višestruko prevazići efikasnost poluprovodničkih detektora. Ovde ćemo prodiskutovati jedan primer primene anularnog 9" x 9" NaI(Tl) detektora sa aksijalnim kanalom od 3" u merenju prirodne radioaktivnosti građevinskih materijala. Za kompletnu analizu sastava prirodnih radionuklida u građevinskim materijalima na poluprovodničkom spektrometru potrebno je snimanje svakog uzorka u trajanju od najmanje 1 d. Međutim, kako smo kod građevinskih materijala zainteresovani uglavnom za dozu od γ-zračenja, dovoljno je da se izmere aktivnosti ^{226}Ra, ^{232}Th i ^{40}K, jer će γ-doze koje potiču od ostalih članova radioaktivnih nizova moći da se izračunaju sa zadovoljavajućom tačnošću, bez obzira na to da li je održavana radioaktivna ravnoteža u nizovima. Aktivnosti ova tri radionuklida mogu efikasno da se odrede na opisanom scintilacionom detektoru analizom spektra na tri prominentne, dovoljno razdvojene linije od 1461 keV za ^{40}K, 1764 keV za ^{226}Ra iz raspada ^{214}Bi i 3197 keV za ^{232}Th ("summing" vrlo intenzivnih prelaza od 2614 keV i 583 keV u raspadu ^{208}Tl). Uzorak mase ~0.3 kg se postavlja u kanal detektora. Kalibracija efikasnosti NaI(Tl) detektora izvršena je uzorcima zemlje, fosfata i građevinskih materijala različitih aktivnosti koje su prethodno određene dugotrajnim merenjima (200-400 ks) na Ge(Li) detektoru poznate efikasnosti (sl.6 i 7.). Na bazi kriterijuma da neto površina pod vrhom totalne apsorpcije mora da prevazilazi svoju 3σ vrednost procenjene su minimalne merljive aktivnosti ova tri radionuklida na scintilacionom i poluprovodničkom detektoru za različita vremena merenja. Rezultati su prikazani u tab.2.



Slika 6. Kalibracioni grafik NaI(Tl) detektora za ^{226}Ra (iz raspada ^{214}Bi)



Slika 7 Kalibracioni grafik NaI(Tl) detektora za ^{232}Th

Tabela 2. Minimalne merljive aktivnosti radionuklida na scintilacionom i poluprovodničkom detektoru za različita vremena merenja

Ge (Li) A_{min}[Bq]			
t [s]	1461 KeV - ^{40}K	1764 KeV - ^{226}Ra	3197 KeV - ^{232}Th
3600	22.3	9.5	7.1
18000	8.5	2.8	2.3
36000	5.8	1.8	1.5
86400	3.6	1.0	0.9
NaI (Tl) A_{min}[Bq]			
t [s]	1461 KeV - ^{40}K	1764 KeV - ^{226}Ra	3197 KeV - ^{232}Th
3600	3.2	0.7	1.3
18000	1.4	0.3	0.6
36000	1.0	0.2	0.4
86400	0.7	0.1	0.2

Iz rezultata se vidi da minimalnoj merljivoj aktivnosti na poluprovodničkom detektoru za vreme merenja od 1 d približno odgovara minimalna merljiva aktivnost na scintilacionom detektoru za vreme merenja od 1 h. Kod rutinskih merenja većeg broja uzoraka ovo predstavlja značajnu uštedu u vremenu.

5.2. Atenuacija fonskih linija u voluminoznim uzorcima

Kako je napred naglašeno, da bi se odredila aktivnost uzoraka u γ-spektroskopiji neophodno je da se od ukupnog spektra oduzme fon, čija je brzina brojanja istog reda veličine kao i brzina brojanja samog uzorka, a kompozicija spektralnih linija potiče uglavnom od prirodnih radionuklida. Brzina brojanja fona se može odrediti tako što se umesto uzorka stavlja "blank"-proba približno istog elementarnog sastava kao uzorak, ali bez aktivnosti. Kako je ovakve blank-probe različitog sastava teško obezbediti čiste od prirodne radioaktivnosti, obično se za određivanje fona na detektor postavlja samo prazan držač uzorka. Kao "blank" za vodene rastvore može da se koristi 3 x destilovana voda, za gušće uzorke čist Si ("detector or grade") itd. Voluminozni uzorci iz životne sredine na poluprovodničkim detektorima najefikasnije se snimaju u obliku Marinellijeve posude koja opkoljava detektor. Tada prilikom snimanja uzorka zbog debljine materijala dolazi do atenuacije fonskih linija, tako da će oduzimanje fona snimljenog bez materijala stvoriti određenu sistematsku grešku. Njen iznos zavisiće od odnosa brzine brojanja uzorka prema brzini brojanja fona (greška je zanemarljiva za uzorke jače aktivnosti), geometrije izvor-detektor, tj. od debljine sloja uzorka i prostornog ugla pod kojim on zaklanja detektor i od sastava uzorka koji određuje atenuacioni koeficijent za razne energije γ-zraka.

Ova se greška može proceniti i obračunati torijskim putem uz neke pojednostavljujuće pretpostavke: ako je fon difuzan i izotropan, detektor tačkast u centru sferne ljuske koju formira uzorak, atenuacija fona u detektoru može se izračunati po formuli za atenuaciju uskog snopa

$$N = N_0 \exp(-\mu d)$$

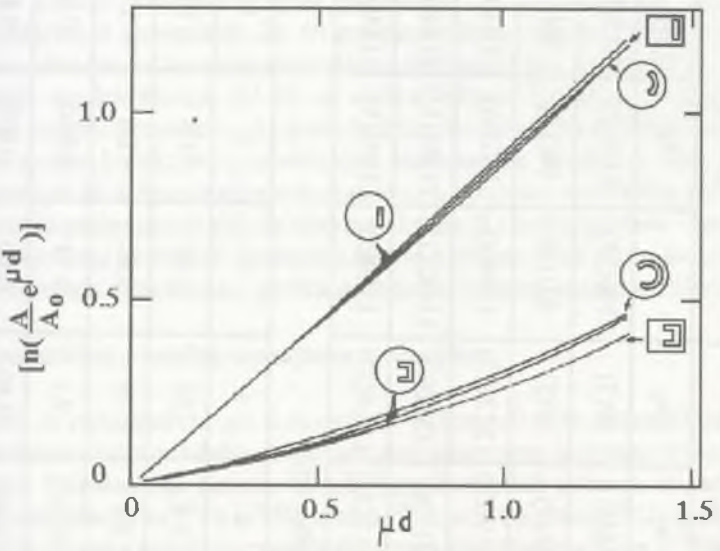
Za sve realne geometrije prostorni ugao zaklanjanja će biti manji od ovog, a atenuacija će moći da se odredi ako bude poznata bezdimenziona pozitivna veličina

$$D = \ln\left[\frac{N}{N_0}\right] \exp(\mu d)$$

koja karakteriše geometriju uzorak-detektor isključujući sastav uzorka.

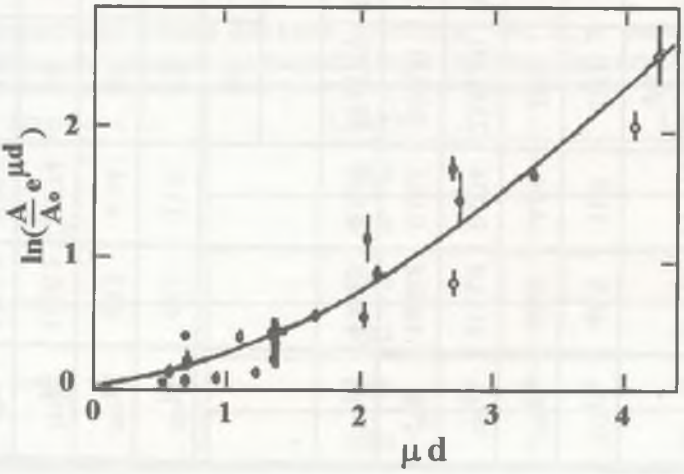
U radu [16] numerički je izračunata ova veličina za dva modela fona, sferni i aksijalno simetrični (oko ose detektora), i za nekoliko geometrijskih formi uzorka. Rezultati su predstavljeni na sl.8.

Eksperimentalna provera ovih rezultata izvedena je korišćenjem olovnih apsorbera oblika Marinelli, različite debljine i u prirodnom fonu prostorije, bez zaštitne komore, obračunavajući atenuaciju na 14 najvažnijih linija fona u



Slika 8. Veličina D za različite vrednosti fona i uzorka

energijskom intervalu od 45 do 1765 keV. Eksperiment pokazuje zadovoljavajuće slaganje sa oblikom teorijske krive, ali je razlikovanje među pojedinim oblicima izvora pri ovoj preciznosti eksperimentalnih podataka još nemoguće. Ipak, pošto je statistička definisanost aktivnosti u prirodnim uzorcima ionako slaba, korekcija izračunata na ovaj način može da ukloni veći deo nastale sistematske greške (sl.9.).



Slika 9. Veličina D merena na uzorku oblika Marinelli

Nukleidi	E(keV)	μd	Brzina brojanja uzorka (ks^{-1})								
			$a_s=0.2a_b$			$a_s=a_b$			$a_s=10a_b$		
			a_0	a_1	a_2	a_0	a_1	a_2	a_0	a_1	a_2
^{210}Pb	46.5	11.9	2(5)	13(4)	11(4)	11(6)	21(5)	19(5)	106(13)	117(12)	115(12)
^{234}Th	63.3	4.54	2(5)	10(4)	8(4)	8(6)	16(5)	15(5)	82(13)	90(12)	90(12)
^{214}Bi	1120.3	0.074	23.9(24)	32.4(23)	31.7(23)	119.4(28)	127.9(27)	127.2(27)	1194(6)	1203(6)	1202(6)
^{40}K	1460.8	0.062	230(5)	299(7)	293(5)	1148(6)	1217(6)	1212(6)	11482(13)	11551(12)	11545(12)
^{214}Bi	1764.5	0.057	22.6(20)	28.8(19)	24.0(20)	112.9(23)	119.2(23)	118.6(23)	1129(5)	1135(5)	1135(5)
			greška (%)								
			r	d	s	r	d	s	r	d	s
^{210}Pb	46.5	11.9	83	17	30	50	9.6	23	9.10	1.6	10
^{234}Th	63.3	4.54	83	17	39	50	9.4	30	9.00	1.6	13
^{214}Bi	1120.3	0.074	26	2.2	7.1	6.7	0.56	2.1	0.71	0.060	0.46
^{40}K	1460.8	0.062	23	2.0	1.7	5.7	0.48	0.49	0.60	0.050	0.10
^{214}Bi	1764.5	0.057	22	2.0	6.5	5.2	0.44	1.9	0.55	0.046	0.40

U tab.3. predstavljeni su podaci koji mogu poslužiti u orijentaciji o veličini greške koja nastaje zanemarivanjem problema zaklanjanja fona voluminoznim izvorima u Marinelli geometriji. Za tri pretpostavke o odnosu brzine brojanja fona a_b i uzorka a_s obračunate su eksperimentalne aktivnosti bez korekcije a_0, korigovane na najprostiji model izvora (D=0) u obliku sferne ljuske a_1 i korigovane na odgovarajući Marinelli model a_2. U donjem delu iste tabele su rezidualna sistematska greška ako nema korekcije r, rezidualna sistematska greška d ako je izvršena korekcija samo sa D=0 (atenuacija uskog snopa) i, konačno, statistička greška s brzine brojanja. Iz ovih podataka se vidi da sistematska greška nekorigovane vrednosti može u nekim slučajevima prevazići slučajnu i za red veličine. Već posle najjednostavnije korekcije, preostala sistematska greška postaje uglavnom manja od slučajne.

5.3 γ-spektrometrijska analiza uranijuma u zemljištu

Kada je radioaktivni niz u ravnoteži, aktivnosti svih radionuklida u nizu su iste, te se koncentracija predaka može odrediti merenjem intenziteta γ-zračenja bilo kog potomka. Narušavanje ravnoteže usled geohemijskih procesa se može dogoditi kod dugoživećih članova (^{230}Th i ^{226}Ra u nizu ^{238}U, te ^{231}Pa u nizu ^{235}U) niza. Emanacija gasa radona iz uzoraka narušava ravnotežu nizova kod članova ^{222}Rn i ^{219}Rn. Držanjem uzoraka u hermetički zatvorenim sudovima u trajanju od oko 10T (za ^{226}Ra, ≈ 40 dana) se ova ravnoteža može uspostaviti pre merenja. Obzirom da se prirodni odnos izotopskog sastava uranijuma ne menja bez nuklearnih procesa, γ-linije iz niza ^{235}U se u principu mogu koristiti za određivanje ^{238}U, ali je zbog male izotopske obilnosti ^{235}U njihov intenzitet u odnosu na linije ^{238}U obično nizak, ili se javljaju u nerazdvojivim dubletima sa γ-linijama ostalih prirodnih nizova.

U raspadu celog niza ^{238}U se emituje oko 50 intenzivnijih karakterističnih γ-linija pomoću kojih se u principu mogu dobiti podaci o aktivnostima članova niza. Međutim, svega oko 2% od ukupnog γ-zračenja niza se emituje iz članova niza pre ^{226}Ra, za koje se može pretpostaviti da su u ravnoteži za ^{238}U. U raspadu direktnih potomaka ^{238}U - jezgara ^{234}Th i ^{234}Pa, dominiraju sledeće γ-linije navedene u tab.4 [5].

Tab.4.Najintenzivnije γ-linije direktnih potomaka ^{238}U, E_γ je energija prelaza,a I_γ je broj emitovanih γ-kvanata po raspadu jezgra (apsolutni intenzitet)

Jezgro	E_γ (keV)	I_γ (%)
^{234}Th	63.3	3.8
	92.3	2.7
	92.8	2.7
^{234}Pa	98.4	0.2
	765	0.2
	1001	0.6

Kao što vidimo, intenzivnije linije ^{234}Th se nalaze u niskoenergijskom delu γ-spektra, gde su najizrazitiji problemi vezani za efikasnost detekcije i gde se, po pravilu, javlja mnoštvo linija od drugih jezgara i karakterističnog X-zračenja elemenata iz okoline detektora. Linija ^{234}Pa od 1001 keV se nalazi u pogodnoj spektralnoj oblasti, međutim, ima nedovoljan intenzitet oko čije vrednosti postoje čak kontraverze u savremenoj literaturi [17]. γ-linija od 186 keV spada među najintenzivnije linije uranijumovih nizova. To je dublet koji grade linija od 186.1 keV iz raspada ^{226}Ra i 185.7 keV iz raspada ^{235}U. Intenzitetu ovog instrumentalno nerazdojivog dubleta u slučaju ravnoteže nizova obe komponente doprinose približno jednako. Određivanjem koncentracije aktivnosti ^{226}Ra iz posleradonskih analitičkih linija (kada je radon u uzorku doveden do ravnoteže) može se odrediti koji deo linije od 186 keV potiče od ^{235}U, tj. koliko ^{235}U odnosno ^{238}U ima u uzorku.

Raspad posleradonskih članova niza ^{238}U praćen je mnoštvom jakih γ-prelaza pogodnih za analitičke svrhe. Od oko 50 jakih prelaza iz raspada jezgara ^{214}Pb i ^{214}Bi sa linijama prirodnih radioaktivnih nizova ne interferiraju jake linije ^{214}Bi od 609.3, 1120.3 i 1764.5 keV. U slučaju kada je radon u uzorku u ravnoteži intenziteti ovih linija daju direktnu informaciju o koncentraciji radijuma ^{226}Ra.

Na osnovu izloženih osobina radioaktivnih nizova uranijuma i na osnovu analize mogućih grešaka γ-spektrometrijske metode, mogu se formulisati glavne strategije u određivanju niskih koncentracija uranijuma i njihovih varijacija u prirodnim uzorcima [18,19].

Pre svega, ako se želi odrediti koncentracija ^{238}U ili ^{226}Ra u uzorcima (a ne količina zračenja, odnosno radijaciona opasnost od uzorka u trenutku merenja), neophodno je da se uzorci pre merenja drže u hermetizovanim posudama najmanje 40 dana da bi se emanacija radona dovela u stanje radioaktivne ravnoteže. Ukoliko se nizom merenja želi da istraži mala varijacija koncentracije uranijuma u uzorcima slične vrste (na primer praćenje nagomilavanja uranijuma u zemljištu usled primene mineralnih đubriva), treba primeniti relativnu metodu merenja. Kod ove metode se svi uzorci mere u identičnim geometrijskim uslovima, te sistematsku grešku mogu prouzrokovati samo eventualne varijacije u gustini pojedinih uzoraka. Iz kompletnih spektroskopskih informacija dobijenih pod navedenim uslovima se podaci o koncentraciji aktivnosti ^{238}U mogu formirati na tri glavna načina:

1. **Korišćenje svih analitičkih linija uz pretpostavku ravnoteže u celom nizu.** Jasno je da upotreba svih analitičkih linija pruža statistički najbolje definisan rezultat. Statistički korektnim tretmanom odstupanja koncentracija aktivnosti dobijenih iz analitičkih linija raznih radionuklida od srednje vrednosti se, u principu, u okviru greške merenja može iskazati stepen narušavanja ravnoteže. Ovo je jedini mogući način obrade podataka ukoliko se koncentracija aktivnosti celog niza ^{238}U želi iskazati jednim brojem. Međutim, usled statistički mnogo bolje definisanosti linija iz posleradonskih članova niza, ovako dobijen rezultat pretežno zavisi od koncentracije ^{226}Ra u uzorku, a ne toliko od koncentracije ^{238}U.

2. **Određivanje koncentracije ^{238}U iz intenziteta linije od 186 keV.** Doprinos linije ^{226}Ra intenzitetu linije od 186 keV se može precizno ustanoviti određivanjem koncentracije ^{226}Ra iz posleradonskih linija. Eventualne varijacije koncentracije

radona u mernoj komori mogu doprineti pogrešnom ustanovljavanju fona merenja, što sa eventualnom greškom u hermetizaciji, može biti jedini uzrok sistematske greške kod ovog određivanja. Pomoću poznate koncentracije ^{226}Ra u uzorku se iz ukupnog intenziteta linije od 186 keV može odrediti koncentracija ^{235}U odnosno ^{238}U.

3. Određivanje koncentracije ^{238}U iz niskoenergijskih linija ^{234}Th. Ova metoda daje najpouzdaniji rezultat obzirom da je ^{234}Th neposredni potomak ^{238}U. Merenje samog intenziteta slabih niskoenergijskih γ-linija često nije jednostavno. Pre svega, u zaštitnim komorama od olova, X-zračenje od ovog elementa može da "prekrije" liniju od 63.3 keV, a i efikasnost mnogih detektora ispod 100 keV brzo opada. Pored ovih problema, zbog kojih je statistička greška ove metode obično velika, kao izvor sistematske greške relativnih merenja se javlja i različita apsorpcija niskoenergijskog zračenja u uzorcima nešto različite gustine.

Na osnovu izloženih glavnih mogućih metoda određivanja ^{238}U iz izmerenih γ-spektara i njihovih glavnih ograničenja možemo zaključiti da kombinacija metoda 2 i 3 daje najpouzdanije i najpreciznije rezultate u praćenju malih varijacija koncentracije ^{238}U u prirodnim uzorcima.

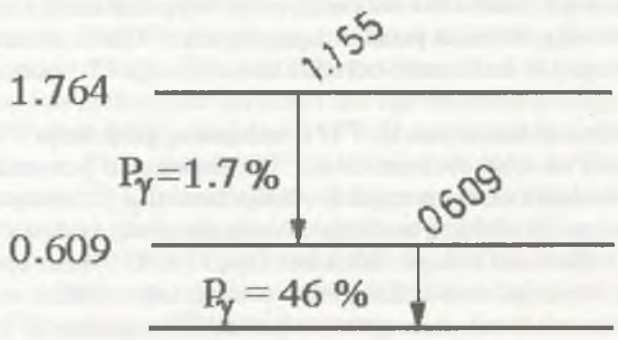
Imajući u vidu potencijalne izvore grešaka i kod ove kombinovane metode, ne sme nas iznenaditi činjenica da se i kod pažljivo izvedenih merenja često dobijaju rezultati o koncentraciji ^{238}U u prirodnim uzorcima sa greškom reda veličine 10%.

Međutim, ako se podsetimo da se metodom γ-spektroskopije rezultati dobijaju bez ikakvog hemijskog tretmana uzoraka, možemo na kraju zaključiti da je po pouzdanosti ova metoda veoma kompetitivna sa alternativnim tehnikama određivanja uranijuma.

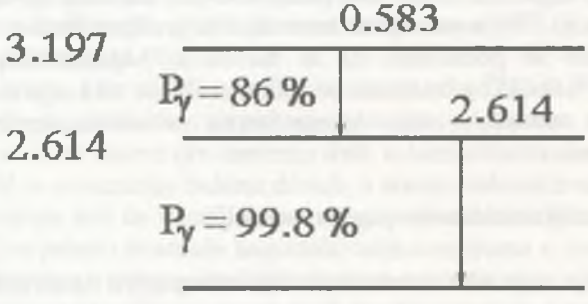
5.4. Koincidentna i antikoincidentna γ-spektroskopija

Spektrometrija sa jednim detektorom daje informaciju o energiji i intenzitetu zračenja iz izvora, ali ne može da odredi da li registrovani kvanti potiču iz raspada jednog jezgra, dakle, daje samo indirektne informacije o šemama raspada jezgara. Koincidentna spektroskopija, kod koje se sa dva ili više detektora prati sukcesivna emisija kvanata iz jezgra, daje informacije i o načinima raspada jezgra i o odnosima grananja između različitih načina deekscitacije. Osim primena kod kojih se direktno mere parametri nuklearne strukture, koincidentna tehnika je nezamenljiva kada se istražuje mali broj nuklearnih događaja od interesa u prisustvu velikog broja događaja koji stvaraju fon u detektorima.

Na sl.10 i 11. prikazane su kaskade po dva najintenzivnija prelaza koje se javljaju pri raspadu ^{214}Bi i ^{208}Tl, predstavnika uranijumovog, odn. torijumovog radioaktivnog niza, koje se mogu iskoristiti za ekskluzivno određivanje aktivnosti ovih radionuklida u multiizotopskoj smeši primenom koincidentne tehnike. Jedna od mogućih eksperimentalnih postavki brzo/sporog koincidentnog uređaja koji povezuje signale iz poluprovodničkog detektora i NaI(Tl) detektora oblika jame (anularni detektor + čep), realizovana nuklearnim elektronskim modulima firme "Canberra", prikazana je na sl.12. Brza grana omogućuje registrovanje koincidencija svih signala, dok spora grana daje energijsku informaciju o signalima. Vremensko razlaganje brzog koincidentnog kruga je reda veličine 10 ns [20,21,22].



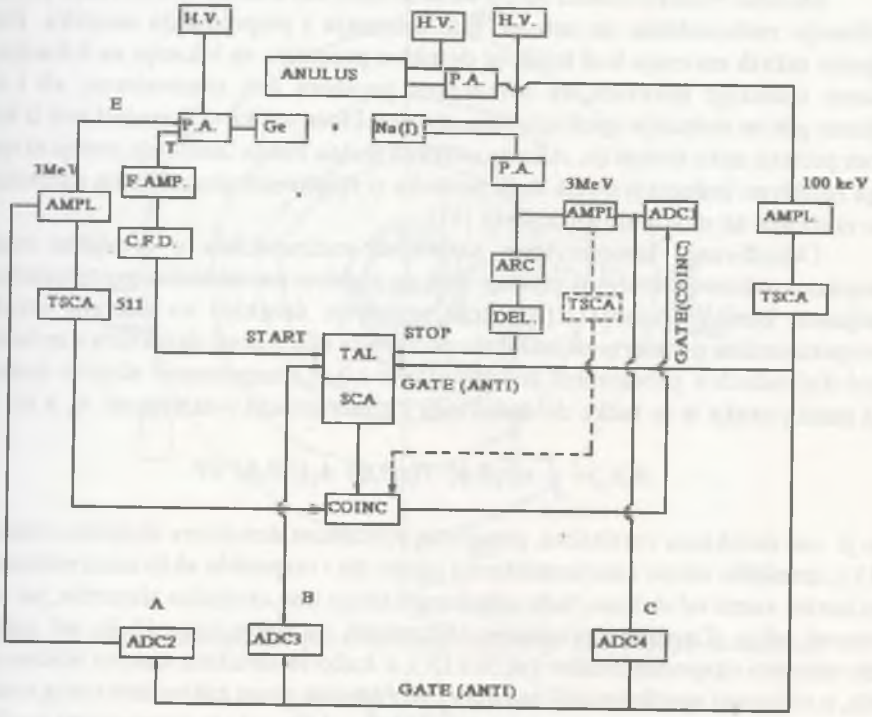
Slika 10. Kaskada najintenzivnijih prelaza u raspadu ^{214}Bi



Slika 11. Kaskada najintenzivnijih prelaza u raspadu ^{208}Tl

Prvenstvena namena opisanog NaI(Tl) detektora oblika jame je tzv. aktivna zaštita detektora. Veliki scintilacioni detektor praktično opkoljava poluprovodnički detektor, koji je uvučen u kanal anularnog dela, dok je drugi otvor kanala zatvoren detektorom-čepom. γ-Kvant iz izvora, koji se komptonski rasejao u poluprovodničkom detektoru, ukoliko napusti detektor ostavlja u njemu energiju koja ne doprinosi vrhu totalne apsorpcije, nego na nižim energijama povećava kontinuum na kome leže druge linije u γ-spektru, što smanjuje njihovu statističku definisanost. Međutim, ako se rasejani kvant registruje u spoljašnjem detektoru, što se u ovakvoj geometriji dešava sa velikom verovatnoćom, i ako su detektori vezani antikoincidentno, sistem će u kratkom intervalu vremena biti blokiran, tako da se nepovoljni događaj sa rasejanim kvantom neće registrovati. Rezultat je spektar u kome je kontinuum na

kome leže karakteristične γ-linije mnogo manji, što može drastično da snizi minimalnu merljivu aktivnost pojedinih radionuklida.



Slika 12. Blok šema brzo-sporog koincidentnog uređaja

Ovakav uređaj za suzbijanje komptonskog kontinuuma instaliran je u gore spomenutu gvozdenu zaštitnu komoru. Veliki scintilacioni detektorski sistem sa jedne strane predstavlja dodatnu zaštitu za poluprovodnički detektor, ali sa druge je izvor dodatnog prirodnog fona. Merenja pokazuju [23] da se niskofonske karakteristike ovakve zaštite u pasivnom modu (kada antikoincidencije nisu uključene) generalno gledano ne menjaju mnogo za prirodne radionuklide, a da se za neke veštačke čak znatno poboljšavaju (^{137}Cs na primer). Izuzetak je ^{40}K koji neizbežno prati veliku masu unetog Na i čija se fonska linija povećava sa faktorom 4. U antikoincidentnom režimu poboljšava se odnos vrha totalne apsorpcije prema komptonskom kontinuumu sa faktorom 3, dok se ukupni integral fona smanjuje 2 puta, što je uobičajeno za ovakve sisteme. Na žalost, ova poboljšanja ne mogu rutinski da se iskoriste za snižavanje minimalne merlljive aktivnosti prirodnih radionuklida, jer neke njihove linije pripadaju koincidentnim raspadima, tako da se u spektru ne pojavljuju njihovi pravi intenziteti, štp znatno otežava interpretaciju dobijenih spektara. U ovom slučaju efikasnost detekcije bi se morala odrediti za svaki radionuklid posebno.

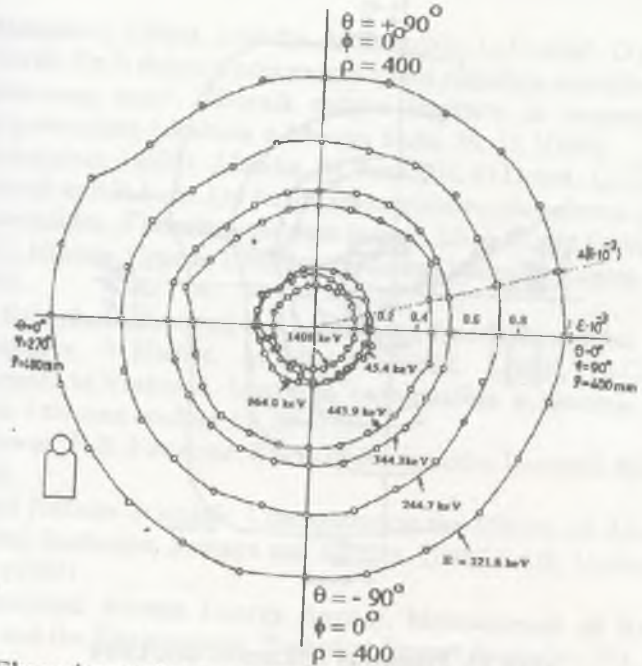
5.5. "In situ" γ-spektrometrija

Mobilni γ-spektrometri mogu da se koriste za rutinsko određivanje prostorne distribucije radionuklida na terenu, bez uzimanja i pripremanja uzoraka. Postoje varijante takvih merenja kod kojih se detektor premešta sa lokacije na lokaciju, dok se samo snimanje spektara na otvorenom prostoru vrši stacionirano, ali i takve varijante gde se snimanje spektara pomoću detektora velike efikasnosti vrši iz letilice tokom preleta neke teritorije. Ako se održava stalna visina snimanja, dobijeni spektri mogu relativno jednostavno da daju podatke o relativnim promenama ekspozicione doze zračenja na nekoj široj teritoriji [11].

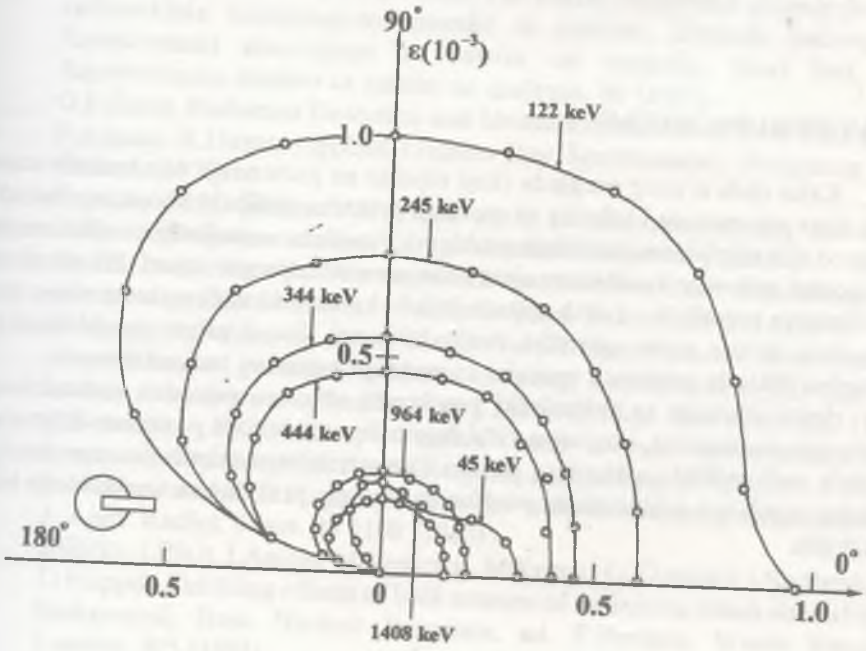
Određivanje koncentracije aktivnosti radionuklida u zemljištu ovakvim postupkom zahteva detaljniji pristup koji se zasniva na sledećim pretpostavkama i relacijama. Brzina brojanja $R(E_\gamma)$ koju registruje detektor na energiji γ-zraka E_γ je proporcionalna prostornom integralu proizvoda efikasnosti detektora ε za tačku čiji je položaj određen prostornim koordinatama r,θ,ϕ, tranparenciji slojeva materijala T na putu γ-zraka iz te tačke do detektora i koncentraciji γ-aktivnosti A_γ u toj tački:

$$R(E_\gamma) \propto \int \epsilon(r,\theta,\phi)\ T(r,\theta,\phi)\ A_\gamma(r,\theta,\phi)\ dV$$

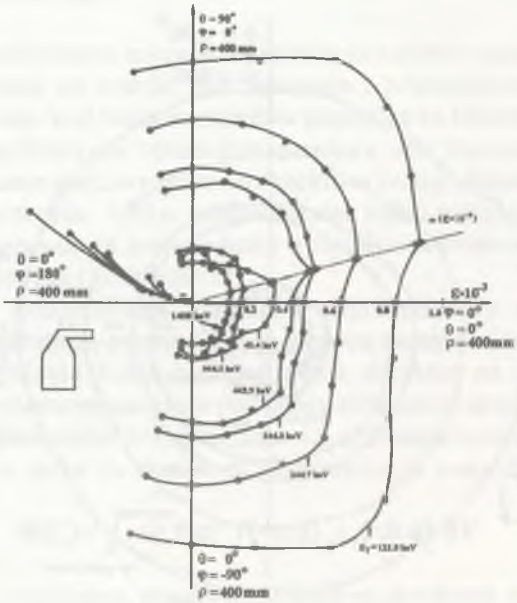
Ako je osa detektora vertikalna, prostorna efikasnost detektora aksijalno simetrična (sl.13.), zemljište ravno i horizontalno, a sastav tla i raspodela aktivnosti radionuklida u tlu zavise samo od dubine, tada cela konstelacija ima aksijalnu simetriju, pa otpada zavisnost od ϕ. Zavisnost prostorne efikasnosti na datoj energiji E_γ od ugla θ se može odrediti eksperimentalno (sl.14 i 15.), a kako se detektor smešta obično na 1m od tla, u tačkastoj aproksimaciji zavisnost od r postaje prost zakon inverznog kvadrata. Transparencija se može računati kao $T=\exp(-\Sigma\ \mu_i d_i(\theta))$, gde je atenuacioni koeficijent μ_i konstanta samo ako se usvoji pretpostavka o homogenom sastavu tla i po dubini. Krajnji rezultat zavisi od pretpostavke o distribuciji aktivnosti sa dubinom $A_\gamma=A_\gamma(h)$, iz koje se onda može transformisati na $A_\gamma(r,\theta)$. Za radionuklide u prirodnom sastavu tla obično se uzima najjednostavnija homogena raspodela $A_\gamma(h)=\text{const}$. Koeficijent proporcionalnosti u jedn. (2) se može eksperimentalno odrediti tako da se na nekoj lokaciji pored *in situ* merenja uzme i uzorak zemlje i odredi njegova koncentracija aktivnosti [24]. Kao dobra kontrola usvojenog modela raspodele aktivnosti sa dubinom može poslužiti slaganje dobijenih koncentracija aktivnosti za jedan isti radionuklid koji ima γ-linije na različitim energijama. Provera slaganja sa različitim modelima daje mogućnost da se in integralnih merenja donekle i odredi funkcija raspodele radionuklida sa dubinom. Za dodatnu aktivnost radionuklida nastalu kao posledica čovekovih aktivnosti ili taloženja obično se pretpostavlja eksponencijalno opadanje aktivnosti sa dubinom.



Slika 13. Eksperimentalna provera osne simetrije efikasnosti detektora



Slika 14. Prostorna efikasnost detektora



Slika 15. Prostorna efikasnost detektora

6. OTVORENI PROBLEMI

Kako sledi iz ovog pregleda (koji nipošto ne pretenduje na sveobuhvatnost), postoji čitav niz metoda i tehnika za merenje prirodne radioaktivnosti, no budući da nijedna od njih nije lišena specifičnih problema, verovatno se najbolji rezultati merenja mogu postići njihovim kombinovanjem i uzajamnim dopunjavanjem. Pri ocenjivanju i usavršavanju pojedinih od ovih metoda bila bi korisna na nacionalnom nivou izrada standardnih izvora niske prirodne radioaktivnosti, kao i priprema priručnika za standardne metode pripreme uzoraka za merenje prirodne radioaktivnosti.

Iako situacija sa tehnološki povišenim nivoima prirodne radioaktivnosti nipošto nije alarmantna, imajući u vidu dugoročne tendencije povećane akumulacije prirodnih radionuklida u životnoj sredini i ireverzibilnost takvih procesa, detaljnija zakonska regulativa o tehnološki povišenim nivoima prirodne radioaktivnosti bila bi dobrodošla.

LITERATURA

1. S.Manojlović, I.Bikit, J.Slivka, M.Vesković, Lj.Čonkić, D.Dozet, M.Krmar, G.Novak, Da li đubriva koja sadrže fosfor zagađuju zemljišta radionuklidima iz uranovog niza?, Zbornik radova Instituta za ratarstvo i povrtarstvo Poljoprivrednog fakulteta u Novom Sadu, 16, 11 (1989).
2. S.Manojlović, I.Bikit, J.Slivka, M.Vesković, D.Dozet, Lj.Čonkić, M.Krmar, G.Novak and B.Jocić, Do fertilizers containing phosphorus pollute soils with radionuclides of uranium-thorium series?, 10-th World Fertilizer Congress of CIEC, Nisocia, Cyprus, 1990, International Scientific Centre of Fertilizers, 45 (1990).
3. E.M.Krisjuk, Radiacionij fon pomeščenij Energoatomizdat, Moskva (1989).
4. T.Vrebalov, V.Hadžić, M.Belić, Lj.Nešić, I.Bikit, Lj.Čonkić, J.Slivka, M.Krmar, M.Vesković, Migracija radionuklida u sistemu zemljište-biljka, Čovek i životna sredina 15, 59 (1990).
5. E.Browne, R.B. Firestone, Table of Radioactive Isotopes, Willey, New York (1986).
6. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Ionizing Radiation: Sources and Effects, UNSCEAR, United Nations, New York (1982).
7. International Atomic Energy Agency, Measurement of Radionuclides in Food and the Environment, Technical Report Series No.295, IAEA, Vienna (1989).
8. I.Bikit, J.Slivka, Ž.Škrbić, Lj.Čonkić i M.Terzić, Snižavanje granice detekcije radionuklida kompresijom uzoraka iz prirode, Zbornik radova, XIV Jugoslovenski simpozijum za zaštitu od zračenja, Novi Sad, 1987, Jugoslovensko društvo za zaštitu od zračenja, 30 (1987).
9. G.F.Knoll, Radiation Detection and Measurement, Wiley, New York (1979).
10. F.Adams, R.Dams, Applied Gamma-Ray Spectrometry, Pergamon Press, Oxford, (1970).
11. Prutkina M.I., Šaškin V.L., Spravočnik po radiometričeskoj razvedke i radiometričeskomu analizu, Energoatomizdat, Moskva (1984).
12. Aničin I.and Yap C., New approach to detection limit determination in spectroscopy, Nucl.Instrum. ~ Methods Phys. Res. A 259 525 (1987).
13. D.Massé, A.Adam, J.Laurec, A Ge-NaI(Tl) spectrometer with Compton suppression and gamma coincidence counting, Application to ^{189}Ir and ^{101}Rh activity measurements, Nucl.Instrum č Methods Phys. Res. A 309 227 (1991).
14. K.Debertin, R.G.Helmer, Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors, North-Holland, Amsterdam (1988).
15. F.J.Schima and D.D.Hoppes, Tables for cascade summing corrections, Int. J. Appl. Radiat. č Isot. 34 1109 (1983).
16. J.Slivka, I.Bikit, I.Aničin, M.Vesković, M.Krmar, Lj.Čonkić, Lj.Budimski and D.Hoppes, Shielding effects of bulk sources of radiations which coexist in the background, Rare Nuclear Processes, ed. P.Povinec, World Scientific, London, 305 (1992).

17. V.Revs and W.Westmeier, Atomic data and nuclear data tables 29 1-193 (1983).
18. I.Bikit, J.Slivka, Gama-spektrometrijsko određivanje uranijuma, Uticaj upotrebe fosfornih đubriva na kontaminaciju uranom, Naučni skupovi SANU, knjiga LXXII, Odeljenje prirodno-matematičkih nauka knj. 5, 31 (1993).
19. S.Manojlović, I.Bikit, J.Slivka, M.Vesković, D.Dozet and Lj.Čonkić, The radionuclide content of chernozem type soils, Radiation protection, Selected topics of the international symposium, Dubrovnik, 1989, 353, (1989).
20. I.Bikit, M.Krmar, M.Vesković, J.Slivka and Lj.Čonkić, Low level performances of the 9" x 9" well type NaI(Tl) gamma-spectrometer, Rev.Res.Fac.Sc.Univ. of Novi Sad, 20/21 85 (1990/91).
21. I.Bikit, M.Krmar, M.Vesković, J.Slivka, Lj.Čonkić, Niskofonske karakteristike 9"x9" NaI(Tl) gama spektrometra oblika jame, Zbornik radova, XVI Jugoslovenski simpozijum za zaštitu od zračenja, Neum, 1991, Jugoslovensko društvo za zaštitu od zračenja, 276 (1991).
22. M.Krmar, M.Vesković, J.Slivka, Lj.Čonkić, I.Bikit, Kalibracija γ-koincidentnog spektrometra pomoću izvora ^{60}Co, XXXVI Konferencija ETAN-a, 1992, ETAN XIII 39 (1992).
23. I.Bikit, J.Slivka, M.Vesković, M.Krmar and Lj.Čonkić, Changes in background due to a Compton suppression shield in a low-level γ-spectroscopy system, Rev. Res. Fac. Sc. Univ. of Novi Sad, 20/21 161 (1990/91).
24. I.Bikit, J.Slivka, V.Hadžić, M.Krmar, Lj.Čonkić, M.Vesković, Vertikalna distribucija radionuklida u zemljištu, XXXIV Jugoslovenska konferencija ETAN-a, Zagreb, 1990, ETAN XI, 159 (1990).

SPECIFIČNI PROBLEMI MERENJA PRIRODNIH RADIONUKLIDA

Ištvan Bikit, Jaroslav Slivka, Ljiljana Čonkić, Miodrag Krmar

Rezime:

Dat je pregled oblasti u kojima je od značaja merenje prirodnih radionuklida. Prodiskutovane su prednosti i nedostaci različitih tehnika merenja. Detaljnije su prikazani problemi koji se javljaju kog γ-spektrometrijskog odredjivanja aktivnosti prirodnih radionuklida, kao što su merenje niskih aktivnosti, pasivna i aktivna zaštita detektora od fona, obrada rezultata merenja i neophodne korekcije, koincidentna i antikoincidentna γ-spektrometrija, in situ γ-spektrometrija u analizi sadržaja uranijuma u zemljištu.

Ključne reči: prirodna radioaktivnost, merenje niskih aktivnosti, g-spektrometrija

SPECIFIC PROBLEMS OF NATURAL RADIONUCLIDES MEASUREMENT

Ištvan Bikit, Jaroslav Slivka, Ljiljana Čonkić, Miodrag Krmar

Abstract

Fields involved with measuremnts of natural radionuclides are reviwed, advantages and drawbacks are discussed for various techniques. Problem arising in g-spectrometry applied to the determination of natural radionuclides are shown in some detail, concerning especially those of low activity measurements, passive and active background shielding, data reduction and necessary corrections, coincident and anticoincident g-spectrometry, and the analysis of uranium content of soils.

Key words: natural radioactivity, low activity measuremnts, g-spectrometry.

23.

METODE MERENJA KOEFICIJENTA EMANACIJE RADONA

Bikit I., Slivka J., Čonkić Lj., Vesković M., Baucal M.
PMF Institut za fiziku, Novi Sad
Pavlić B.
DTD Kanal GDP, Novi Sad

1. UVOD

Procenjuje se da radioaktivni gas radon učestvuje sa oko 50% u individualnoj dozi koja potiče od svih prirodnih izvora i sa oko 75% godišnje efektivne ekvivalentne individualne doze primljene iz zemaljskih izvora [1]. Veći deo te doze dobija se inhalacijom ovog radionuklida, naročito u zatvorenom prostoru, gde se radon, emniran iz tla i gradjevinskih materijala nagomilava, pri čemu dominantan doprinos koncentraciji u prizemnim prostorijama daje radon iz tla.

Stvarna koncentracija radona u zatvorenim prostorijama zavisi od velikog broja faktora, medju kojima su najvažniji: koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida u gradjevinskim materijalima koji ulaze u sastav gradjevinske konstrukcije, koeficijent emanacije radona iz ovih materijala, dotok radona iz tla, brzina izmene vazduha u prostoriji itd. Neki od ovih faktora su zavisni od lokalnih uslova i konkretne konstrukcije, kao što, na primer, dotok radona iz tla zavisi od lokalnog sastava dubljih slojeva, poroznosti sloja na kome se nalazi zgrada i sl., ili kao što brzina izmene vazduha zavisi od lokalnih klimatskih uslova, konstrukcije zgrade, zaptivanja prozora i vrata, režima grejanja i provetravanja itd. Na takve faktore se, u cilju smanjenja koncentracije radona, može delovati samo lokalno i konkretno

nakon procene tih lokalnih uslova (izbor lokacije gradnje, tipa konstrukcije, sanacija ventilacije i sl.). Na druge od ovih faktora se moze uticati vise regionalno, na primer, preporučivanjem gradjevinskih materijala sa malim sadržajem prirodnih radionuklida i/ili sa malim koeficijentom emanacije radona [2],[3].

Iz navedenog jasno se vidi potreba, sa jedne strane, za merenjem konkretne koncentracije radona u većem broju prostorija u različitim tipovima zgrada na različitim lokalitetima, a sa druge strane, za merenjem koncentracije aktivnosti radionuklida i koeficijenta emanacije radona u najviše korišćenim gradjevinskim materijalima u nekoj regiji. Ovde ćemo se zadržati na drugoj od ove dve grupe problema, posebno na metodologiji merenja koeficijenta emanacije radona iz gradjevinskih materijala i iz zemljišta.

Detaljno razradjene standardne tehnike merenja koeficijenta emanacije radona zasnivaju se na separaciji emaniranog radona od materijala iz koga potiče, i merenju njegove aktivnosti direktnim prevodjenjem u kalibrisanu jonizacionu komoru-radonometar, ili indirektno na adsorpciji emaniranog radona na aktivni ugalj, kome se onda odredjuje radioaktivnost pomoću neke od standardnih tehnika (napr. γ-spektrometrijom). U ovom drugom slučaju pojavljuje se dodatni problem nesigurnosti preračunavanja izmerene aktivnosti u koncentraciju radona zbog varijacije u adsorptivnim osobinama aktivnog uglja, koje zavise sa jedne strane od tehnoloških uslova preparacije samog uglja, a sa druge strane od ometajućeg delovanja vodene pare u vazduhu u kome se odredjuje koncentracija radona. Ovaj problem se jednim delom umanjuje korišćenjem standardnih patrona sa aktivnim ugljem, za koje proizvodjač u velikim serijama daje relativno pouzdane podatke neophodne za kalibraciju ove indirektne metode.

U ovom radu detaljnije se razmatra mogućnost odredjivanja koeficijenta emanacije radona metodom niskofonske γ-spektrometrije bez adsorbenta kao posrednika. Ova metoda se zasniva ne na direktnom merenju emanirane aktivnosti, već na njenom odredjivanju iz razlike aktivnosti emanacije u ravnoteži sa emanirajućim materijalom i aktivnosti samog materijala.

2. MERNA METODA

Kako je napred rečeno, koeficijent emnacije radona η se predloženom metodom odredjuje iz formule:

$$\eta = \frac{I - I_0}{I} \qquad (1)$$

gde je I spektralni intenzitet uzorka u ravnoteži sa emanacijom, a I_0 spektralni intenzitet uzorka sa odstranjenom emanacijom. Da bi se postigla radioaktivna ravnoteža sa emanacijom, uzorak se drzi hermetički zatvoren oko 10 perioda poluraspada radona, sto iznosi oko 40 dana (za $^{222}RnT_{1/2}$=3.82d). Nakon merenja zatvorenog uzorka, on se otvara, promeša i ponovo meri na istom detektoru.Pri tome uzorak mora biti barem toliko isitnjen da pojedini komadići budu manji od difuzione dužine za radon za dotični materijal, sto je lako postići, jer je ona reda veličine 1 cm.

Inherentni nedostatak ove metode je u tome sto u brojiocu formule (1) figuriše razlika dva spektralna intenziteta istog reda veličine, tako da merna nesigurnost s(η) postaje brzo velika kada je statistika spektralnih intenziteta I i Io slaba. Ipak, osnovna prednost koju nudi ova metoda u nekim slučajevima može biti presudna. To je činjenica da su kod ove metode u uobičajenim okolnostima izvori sistematskih grešaka praktično zanemarljivi: i I i Io se mere na istom detektoru, u istoj geometriji, a pošto je bitan samo njihov odnos, isključen je i uticaj problematičnog odredjivanja efikasnosti detektora. [4] Kao mogući izvor sistematske greške javlja se samo eventualna fluktuacija fona, koju je relativno lako obračunati merenjem fona i pre i posle svakog merenja uzorka.

3. MERNA OPREMA I REZULTATI MERENJA

S obzirom na malu koncentraciju aktivnosti prirodnih radionuklida uranijumovog radioaktivnog niza u gradjevinskim materijalima i zemljištu, da bi se postigla zadovoljavajuća statistika spektralnih intenziteta, neophodno je da se merenja vrše na relativno velikim uzorcima, na detektoru velike efikasnosti, i pod uslovima niskog fona. Merna oprema na kojoj su izvršena merenja opisana u ovom radu zadovoljava ove zahteve. Detektor je bio 9" x 9" na NaI(Tl) oblika jame sa aksijalnom rupom prečnika 3", opremljen sa 6 fotomultiplikatora. Moć razlaganja ovog detektora je 8% na 662 keV, a efikasnost vrha totalne apsorpcije na 1332 keV je oko 30% za uzorak cilindričnog oblika poluprečnika 6 cm i visine 7 cm. Zaštita od spoljašnjeg zračenja je čelična komora sa zidovima debljine 25 cm i korisnom zapreminom od 1 m^3, u koji je smešten scintilacioni detektor. Signali iz detektora, pojačani standardnim pojačivačem, registruju se u višekanalnom anlizatoru sa 4096 kanala. Za odredjivanje spektralnog intenziteta korišćena je dobro izdvojena linija od 1764 keV, koja potiče iz γ-spektra ^{214}Bi.

Da bi se testirala upotrebljivost ove metode, merenja su izvršena na dva jače aktivna uzorka zemlje poznate koncentracije aktivnosti sa područja jalovišta rudnika uranijuma Kalna (K3, K6) i na jednom uzorku zemlje poznate koncentracije aktivnosti, koja ima uobičajenu nižu vrednost, sa podrucja Kragujevca (KR5). Vreme merenja je bilo oko 80 ks do oko 100 ks, a mase uzoraka su iznosile oko 0.3 kg. Rezultati merenja prikazani su u tab. 1.

Tabela 1. Koeficijenti emanacije radona iz uzoraka zemljeizmereni γ-spektrometrijskom metodom

Uzorak	As [Bq/kg]	I $[(ks)^{-1}]$	I_0 $[(ks)^{-1}]$	η [%]
K3	979±27	14660±49	13140±48	10,4±0,5
K6	1348±30	13974±51	11918±57	14,7±0,5
KR5	44±1	252±20	223±19	11,5±10,3

Iz rezultata se vidi da se koeficijent emanacije radona jače aktivnih uzoraka, ovom metodom za date mase uzoraka i razumno vreme merenja, može odrediti sasvim pouzdano, relativna standardna greška dobijenih vrednosti je oko 5%. Za uzorke nižih aktivnosti u datim uslovima ova metoda je nepouzdana - relativna greška je oko 8%.

4. MINIMALNI MERLJIVI KOEFICIJENT EMANACIJE

Gore prezentovani rezultati mogu se iskoristiti za odredjivanje minimalno merljivog koeficijenta emanacije radona koji se može dostići razmatranom γ-spektrometrijskom metodom. Polazeći od uobičajenog nivoa poverenja od 90%, rezultat merenja je značajan ako njegova vrednost n najmanje 1.65 puta prevazilazi standardnu grešku merenja s(n):

$$s(n)=\frac{1}{1.65}n \tag{2}$$

Neka je n = N-No, gde su N i No spektralni odbroji za isto vreme merenja zatvorenog i otvorenog uzorka, respektivno. Pretpostavimo idealan slučaj da je kontinuum u γ-spektru na mestu gde se nalazi linija iz koje je odredjen spektralni odbroj zanemarljiv, kao i fon bez uzorka. Tada je standardna greška:

$$s(N-N_0)=\sqrt{N+N_0} \tag{3}$$

Ukupni spektralni odbroj zatvorenog uzorka N može se izraziti preko njegove koncentracije aktivnosti a relacijom:

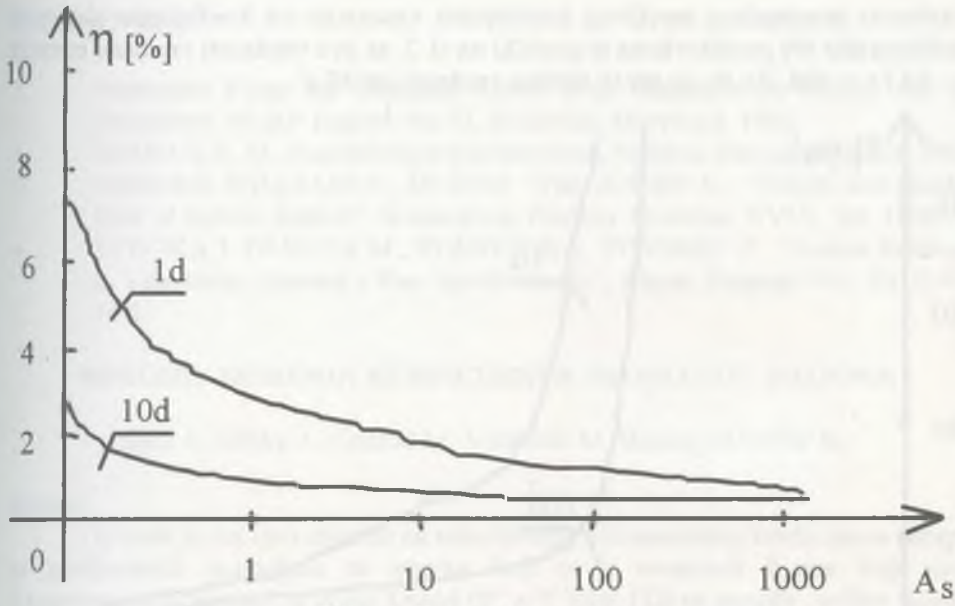
$$N=a\epsilon p_\gamma mt=aCt \tag{4}$$

gde je ε efikasnost detektora, p_γ verovatnoća emisije γ-kvant za dati radioaktivni raspad, m masa uzorka, a t vreme merenja, tako da je $C=\epsilon p_\gamma m$ konstanta za date uslove merenja, u konkretnom slučaju C=0.011.

Kombinujući jednačine (1) do (4) dobija se minimalni merljivi koeficijent emanacije za opisanu mernu metodu u funkciji koncentracije aktivnosti radionuklida uranijumovog niza i vremena merenja:

$$\eta=\frac{-123{,}64+22{,}25\sqrt{30{,}91+A_s t}}{A_s t} \tag{5}$$

Zavisnost minimalnog merljivog koeficijenta emanacije od koncentracije aktivnosti radionuklida (5) predstavljena je grafički na sl. 1. za dve vrednosti vremena merenja t=1d i t=10d.



Slika 1. Zavisnost $\eta=\eta(A_s)$

Realniju situaciju opisuje slučaj kada kontinuum u γ-spektru na kome leži linija iz koje je odredjen spektralni odbroj nije zanemarljiv, ali i dalje smatramo da je fon bez uzorka zanemarljiv. Neka su N^T i N_0^T bruto odbroji pod vrhom totalne apsorpcije zatvorenog i otvorenog uzorka, pa je tada:

$$N=N^T-N_C \tag{6}$$

$$N_0=N_0^T-N_C \tag{7}$$

gde smo dodatno pretpostavili da je površina kontinuuma u oblasti vrha totalne apsorpcije N_c ista za zatvoreni i otvoreni uzorak, što se praktično i ostvaruje. Standardna greška razlike odbroja je tada:

$$s(N-N_0)=\sqrt{s^2(N)+s^2(N_0)}=\sqrt{N^T+N_C+N_0^T+N_C}=\sqrt{N^T+N_0^T+2N_C} \tag{8}$$

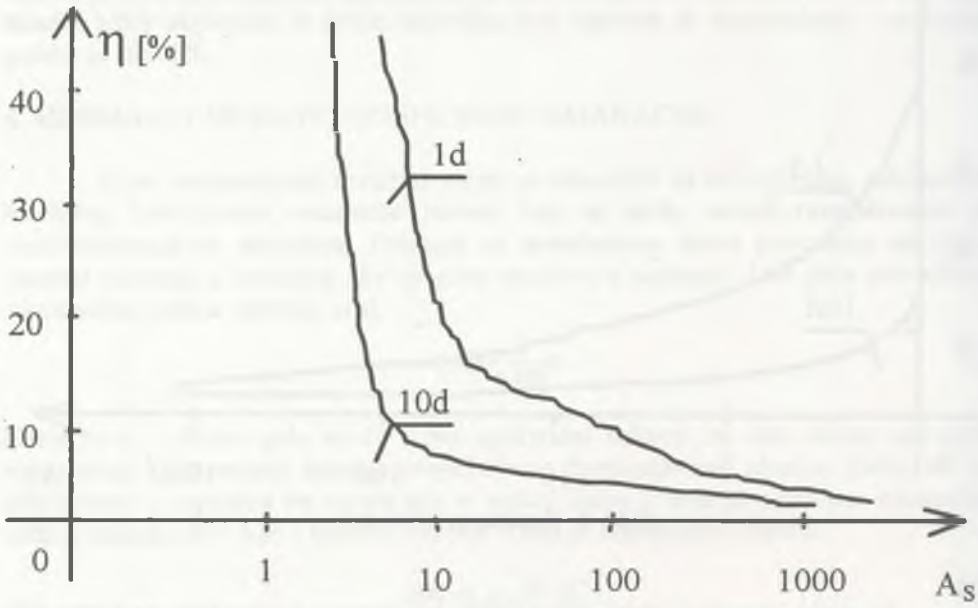
ili, koristeći (6) i (7)

$$s(N-N_0)=\sqrt{N+N_0+4N_C} \tag{9}$$

Kombinujući jednačine (1), (2), (4) i (8) dobija se jednačina analogna jednačini (5), za realniji slučaj sa uračunatim kontinuumom u γ-spektru:

$$\eta=\frac{-123,64+22,25\sqrt{30,91+t(A_s+181,82N_C)}}{A_s t} \tag{10}$$

Zavisnost minimalnog merljivog koeficijenta emanacije od koeficijenta aktivnosti radionuklida (9) predstavljena je grafički na sl. 2. za dve vrednosti vremena merenja t = 1d i t = 10d. Za N_C je uzeta tipična vrednost od 20 s^{-1}.



Slika 2. Zavisnost $\eta=\eta(A_s)$

5. ANALIZA REZULTATA I ZAKLJUČAK

Uporedjivanjem rezultata odredjivanja minimalnog merljivog koeficijenta emanacije za idealan i realan slučaj na sl. 1. i 2. može se zaključiti da se oni manje razlikuju za visoke koncentracije aktivnosti, dok je za realne koncentracije aktivnosti gradjevinskih materijala, od oko 10 do 100 Bq/kg razlika značajna. Iz grafika na sl. 2. se vidi da razmatrana γ-spektrometrijska metoda odredjivanja koeficijenta emanacije u realnom slučaju može da d_upotrebljive rezultate samo za koncentracije aktivnosti prirodnih radionuklida uranijumovog niza veće od 10 Bq/kg, a i tada samo ako je koeficijent emanacije veći od 15%, i ako je vreme merenja veće od 10 d. Kod koncentracije aktivnosti od 30 Bq/kg, što otprilike odgovara glini, betonu, crvenoj cigli, cementu, za vreme od 10 d mogu se odredjivati najmanji koeficijenti emanacije od oko 7%. Za dati detektor masa uzorka se jo_ može toliko povećati da je realno očekivati da se minimalni merljivi koeficijent emanacije smanji jo_ za faktor od 2 do 3. Uz sve nedostatke koje pokazuje razmatrana metoda, moramo imati na umu da je merna nesigurnost metode koju smo ovde detaljno analizirali potpuno predvidiva na osnovu stohastičke prirode radioakrivnog raspada. Kako smo ranije napomenuli, druge metode se oslanjaju na kalibraciju adsorbcione moći aktivnog uglja, čije su varijacije teško predvidive i mogu biti izvor sistematskih grešaka istog reda veličine kakve su stohastičke greške opisane γ-spektrometrijske metode.

LITERATURA

1. Exposures From the Uranium Series With Emphasis on Radon and its Daughters, NCRP Report No.77, Bethesda, Maryland, 1984.
2. KRISIUK E. M., Radiacionij fon pomescenij, Moskva, Energosamizdat, 1989.
3. HENDEE WILLIAM R., DOEGE THEODORE C., "Origin and Health Risk of Indoor Radon", Seminars in Nuclear Medicine XVIII, 3-9, (1987.)
4. SYKORA I. DURCIK M., STANICEK S., POVINEC P., "Radon Problem in Low-level Gamma - Ray Spectrometry", Physic Preprint No. Ph 12-91, 1991.

METODE MERENJA KOEFICIJENTA EMANACIJE RADONA

Bikit I., Slivka J., Čonkić Lj. Vesković M. Baucal M.Pavlić B.

Rezime:

U radu je dat opis metode za odredjivanje emanacionog koeficijenta radona za gradjevinske materijale za uzorke koji su u ravnoteži i one koji nisu. Eksperimentalni podaci za veliki kristal (9˝ x 9˝)NaI (Tl) sa jamom , velike uzorke (do 1kg) i dugo vreme merenja (do 10 dana) su uzeti u obzir u odredjivanju minimalno merljivog koeficijenta emanacije. Mada manje osetljiv u poredjenju sa direktnim merenjem radona metoda je pokazala fda je slobodna od sistematskih grešaka

Ključne reči: radon, minimalni merljivi koeficijent emanacije

METHODS TO MEASURE RADON EMANATION COEFICIENTS

Bikit I., Slivka J., Čonkić Lj. Vesković M. Baucal M.Pavlić B.

Abstract:

A method to determine radon emanation coefficients of building materials based on measuring the sample activity in equilibrium with its emanation and without it, is considered in this work. Experimental data from a large (9˝ x 9˝) NaI(Tl) well type detector, large sample masses (up to 1 kg), and long counting times (up to 10 d) were taken into account in evaluating the minimum measurable radon emanation coefficient. Although less sensitive as compared to methods based on activity measurement of separated radon, this method appears to be almost free of systematic errors.

Key words:radon, minimum measurable emanation coefficient

24.

ODREDJIVANJE AKTIVNOSTI KRUPNIH UZORAKA PRIMJENOM PROGRAMA "EXTSANGLE"

Perko Vukotić, Stanko Dapčević, Slobodan Jovanović
Prirodno-matematički fakultet, 81000 Podgorica, Cetinjski put b.b.
Fedor Boreli
Elektrotehnički fakultet, 11000 Beograd, Bulevar revolucije 73

1. UVOD

Poluempirijski metod za tačno izračunavanje efikasnosti Ge-detektora u piku pune energije, za cilindrične izvore i različite geometrije mjerenja, razvili su Moens et al. [1]. Pri mjerenju izvora zračenja (uzorka), efikasnost e se odredjuje prema formuli

$$\varepsilon_g = \epsilon_r \frac{\Omega_g}{\Omega_r}$$

gdje je Ω efektivni prostorni ugao, indeks "r" se odnosi na referentnu, a indeks "g" na aktuelnu geometriju mjerenja. Efektivni prostorni ugao se definiše preko geometrijskog prostornog ugla pod kojim se kristal detektora "vidi" sa izvora, uz uključivanje efekta atenuacije γ-zraka izvan aktivne zone detektora i vjerovatnoće za interakciju γ-zraka sa materijalom detektora.

Za izračunavanje Ω isti autori su razvili kompjuterski program SOLANG [1] primjenljiv na uzorke cilindričnog oblika, koji su koaksijalno pozicionirani sa detektorom, a radijus im je manji od radijusa kristala detektora. Uporedjivanjem

izračunatih vrijednosti za efikasnost sa eksperimentalno odredjenim, dobijene su greške koje ne prelaze 3 %.

Na PMF-u u Podgorici razvijen je program EXTSANGLE [2], koji predstavlja proširenje programa SOLANG na uzorke sa radijusom većim od radijusa kristala detektora, što je od posebnog značaja za mjerenje uzoraka niskih aktivnosti (npr. iz životne sredine). EXTSANGLE nudi izbor primjene za različite tipove poluprovodničkih detektora: HPGe, Ge(Li) sa otvorenim ili zatvorenim krajem i LEPD. Predvidjeno je i uzimanje u obzir eventualnog postojanja berilijumskog prozora i antimikrofonske zaštite detektora. Program zahtijeva podatke o hemijskom sastavu i geometrijskim karakteristikama uzorka, kao i o svim apsorbujućim slojevima na putu zračenja od izvora do aktivnog dijela detektora. Na osnovu fajla sa bazom podataka o koeficijentima apsorpcije, program izračunava te koeficijente za aktuelnu kompoziciju izvora (smješa elemenata ili jedinjenja) i to za zadati set γ-energija od interesa u datom slučaju. Potrebno vrijeme za izračunavanje efektivnih prostornih uglova, za 15-tak energija i za uzorak složenog hemijskog sastava, na kompjuteru PC 386 (33 MHz, sa koprocesorom) je oko 15 minuta.

Program EXTSANGLE je testiran eksperimentalno u laboratorijama u Podgorici, Gentu i Ljubljani [2]. Eksperimenti su bili tako postavljeni da se eliminiše uticaj greške odredjivanja krive efikasnosti u referentnoj geometriji, a dijelom i uticaj fizičkih parametara detektora, čime je ustvari izvršeno uporedjenje tačnosti samog programa EXTSANGLE prema programu SOLANG. Za najnepovoljniji eksperimentalni aranžman sa aspekta samog programa, a to je snimanje uzorka kada je neposredno na detektoru, dobijeno je da razlika rezultata dva programa ne prelazi 7 %, čto je dobra potvrda tačnosti EXTSANGLE-a. Medjutim, zapaža se da je to odstupanje sistematsko, tj. da su izračunate vrijednosti za efikasnost uvijek veće od eksperimentalno dobijenih. To može biti rezultat kako samog matematičkog modela, tako i nedovoljno tačno poznatih fizičkih parametara detektora.

Radi toga izvršili smo ispitivanje tačnosti primjene programa EXTSANGLE u uobičajenim eksperimentalnim uslovima mjerenja radioaktivnosti uzoraka, kao i analizu kritičnosti uticaja pojedinih parametara na tačnost rezultata mjerenja, i to prezentiramo u ovom radu.

2. UTICAJ PARAMETARA DETEKTORA I GEOMETRIJE MJERENJA NA TAČNOST IZRAČUNAVANJA EFIKASNOSTI

Na listi sa specifikacijama našeg detektora dati su sljedeći njegovi fizički parametri: - prečnik kristala 49.4 mm; - dužina kristala 48 mm: - masa kristala 480 γ: - aktivna površina naspram prozora 18.7 cm^2; - prečnik p-core 8 mm; - dužina p-core 25 mm; - rastojanje kristala od prozora detektora 5 mm; - debljina n-sloja 0.3 mm. Drugih podataka nema, niti komentara o tačnosti datih podataka.

Radi toga, uradili smo nekoliko rentgenskih snimaka detektora i uočili sljedeće bitne činjenice:

a.) kristal detektora nije koaksijalan sa svojim Al-kućištem,

b.) osnove kristala nijesu sasvim ravne,

c.) kristal se unutar detektora nalazi u cilindričnom držaču oko čijeg je jednog dijela prsten,

d.) sloj vakuuma izmedju kristala i prozora je nejednake debljine.

Sve ove činjenice predstavljaju značajna odstupanja od predpostavljenih (idealnih) uslova prema kojima je napravljen program EXTSANGLE. Kako se od njih samo ona navedena pod tačkom c može u programu djelimično korigovati, navedena odstupanja će sigurno uticati na smanjenje tačnosti njegove primjene.

Na osnovu rentgenskog snimka i nekih tipičnih podataka za HPGe detektor, koji se mogu naći u katalogu proizvodjača, usvojili smo još i sljedeće dopune već navedenim podacima: - debljina zida Al-kućišta kristala 1.5 mm; - debljina vakuuma izmedju držača i kućišta detektora 10.8 mm; - debljina i materijal držača kristala 0.6 mm Al; - debljina vakuuma izmedju kristala i držača 0.5 mm; - debljina i materijal unutrašnjeg kontakta 0.2 mm Au.

U dugoj praksi primjene programa SOLANG pokazalo se da je, sa aspekta tačnosti mjerenja aktivnosti uzoraka, kritično poznavanje stvarnih vrijednosti sljedećih parametara detektora (po redosljedu važnosti): radijusa kristala, rastojanja izmedju kristala i prozora detektora i, naročito za niske energije zračenja, debljine n-sloja [3]. Da bi vidjeli kako parametri detektora i geometrije utiču na vrijednost odnosa efektivnih prostornih uglova u mjernoj i referentnoj geometriji ($\Omega g/\Omega_r$) izračunatu programom EXTSANGLE, varirali smo vrijednosti nekih od tih parametara. Pri tome su svi parametri uzimani sa osnovnim (usvojenim ili izmjerenim) vrijednostima, osim jednog, koji je bio uvećan ili umanjen za neki procenat. Različiti procenti varijacije osnovnih vrijednosti parametara izabrani su na osnovu realnosti opsega moguće greške njihovog odredjivanja. Rezultati, dobijeni za dvije vrijednosti γ-energija, prikazani su na Tabeli 1.

Tabela 1. Uticaj netačnosti poznavanja parametara na vrijednost Ω_g/Ω_r

E_γ (keV)	$\delta(\Omega_g/\Omega_r)$(%)											
	r+2.0 %	r-2.0 %	n+67 %	n-67 %	v+20 %	v-20 %	d+20 %	d-20 %	h+20 %	h-20 %	H+2.6 %	H-2.6 %
122	-0.85	+0.87	-2.88	+3.23	-2.11	+2.05	-0.50	+0.26	-0.79	+0.80	+4.77%	-4.68%
662	-0.58	+0.56	-0.99	+1.02	-2.40	+2.44	-0.40	+0.25	-0.80	+0.79	+4.54%	-4.44%

Oznake u Tabeli 1 znače sljedeće: r - radijus kristala, n - debljina n-sloja, v - debljina vakuuma izmedju kristala i prozora, d - debljina Al-prozora i zida kućišta, h=1 mm - rastojanje dna posude sa uzorkom od prozora detektora, H=156 mm - rastojanje kvazitačkastog izvora u referentnoj geometriji od prozora detektora.

Vidi se da najveći uticaj na rezultat izračunavanja efikasnosti programom EXTSANGLE ima tačnost mjerenja referentne pozicije, zatim poznavanje stvarnog rastojanja izmedju kristala i prozora detektora i za niske energije tačnost sa kojom je data debljina n-sloja. Ostali parametri su prihvatljivi i sa manjom tačnošću njihovog poznavanja.

3. EKSPERIMENT

Kriva efikasnosti za referentnu geometriju (rastojanje izvor - prozor detektora je 156 mm), dobijena je na osnovu mjerenja aktivnosti 6 kvazi tačkastih DUPONT-NEN gama referentnih izvora: Na-22, Mn-54, Co-57, Co-60, Ba-133 i Cs-137. Eksperimentalni podaci za efikasnost, dobijeni sa greškom 3-6.5 %, fitovani su polinomom petog stepena.

Da bi provjerili metod odredjivanja aktivnosti krupnih uzoraka primjenom programa EXTSANGLE, analizirali smo dva vrlo različita uzorka.

Uzorak I je napravljen od referentnog rastvora MIX-OMH-F, koji sadrži radionuklide Na-22, Co-57, Co-60, Y-88, Ba-133 i Cs-137. Rastvor mase 189.8 g nasut je u plastičnu posudu prečnika 89.2 mm, debljine zidova 1 mm, do visine 30.4 mm i sniman je u poziciji direktno na detektoru (rastojanje dno posude - prozor detektora je 1 mm), koja je najnepovoljnija za tačnu primjenu EXTSANGLE-a. Aktivnost radionuklida u uzorku je 20-70 Bq, a spektar je sniman 4000-kanalnim analizatorom tokom 28000 s.

Uzorak II je geološkog porijekla, napravljen od sprašenog dacita sa područja Pljevalja, čiji smo sastav ranije više puta vrlo tačno i precizno odredjivali neutronskom aktivacionom analizom i od kojeg smo napravili laboratorijski standard kojim se služimo već duže vremena. Koncentracije K i Th u njemu su 2.78 % i 6.5 mg/g respektivno. Prah dacita mase 852.2 g nasut je u plastičnu cilindričnu posudu prečnika 94.3 mm, debljine zidova 1 mm, do visine 81mm. Uzorak II je sniman u istoj poziciji kao i uzorak I, ali tokom 263000 s. Gama-fon prostorije je zatim sniman tokom 138000 s.

Relativne greške dA odredjivanja aktivnosti radionuklida u uzorcima preko pojedinih njihovih g-linija, korišćenjem kompjuterskog programa EXTSANGLE za izračunavanje efikasnosti, date su u Tabeli 2.

Tabela 2. Relativne greške odredjivanja aktivnosti A

	UZORAK I												UZORAK II		
	^{133}Ba					^{57}Co		^{60}Co		^{22}Na	^{88}Y	^{137}Cs	^{40}K	^{232}Th	
E_g(keV)	81	276	303	356	384	122	136	1173	1332	1274	898	662	1461	338	911
βA(%)	-33.8	-0.1	-6.0	-3.7	-0.5	-11.0	-7.6	-3.8	-8.0	-13.7	-3.9	-5.3	-4.7	-13.4	-12.0

Iz Tabele 2 je jasno vidljiva generalna tendencija, već indirektno naslućena ranije [2], da EXTSANGLE daje vrijednosti za aktivnosti koje su nešto niže od tačnih (sertifikovanih). Medjutim, veličina odstupanja je sasvim prihvatljiva za sve γ-linije izuzev za liniju Ba-133 na 81 keV. Pravi razlog za ovako veliku grešku rezultata dobijenog korišćenjem te linije nije lako otkriti, mada je očigledno da je fitovanje podataka za efikasnost u referentnoj geometriji vrlo osjetljivo u oblasti maksimuma krive, zbog malog broja eksperimentalnih tačaka u toj oblasti energija i zato je i nepouzdano. Taj uticaj je primjetan i kod linija Co-57, koje su takodje u toj oblasti, pri njenom kraju. Moguće da bi trebalo usvojiti i veću vrijednost debljine n-sloja detektora, što bi poboljšalo rezultate za najniže energije [4]. U svakom slučaju, izvjesno je, kriva efikasnosti u referentnoj geometriji, za tačnija mjerenja aktivnosti korišćenim metodom, mora biti uradjena na osnovu znatno većeg broja eksperimentalnih podataka.

4. ZAKLJUČAK

Korišćenje programa EXTSANGLE za izračunavanje efektivnih prostornih uglova i preko njih efikasnosti detektora, omogućava odredjivanje aktivnosti krupnih uzoraka fleksibilnim apsolutnim metodom, sa zadovoljavajućom tačnošću. Metod je posebno pogodan za mjerenje radioaktivnosti uzoraka vode, hrane, tla, gradjevinskih materijala i sl.

LITERATURA

1. L. Moens, J. De Donder, Lin Xilei, F. De Corte, A. De Wispelaere, A. Simonits, J. Hoste, Nucl. Instr. Methods, 187 (1981) 451.
2. N. Mihajlović, S. Jovanović, F. De Corte, B. Smodiš, R. Jaćimović, A. Dewispelaere, G. Medin, P. Vukotić, P. Stegner, J. Radioanal. Chem., Articles, 169 (1993) 209.
3. F. De Corte, The k_0-standardization method, Aggregate thesis, University of Gent - 1987.
4. A.De Wispelaere, F. Bellemans, F. De Corte, Proceedings of the International k_0-Users Work-shop - Gent, Astene, Belgium, Sept. 30 - Oct. 2, 1992, p.45.

ODREDJIVANJE AKTIVNOSTI KRUPNIH UZORAKA PRIMJENOM PROGRAMA "EXTSANGLE"

Perko Vukotić, Stanko Dapčević, Slobodan Jovanović, Fedor Boreli

Rezime:

Kompjuterski program nazvan EXTSANGLE korišćen je za određivanje efikasnosti ε preko prostornog ugla Ω za krupne cilindrične uzorke.

Ispitivan je uticaj neodređenosti ulaznih podataka (unutrašnje dimenzije detektora i rastojanje izvor-detektor) na izračunavanje vrednosti Ω, a takođe i greške koje utiču na određivanje aktivnosti uzoraka ovim putem. Zaključeno je da EXTSANGLE može biti korišćen sa zadovoljavajućom tačnošću za merenje aktivnosti radionuklida za različite tipove uzoraka niskih aktivnosti.

Ključne riječi: gama-aktivnost, krupni uzorci, Ge-detektor, izračunavanje efikasnosti.

ACTIVITY DETERMINATION OF BULKY SAMPLES BY USING THE COMPUTER CODE "EXTSANGLE"

Perko Vukotić, Stanko Dapčević, Slobodan Jovanović, Fedor Boreli

Abstract:

Semiempirical method for the efficiency ε calculation of bulky cylindrical samples via effective solid angles Ω - written as the computer code EXTSANGLE - is applied in this work to two samples: a reference solution and a geological one of well known composition. The impact of the uncertainties in the input data (detector inner dimensions and source-to-detector distance) on the calculated Ω-values is studied, as well as the errors made when determining the sample activities by this method. It is concluded that EXTSANGLE can be applied with a satisfactory accuracy to radioactivity measurements in various types of low activity (e.g. environmental) samples.

Key words: gamma-activity, bulky samples, Ge- detector, efficiency calculation.

25.

ODREĐIVANJE PRIRODNIH IZOTOPA URANIJUMA I TORIJUMA U UZORCIMA NISKIH AKTIVNOSTI METODOM ALFA-SPEKTROMETRIJE

Mirjana Radenković, Vojislava Šipka,
Institut za nuklearne nauke "Vinča", p.p. 522, YU 11001 Beograd
Dubravka Vuković
Veterinarski i mlekarski institut, YU-11001 Beograd

1. UVOD

Prirodni radionuklidi su prisutni na Zemlji (u atmosferi, hidrosferi, litosferi i biosferi), kao posledica postojanja nizova prirodnih radioaktivnih elemenata i kosmičkog zračenja. Različitost nivoa prirodne radioaktivnosti uslovljena je različitom rasprostranjenošću pojedinih hemijskih vrsta, procesima migracije, a često i čovekovim delovanjem. Neki radionuklidi mogu biti veoma opasni i u ekstremno niskim koncentraijama, te je mogućnost njihovog odredjivanja od velikog značaja. Od posebnog interesa su izotopi urana i torijuma, kojima započinju nizovi radioaktivnih elemenata u prirodi.

Prirodni uranijum ima tri dugoživeća izotopa: ^{238}U ($T_{1/2}$=4.5x10^9 god), ^{235}U ($T_{1/2}$=7.1x10^8 god.), i ^{234}U ($T_{1/2}$=2.5x10^5 god.), čija je rasprostranjenost izražena odnosom: 1:1/140:1/17000. Javlja se u četiri valentna stanja (+3 do +6). U trovalentnom stanju je jako redukciono sredstvo, u četvorovalentnom se lako oksiduje, u petovalentnom je nestabilan, dok je u šestovalentnom najstabilniji. Peto- i šestovalentni u rastvoru se javljaju u obliku uranil-jona UO_2^+ i UO_2^{2+}. Sklonost ka hidrolizi i obrazovanju kompleksa opada u sledećem nizu: $U^{4+}>UO_2^{2+}>U^{3+}>UO_2^+$. Koncentracije uranijuma u pijaćim, rečnim i mineralnim vodama sa područja Srbije su različite a kreću se od 1ng/l-6μg/l. Koncentracija uranijuma u zemljištu sa područja Srbije se kreće do 6 μg/g [1].

Torijum ima šest izotopa koji se mogu naći u prirodi: ^{234}Th, ^{232}Th ($T_{1/2}=1.405x10^{10}$ god.), ^{231}Th, ^{230}Th($T_{1/2}=7.538x10^{4}$ god.), ^{228}Th($T_{1/2}=1.91$ god.) i ^{227}Th. četvorovalentan je, a obrazuje nerastvorne fluoride, hidrokside, perokside i jodate. Ispoljava veliku sklonost ka hidrolizi, adsorpciji na katjonima i obrazovanju kompleksa. Obrazuje mnogobrojna helatna jedinjenja koja su nerastvorna u vodi a rastvorna u organskim rastvaračima, kao i intermetalna jedinjenja. Sadržaj torijuma u zemljištu sa područja Srbije kreće se do 15 μg/g [1] . Pošto se jedinjenja torijuma odlikuju niskom rastvorljivošću, on se u prirodnim vodama (sa izuzetkom mineralnih i termalnih) nalazi u malim količinama.

Kvantitativno odredjivanje uranijuma i torijuma može se izvesti korišćenjem različitih fizičko-hemijskih metoda (fluorimetrijski, rentgenskom fluorescentnom analizom, spektrofotometrijski, radiometrijski, polarografijom itd.), a izbor metode zavisiće od specifičnosti zahtevane analize.

2. ALFA-SPEKTROMETRIJSKA METODA

Alfa-spektrometrijska metoda omogućava pouzdano odredjivanje veoma niskih nivoa aktivnostim radionuklida, uz identifikaciju pojedinačnih alfa-emitera. Zato je pogodna za odredjivanje niskih koncentracija uranijuma i torijuma u uzorcima iz životne sredine. Nedostatak metode je dugotrajan a ponekad i skup postupak pripreme radioaktivnog izvora za merenje, koji obuhvata radiohemijsku separaciju. Zbog značajne samoapsorpcije, potrebno je da izvor bude izuzetnog kvaliteta, a uslovi merenja dobro definisani. Procedura obuhvata:

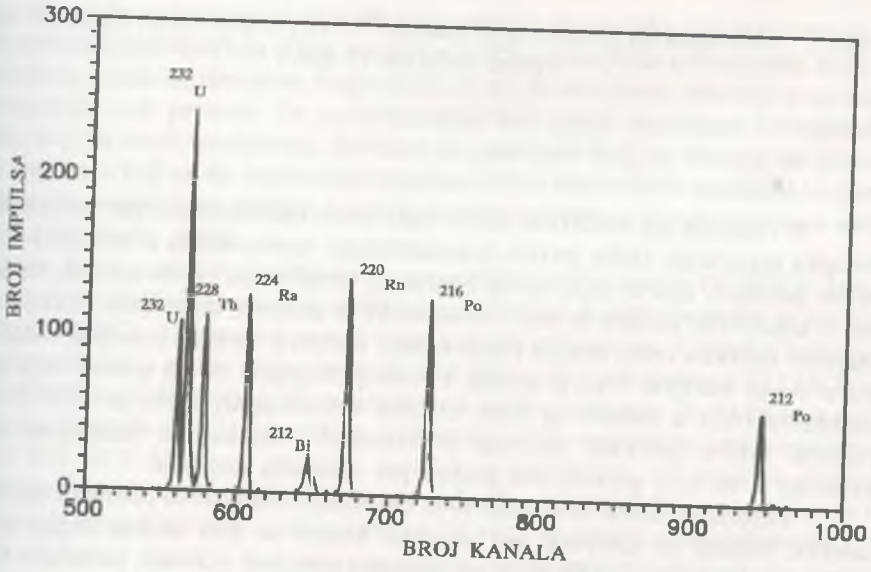
1. Pripremu uzorka za hemijski tretman
2. Radiohemijsku separaciju
3. Preparaciju tankoslojnih izvora
4. Merenje na alfa-spektrometarskom sistemu
5. Obradu rezultata.

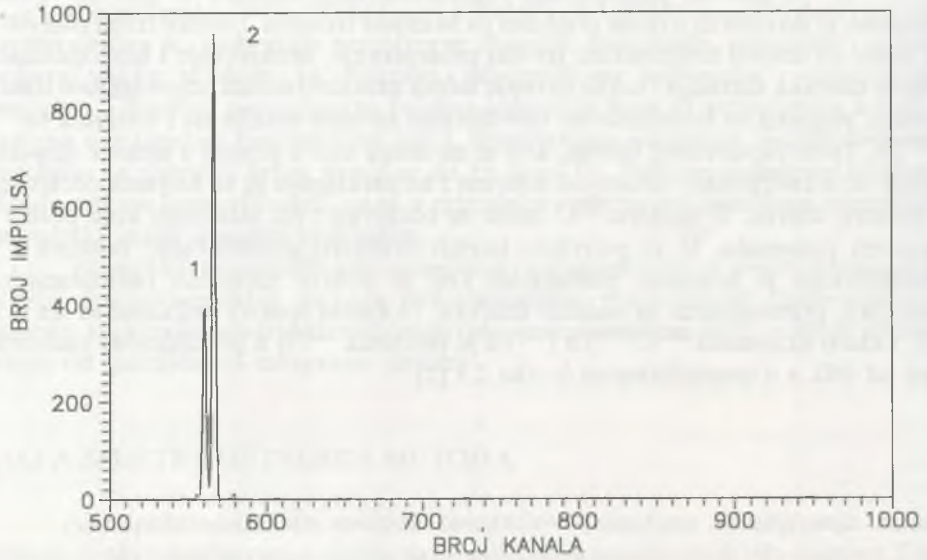
Radiohemijska procedura za izdvajanje urana i torijuma iz uzoraka niskih aktivnosti iz životne sredine, razvijena je u okviru istraživanja procesa migracije pojedinih radionuklida kroz ciklus ishrane (voda, zemlja, biljke, životinje), a biće skicirana i objašnjena na primeru alfa-spektrometrijskog odredjivanja izotopa urana i torijuma u uzorcima vode, zemlje i mineralnog djubriva.

2.1.Priprema uzoraka za hemijski tretman

Termin "izvori niskih aktivnosti" odnosi se obično na prirodno radioaktivne supstance (voda, vazduh, uzorci biljnog i životinjskog porekla), koje tipično sadrže aktivnosti do 0.04 Bq/g [1] . S obzirom na to da su granice detekcije većine brojačkih sistema reda 10^{-5} Bq/g, merenje niskih aktivnosti u uzorcima iz životne sredine može biti veoma otežano. Zato je od izuzetnog značaja dobro uzorkovanje i odgovarajuća priprema uzoraka, jer eventualne greške mogu dati potpuno pogrešnu informaciju o prisutnim nivoima aktivnosti u analiziranom materijalu, bez obzira na tačnost merenja.

Po propisnom prikupljanju reprezentativnih uzoraka iz životne sredine, potrebno je dovesti ih u oblik pogodan za hemijski tretman. Uzorke treba ostaviti da se osuše na sobnoj temperaturi, izvršiti prosejavanje, usitnjavanje i homogenizaciju čvrstih uzoraka, filtraciju i zakišeljavanje tečnih uzoraka i dodati odgovarajuće trasere. Traseri, pogodni za kvantitativno odredjivanje izotopa uranijuma i torijuma su ^{232}U i ^{229}Th. To su proizvedeni izotopi, koji se ne mogu naći u prirodi a njihove alfa-linije nalaze se u energetskoj oblasti od interesa i ne preklapaju se sa linijama očekivanim u spektru uzorka. U spektru ^{232}U može se očekivati i niz alfa-linija koje potiču od njegovih potomaka, te je potrebno izvršiti hemijsko prečišćavanje rastvora ^{232}U. Prečišćavanje je uradjeno postupkom koji je gotovo identičan radiohemijskom postupku, primenjenom za analizu uzoraka. Dobijeni spektri prikazani su na sl.1. i sl.2. Odnos aktivnosti $^{232}U/^{228}Th$ (^{228}Th je potomak ^{232}U) u prečišćenom rastvoru je veći od 100, a u neprečišćenom je oko 2.3 [1].





Slika 2. Alfa-spektar prečišćenog trasera ^{232}U (E_1=5.263 MeV, E_2=5.320 MeV), vreme merenja 15 000 s

S obzirom na očekivane nivoe aktivnosti radionuklida, pre radiohemijskog postupka separacije, treba izvršiti koncentrisanje radionuklida u uzorcima. Za to se koriste postupci uparavanja, suvog i mokrog spaljivanja, taloženja, itd., zavisno od toga o kojoj vrsti uzorka se radi (neorganski ili biološki materijal). Poreklo i način pripreme uzoraka vode, zemlje i mineralnog djubriva za dalji hemijski tretman biće dati u ovom odeljku. Uzorci zemlje i vode prikupljeni su na parceli koja pripada kombinatu PKB u Jabučkom Ritu. Uzorak veštačkog djubriva je NPK (10:30:20), proizvod HIP-a (poreklo sirovina je Maroko). Analizirano mineralno djubrivo korišćeno je na istoj parceli, dve godine pre uzimanja uzoraka.

Zemlja je uzeta sa dubine 5-30 cm (linija oranja), sa površine od 200 cm^2. Lucerka, kojom je zasejana ova parcela, koristi se kao stočna hrana na istom gazdinstvu. 10g zemlje osušeno je na vazduhu, isitnjeno u avanu, prosejano kroz sito ϕ=3 mm i homogenizovano. Dodato po 0.1 Bq trasera ^{232}U i ^{229}Th.

Analizirana je voda koja se koristi za navodnjavanje pomenute parcele. 20 l vode je upareno, ispod tačke ključanja, do zapremine od 500-800 ml, zatim upareno do vlažnih soli na peščanom kupatilu. Suvi ostatak je sušen na 105 ^{O}C, a zatim žaren na 550 ^{O}C. Ovakvom pripremom najveći deo prisutne metasilicijumove kiseline (H_3SiO_3) preveden je u nerastvorni SiO_2 , te je izbegnuto korišćenje fluorovodonične kiseline. Talog je zatim rastvoren u 2M HNO_3. Dobijenom rastvoru dodato je po 0.1 Bq obeleživača ^{232}U i ^{229}Th, i izvršeno filtriranje.

Odmerenom uzorku djubriva (2.5g) dodat je vodonikperoksid i po 0.1Bq trasera ^{232}U i ^{229}Th. Uzorak je rastvaran, uz zagrevanje do ključanja, u carskoj vodi, razblažen i profiltriran. Izvršena je oksidacija vodonikperoksidom a zatim i taloženje natrijumhidroksidom (do pH>10). Posle filtriranja talog je tretiran azotnom kiselinom do prevodjenja prisutnih jonskih vrsta u nitratni oblik. Zatim je izvršena oksidacija dodatkom natrijumnitrita.

Dalja procedura ista je za sve tri vrste uzoraka.

2.2. Radiohemijska separacija

Osnovu primenjenog postupka čini: "Metoda za odredjivanje Th, U i Pu izotopa u atmosferskim padavinama", čiji su autori Jiang, Bakhtiar i Kuroda [3], a koja omogućava odredjivanje veoma niskih aktivnosti u uzorcima od 40-50 l kišnice, uz efikasnost postupka 60-80%. Izvršene su izvesne modifikacije u cilju skraćenja postupka i pojeftinjenja metode (izbegnuto teflonsko posudje, HF, itd.) kao i u cilju analize drugih vrsta uzoraka niskih aktivnosti.[4,7]. Tako je postignuta veća efikasnost radiohemijskog postupka separacije, a optimalna količina uzorka, potrebna za analizu je smanjena.

Hemijsko izdvajanje pojedinih radionuklida iz uzoraka kao i separacija od ostalih prisutnih radionuklida vrši se različitim fizičko-hemijskim postupcima, najčešće ekstrakcijom, jonskom izmenom, koprecipitacijom, destilacijom, odnosno pogodnom kombinacijom ovih procesa. Za radiohemijsko izdvajanje uranijuma i torijuma iz uzoraka koji su ovde analizirani, korišćen je postupak koji se zasniva na procesu jonske izmene, a koji može omogućiti i izuzetno dobro razdvajanje urana od torijuma. Primenjeni postupak biće izložen samo u glavnim crtama, a detalji se mogu naći u priloženoj literaturi [8,9].

Za jonsku izmenu korišćena je jonoizmenjivačka smola DOWEX 1x4, sa veličinom čestica 100-200 mesh-a, u hloridnom obliku. Kondicioniranje je izvršeno pomoću 8M HNO_3. Optimalni protok kroz kolonu je 1ml/min. Uranska frakcija se sa jonoizmenjivačke smole eluira pomoću 8M HNO_3, a torijumska sa 9M HCl.

Uranska frakcija, koja je u nitratnom obliku, uparena je do suva a zatim rastvorena pomoću HCl, i prevedena u hloridni oblik trostrukim uparavanjem do suva sa 8M HCl. Dobijeni hloridni rastvor se prečišćava od tragova torijuma propuštanjem kroz jonoizmenjivačku smolu u hloridnom obliku. Uran je eluiran sa 1M HCl. Eluat je uparen do suva a talog tretiran 8M HCl. U slučaju prisustva gvoždja, što se može očekivati naročito kod uzoraka zemlje, treba izvršiti i ekstrakciju pomoću diizopropiletra.

Torijumska frakcija, koja je u hloridnom obliku, prevodi se u nitratni oblik, pomoću 8M HNO_3, propuštanjem kroz jonoizmenjivačku smolu, koja će zadržati torijum. Tragovi urana su uklonjeni propuštanjem 8M HNO_3, a zatim je torijum eluiran pomoću 9M HCl.

2.3. Preparacija tankoslojnih izvora

Alfa-spektrometrijska merenja zahtevaju homogene, tankoslojne izvore. Samoapsorpcija može znatno smanjiti efikasnost brojanja i reproduktivnost rezultata. Da bi korekcija za samoapsorpciju bila ispod 1%, debljina izvora treba da bude manja od 1% od prosečnog dometa alfa čestica kad se broji u 2π geometriji. Ovaj kriterijum znači da površinska gustina uzorka treba da je manja od 100 $\mu g/cm^2$. Zato se za preparaciju izvora koriste metode kao što su vakuumsko naparavanje, elektrodepozicija, spontana depozicija itd [2].

Za pripremu tankih, homogenih i stabilnih izvora urana i torijuma korišćen je postupak elektrodepozicije, tj. elektrolitičkog nanošenja na nosač. Primenjena je Talvitie-va procedura [10] , koju je modifikovo Hallstadius. [11] Eluat, dobijen hemijskom separacijom, uparen je do suva, a zatim preveden u odgovarajući hemijski oblik iz koga se vrši elektrodepozicija. Najvažnije je dobro podesiti pH, jer se taj uslov najviše odražava na prinos postupka. Anoda je platinska žica, ϕ=1.2 mm, pogodnog oblika, a katoda fino polirana pločica od nerdjajućeg čelika, dijametra 19 mm. ćelija za elektrodepoziciju (zapremine 20 cm^3) je vezana na jednosmerni izvor napona (30 V). Torijumski izvor po depoziciji treba prekriti vyns-folijom da bi se izbegla eventualna kontaminacija detektora. Ovako primenjen postupak daje vrlo visok prinos (98%).

2.4. Merenje na alfa-spektrometarskom sistemu

Alfa-spektrometrijska metoda daje mogućnost energetskog razdvajanja alfa-čestica koje potiču od različitih izotopa, a odlikuje se visokom osetljivošću. U sastav alfa-spektrometarskog sistema ulaze: izvor napona, vakuum pumpa, vakuum komora sa detektorom, pretpojačavač, pojačavač, višekanalni analizator i računar sa odgovarajućim softverom za obradu dobijenih podataka. Pre početka merenja potrebno je izvršiti energetsku kalibraciju spektrometra, pomoću standarda, čije se energije nalaze u oblasti od interesa. Pogodni su: ^{244}Cm, ^{241}Am, ^{239}Pu i ^{233}U.

Važnije karakteristike korišćenog spektrometarskog sistema (Canberra 2004): vakuum ispod $20x10^{-6}$ bara, PIPS detektor, površine 100 mm^2, rezolucija 24 keV, energija po kanalu oko 9 keV, fon oko $1.3x10^{-4}$ imp/s u energetskoj oblasti 3.5-9.5 MeV, efikasnost detekcije 2%, pri udaljenosti izvora 20 mm od površine detektora.

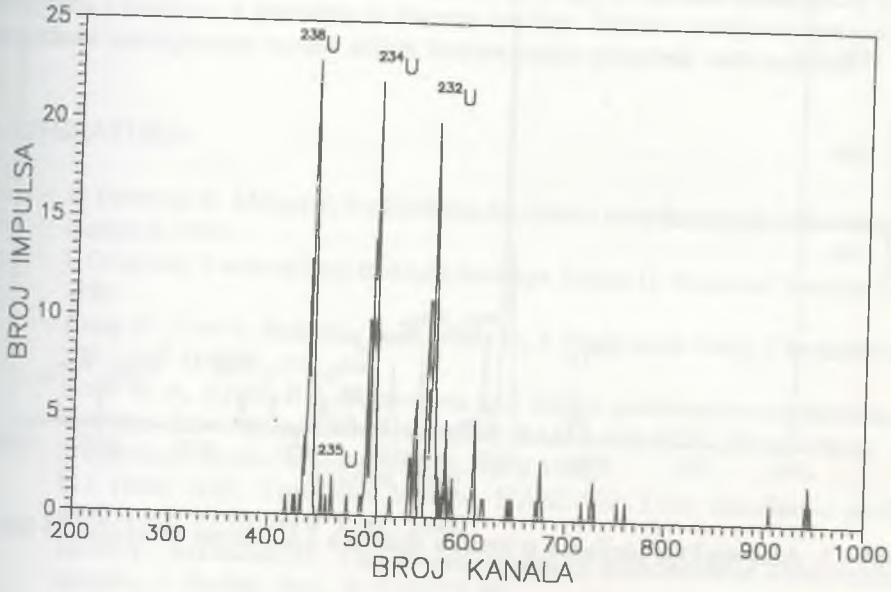
Pošto se radi o izvorima niske aktivnosti (traser je aktivnosti 0.1 Bq), potreban je period od nekoliko dana merenja da bi se prikupio dovoljan broj impulsa za odredjivanje aktivnosti.

Efikasnost brojačkog uredjaja može se povećati smanjenjem rastojanja detektor-izvor, kao i dužim snimanjem, medjutim, promenom ovih parametara menja se i rezolucija, pa treba naći njihov optimalan odnos.

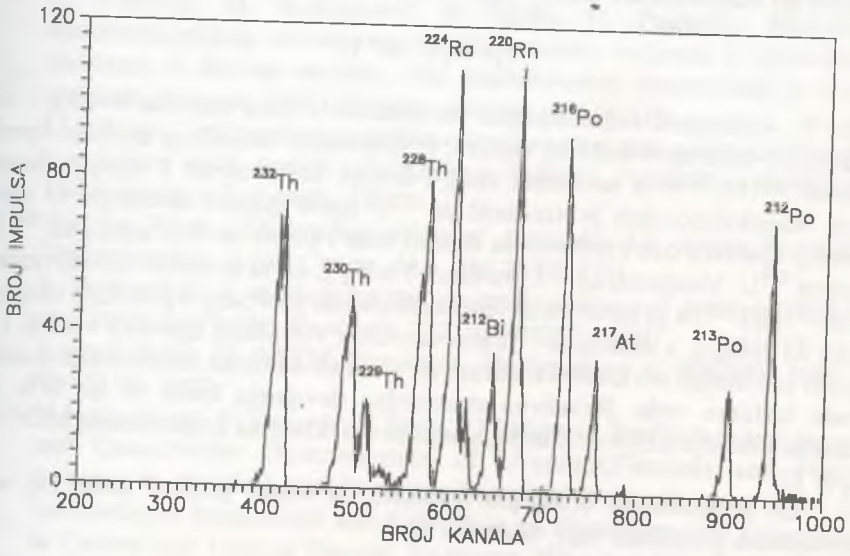
2.5. Obrada rezultata

Primenjenim radiohemijskim postupkom izotopi uranijuma i torijuma u uzorcima vode, zemljišta i veštačkog djubriva, uspešno su razdvojeni. Primeri dobijenih

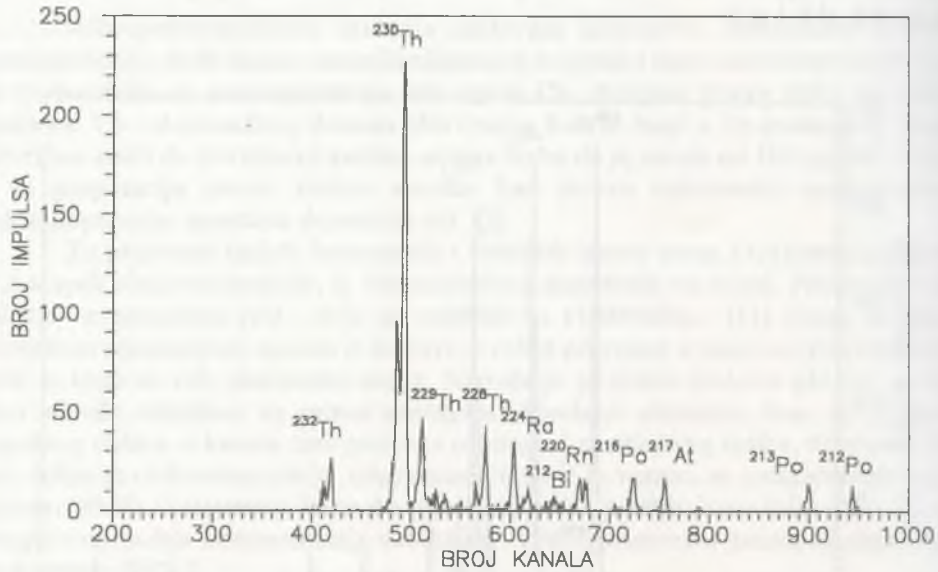
spektara izotopa urana i torijuma sa potomcima, u uzorcima zemlje i djubriva dati su na sl.3, sl.4. i sl.5.



Slika 3. Alfa-spektar urana u uzorku zemlje 2A (vreme merenja 340 000 s)



Slika 4. Alfa-spektar torijuma u uzorku zemlje 2A (vreme merenja 165 000 s)



Slika 5. Alfa-spektar torijuma u uzorku djubriva 1A (vreme merenja 165 000 s)

Efikasnost radiohemijske procedure odredjivana je za svaki izvor pojedinačno, u odnosu na odgovarajući traser, i iznosi do 90%, a odredjena je iz relacije [12]

$$Y_r = N_t\, t^{-1}\, A^{-1}\, E^{-1}$$

gde je: Y_r -efikasnost radiohemijske procedure, N -broj impulsa trasera, t -vreme snimanja, A -aktivnost dodatog trasera, E -efikasnost brojačkog uredjaja. Specifična aktivnost ^{238}U i ^{234}U u uzorcima vode i zemlje kreće se do 2 mBq/l odnosno 14 mBq/g, respektivno, dok je vrednost za ^{235}U ispod granice detekcije. U uzorcima veštačkog djubriva ove vrednosti su daleko veće i iznose do 280 mBq/g za ^{238}U i 250 mBq/g za ^{234}U. Vrednosti za ^{235}U su oko 10 mBq/g, ali sa greškom odredjivanja 60%. Izotopi ^{232}Th i ^{228}Th prisutni su u svim analiziranim uzorcima u približno istoj količini od oko 35 mBq/g, a aktivnost ^{230}Th u uzorcima veštačkog djubriva veća je i do 10 puta, što se i moglo očekivati s obzirom na to da su dobijena tehnološkim postupkom prerade fosfatne rude. Relativna standardna devijacija kreće se do 30%. Donja granica detekcije je LLD=1-35mBq, a najniža detektabilna koncentracija MDC=0.2-14 mBq/g [2] .

Za brzu obradu dobijenih rezultata od velike pomoći može biti neki od komercijalnih programa (npr. Maestro II).

3. ZAKLJUČAK

Primenjenom alfa-spektrometrijskom metodom mogu se odrediti pojedinačni izotopi uranijuma i torijuma u uzorcima iz životne sredine. Visoka osetljivost metode daje mogućnost odredjivanja veoma niskih koncentracija prisutnih radionuklida.

4. LITERATURA

1. B. Petrović, R. Mitrović, Radijaciona higijena u biotehnologiji, Naučna knjiga, Beograd, 1991.
2. I. Draganić, Radioaktivni izotopi i zracenja ,knjiga II, Beograd: Naučna knjiga 1982.
3. Jiang, F. , Lee S., Bakhtiar S., Kuroda P., J. Radioanal .Nucl. Chem. Articles, 100,1,p.65 (1986)
4. Kolb. W.A., Krupa R.J., Separation and Alpha spectrometry of thorium and uranium from ground-level aerosols, IAEA-SH-252/8, Proceedings of a Symposium Berlin, Germany, 6-10.April 1981.
5. H.J. Harly (ed), Procedure Manual, HASL-300, Total dissolution method, section 4.5, 95-98, New York, 1992.
6. Inoue,Y., Sakanoue,M., The determination of plutonium in environmental samples, J. Radiat. Res., 9, 3 (1970) 98.
7. S.Kudra "Radiohemijsko odredjivanje plutonijuma u atmosferi", specijalisticki rad, Univerzitet u Beogradu PMF, 1990.
8. D. Vuković, M. Radenković, V. Šipka, D. Paligorić, Metoda alfa-spektrometrijskog odredjivanja izotopa urana, torijuma i plutonijuma u uzorcima iz životne sredine, XII jugoslovenski simpozijum o zaštiti od zračenja, Beograd 1993, Zbornik radova, str 115-118.
9. D.Vuković," Alfaspektrometrijsko odredjivanje urana, torijuma i plutonijuma u uzorcima vode, zemlje i mineralnog djubriva, Fakultet za fizičku hemiju Univerziteta u Beogradu, 1994.
10. Talvitie, N. A., Electrodeposition of Actinides for Alpha Spectrometric Determination, Anal. Chem., 44,p. 280-283 (1972)
11. L. Hallstadius, A method for the electrodeposition of actinides, Nucl. Instr and Meth. in Physics Research, 233, p.226-227 (1984)
12. Annual Book of ASTM Standards, Designation: C 998,999, 1000, 1001, Vol.12.01, 1983.
13. M.Radenković, D.Vuković, V.Šipka, D.Paligorić, Radiochemical Separation and Quantitative Determination of Uranium,Thorium and Plutonium Isotopes in the Soil and Fertilizer Samples, Proceedings on The Second International Symposium and Exhibition on Environmental Contamination in Central and Eastern Europe, Budapest, Hungary, Sept.20-23, 1994., p.p.

ODREĐIVANJE PRIRODNIH IZOTOPA URANIJUMA I TORIJUMA U UZORCIMA NISKIH AKTIVNOSTI METODOM ALFA-SPEKTROMETRIJE

Mirjana Radenković, Vojislava Šipka, Dubravka Vuković

Rezime

Zbog visoke osetljivosti, alfa-spektrometrijska metoda je pogodna za odredjivanje niskih aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine. Dati su rezultati razvijenog postupka radiohemijske separacije izotopa U i Th iz uzoraka zemlje, vode i veštačkog djubriva (NPK), i alfa-spektrometrijskog odredjivanja njihove aktivnosti.

Ključne reči: Alfa-spektrometrija, radiohemijska separacija, uranijum, torijum

DETERMINATION OF NATURAL URANIUM AND THORIUM ISOTOPES IN THE LOW-LEVEL ACTIVITY SAMPLES BY ALPHA SPECTROMETRY METHOD

Mirjana Radenković, Vojislava Šipka, Dubravka Vuković

Abstract

Alpha spectrometry method is suitable for low level activity determinations in the environmental samples, becouse of it´s high sensitivity. Here are presented some results of developed procedure of radiochemical separation of U and Th isotopes from the soil, water and fertilizer samples (NPK), and their activity determination by alpha-spectrometry method.

Key words: Alpha-spectrometry, radiochemical separation, uranium, thorium.

26.

ODREĐIVANJE AKTIVNOSTI ^{226}Ra U UZORCIMA ZEMLJE I KOREKCIONIH KOEFICIJENATA ZA SUMIRANJE KOD ^{214}Bi

Gordana Pantelić
Klinički centar Srbije, Institut za medicinu rada
i radiološku zaštitu "Dr Dragomir Karajović", Beograd

1. UVOD

Radi preventivne zaštite zdravlja stanovništva vrši se kvalitativno i kvantitativno određivanje prisustva radionuklida u različitim uzorcima iz životne sredine. Za detekciju gama zračenja koristi se metoda visokorezolucione gamaspektrometrije.

Kalibracija detektora se mora izvršiti posebno za svaku vrstu uzorka i svaku geometriju merenja. Većina metoda za kalibraciju je zasnovana na korišćenju komercijalno raspoloživih standarda. Nabavka radioaktivnih standarda može da predstavlja problem, pa je pogodnije izabrati neki metod kalibracije prirodnim radioaktivnim materijalima koji se mogu lako nabaviti. Jedinjenja kalijuma se mogu pomešati sa nepoznatim uzorcima, pa se na osnovu koncentracije 40K može odrediti koncentracija ostalih prisutnih radioaktivnih elemenata [1,2].

Aktivnost ^{226}Ra u zemlji je određena preko ^{226}Bi izborom najboljih parametara krive efikasnosti linearnom i kvadratnom aproksimacijom [3]. Efikasnost za 40K se uzima kao referentna tačka. U okolini referentne tačke se uzimaju dve tačke koje pripadaju nuklidu čiju aktivnost određujemo, a koja je na početku proizvoljno izabrana. Kriva efikasnosti se određuje metodom najmanjih kvadrata. Pretpostavljena aktivnost se menja u diskretnim koracima, a time i efikasnosti izabranih tačaka. Ova

procedura se ponavlja dok nije postignut minimum χ^2 funkcije. Kada se postigne da tačke najmanje odstupaju od date prave, time smo odredili i aktivnost nepoznatog nuklida i krivu efikasnosti u ovom opsegu energija.

2. METOD RADA I REZULTATI MERENJA

Nakon mlevenja i sušenja na 105 ^{0}C, uzorak od 500 g zemlje stavljen je u marineli posudu zapremine 0.5 l. Posuda je zatvorena i uzorak je meren 4 nedelje posle zaptivanja suda, kad je uspostavljena ravnoteža između ^{226}Ra i ^{214}Bi. Zatim je dodato 10g KCl (firme Merck) i 20g La_2O_3 (firme British Drug House), homogenizovano, zatvoreno i mereno posle isteka nove 4 nedelje. Aktivnost ^{40}K u ovom uzorku je 162.5(18) Bq. Fon je meren sa praznom marineli posudom. Merenja su vršena na čistom germanijumskom detektoru firme ORTEC, relativne efikasnosti 25 % i rezolucije 1.85 keV. Rezultati merenja su prikazani u tabeli 1, gde su N površine ispod pikova totalne apsorpcije. Vreme merenja svih spektara je 200000 s.

Tabela 1: Rezultati merenja u marineli posudi

Nuklid	Energija (keV)	N (prazna posuda)	N (uzorak zemlje)	N (zemlja+KCl + La_2O_3)
^{214}Bi	609.3	198 (46)	23091 (196)	23340 (172)
	768.4	---	2071 (122)	2082 (125)
	934.1	---	1147 (100)	1163 (80)
	1120.3	82 (29)	4900 (127)	4836 (107)
	1238.1	43 (26)	2013 (142)	1981 (108)
	1729.6	---	881 (49)	888 (40)
	1764.5	88 (18)	3977 (84)	4151 (89)
^{138}La	788.7	---	---	12767 (171)
	1435.8	---	---	16131 (148)
^{40}K	1460.8	516 (38)	45175 (217)	75202 (286)

Na osnovu ovih rezultata, a primenom programa za određivanje aktivnosti gama emitera izborom najboljih parametara krive efikasnosti linearnom aproksimacijom [3], određena je kriva efikasnosti :

$$\ln e = - 0.7465 \ln E + 0.6906 \qquad (1)$$

koristeći podatke za ^{138}La i kao referentnu tačku ^{40}K, a kvadratnom aproksimacijom:

$$\ln e = 5.76 - 2.48\ln E + 0.142 (\ln E)2 \quad (2)$$

koristeći podatke za ^{214}Bi i 40K. Izračunata aktivnost za ^{214}Bi, odnosno ^{226}Ra, iznosi 17.4(7) Bq.

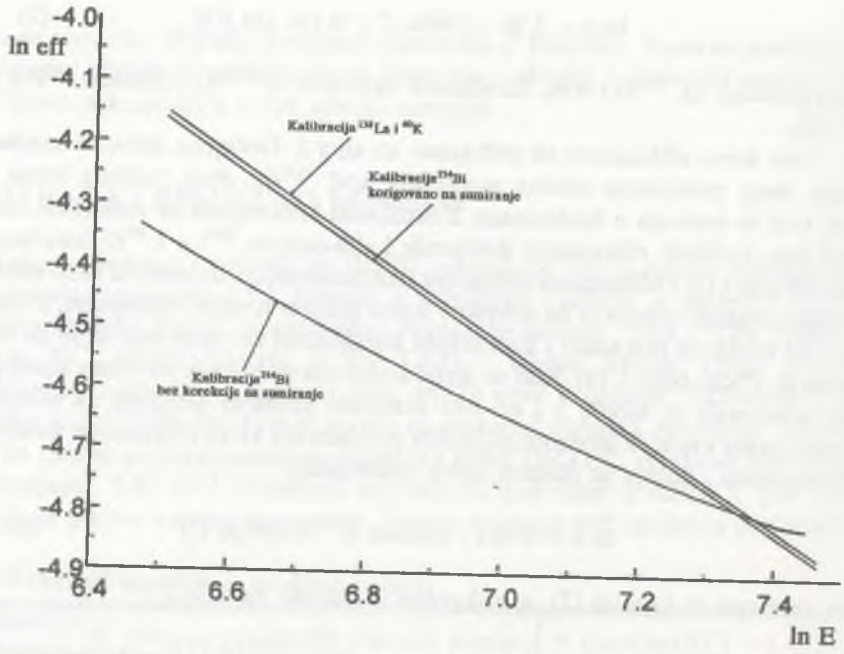
Ove krive efikasnosti su prikazane na slici 1. Dobijene krive se međusobno razlikuju zbog postojanja efekta sumiranja kod ^{214}Bi, zbog velikog broja gama prelaza, koji se emituju u kaskadama. Korekcioni koeficijenti za sumiranje mogu se odrediti kao količnik efikasnosti dobijenih kalibracijom ^{138}La i ^{40}K (izračunate na osnovu relacije (1)) i efikasnosti dobijenih izračunavanjem na osnovu aktivnosti ^{214}Bi i eksperimentalnih rezultata za površine ispod pikova totalne apsorpcije, a dati su u tabeli 2. U tabeli su prikazani i korekcioni koeficijenti za sumiranje koje su odredili Debertin K. i Sch÷tzig U. [4]. Kad se izvrši korekcija dobijenih površina ispod pikova totalne apsorpcije iz tabele 1 i na ove rezultate primeni program za određivanje aktivnosti gama emitera izborom najboljih parametara krive efikasnosti kvadratnom aproksimacijom, dobija se sledeća kriva efikasnosti:

$$\ln e = 0.284 - 0.624\ln E - 0.009(\ln E)^2 \quad (3)$$

koja se poklapa sa krivom (2), a prikazana je takođe na slici 1.

Tabela 2: Efikasnosti za uzorak zemlje u marineli geometriji i korekcioni koeficijenti za sumiranje za ^{214}Bi

Energija (keV)	Efikasnost ε_{exp}	Efikasnost ε_{izr}	Korekcija koeficijenta $=\varepsilon_{izr}/\varepsilon_{exp}$	Korekcioni koeficijent [4]
609.3	0.0149 (6)	0.0166 (1)	1.12 (5)	1.08
768.4	0.0126 (9)	0.0140 (8)	1.11 (10)	1.09
934.1	0.0109 (9)	0.0121 (8)	1.11 (12)	1.09
1120.3	0.0093 (4)	0.0106 (2)	1.14 (5)	1.09
1155.0	0.0092 (9)	0.0103 (9)	1.12 (15)	1.09
1238.1	0.0096 (7)	0.0098 (6)	1.02 (10)	1.09
1378.0	0.0098 (10)	0.0090 (8)	0.92 (12)	0.98
1729.6	0.0084 (5)	0.0076 (3)	0.91 (6)	0.90
1764.5	0.0077 (4)	0.0075 (2)	0.97 (6)	1.00
1847.0	0.0076 (6)	0.0073 (4)	0.96 (11)	0.94



Slika 1. Krive efikasnosti za marineli geometriju bez korekcije na sumiranje i sa korekcijom na sumiranje

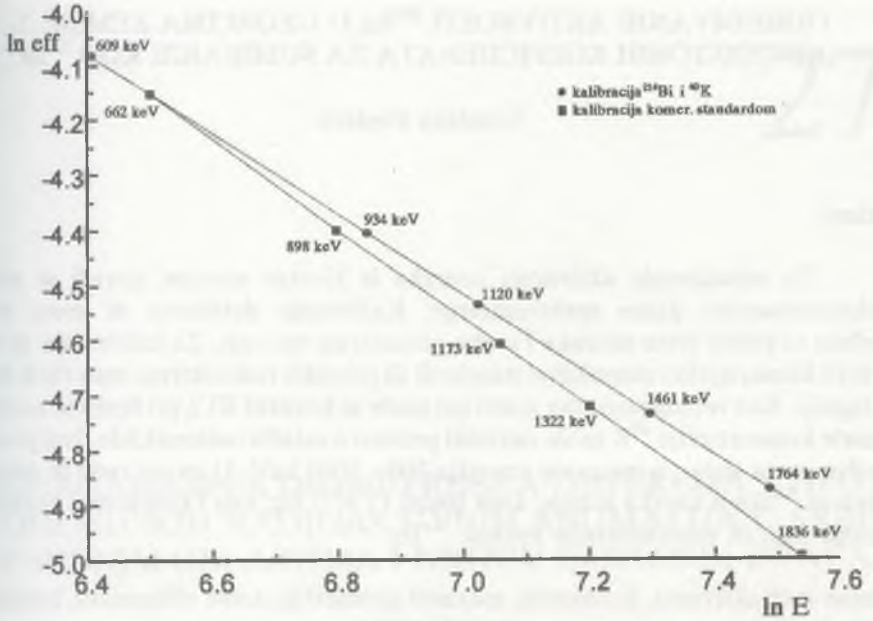
U intervalu energija 200-2000 keV određena je kalibraciona kriva korišćenjem komercijalnog standarda MIX-OMH-SZ (soil), u istoj geometriji:

$$\ln \varepsilon = 0.428 - 0.601 \ln E - 0.016(\ln E)^2 \qquad (4)$$

Dobijena kriva efikasnosti (4) je prikazana na slici 2 zajedno sa krivom efikasnosti (3). Odstupanja između ovih krivih se javljaju u visokoenergetskom delu spektra, gde su korišćene kalibracione linije ^{60}Co i ^{88}Y kod kojih postoji sumiranje, ali nije izvršena korekcija, pa su dobijene efikasnosti manje. Deobom efikasnosti izračunatih na osnovu krivih (3) i (4) mogu se odrediti korekcioni koeficijenti za sumiranje za ^{60}Co i $^{8}8Y$. Ovi koeficijenti su prikazani u tabeli 3.

Tabela 3: Korekcioni koeficijenti za sumiranje za ^{60}Co i ^{88}Y

Energija (keV)	Korekcioni koeficijent	Korekcioni koeficijent [4]
898.0	1.02 (14)	1.07
1173.2	1.04 (7)	1.08
1332.5	1.05 (7)	1.08
1836.0	1.08 (15)	1.08



Slika 2. Krive efikasnosti za marineli geometriju određene kalibracijom ^{214}Bi i ^{40}K i kalibracijom komercijalnim standardom

LITERATURA:

[1] Kukoč A.H., Marković M.M., Aničin I.V., Škoro G.P., Pantelić G.: "Determination of ^{138}La Activity in LaO from known ^{40}K Activity", Radiochimica Acta 60, 25-26, 1993

[2] Pantelić G.: "Određivanje aktivnosti ^{138}La u kalibracionom uzorku poređenjem sa ^{40}K radi standardizacije merenja aktivnosti velikih uzoraka gamaspektrometrijom", specijalistički rad, Fizički fakultet, Beograd, 1991

[3] Pantelić G.: "Određivanje aktivnosti gama emitera izborom najboljih parametara krive efikasnosti", magistarski rad, Fizički fakultet, Beograd, 1994

[4] Debertin K., Sch÷tzig U.: "Bedeutung von summationskorrektionen bei der gamma strahlen - spektrometrie mit germanium detektoren", PTB Bericht RA-24, Braunsweig, 1990

ODREĐIVANJE AKTIVNOSTI ^{226}Ra U UZORCIMA ZEMLJE I KOREKCIONIH KOEFICIJENATA ZA SUMIRANJE KOD ^{214}Bi

Gordana Pantelić

Rezime

Za određivanje aktivnosti uzoraka iz životne sredine, koristi se metoda visokorezolucione gama spektrometrije. Kalibracija detektora se mora izvršiti posebno za svaku vrstu uzoraka i svaku geometriju merenja. Za kalibraciju se mogu koristiti komercijalno raspoloživi standardi ili prirodni radioaktivni materijali, koji su dostupniji. Kao veoma pogodan materijal može se koristiti KCl, pri čemu se na osnovu poznate koncentracije ^{40}K može odrediti prisustvo ostalih radionuklida, koji poseduju bar dve gama linije, u intervalu energija 200 - 2000 keV. U ovom radu je određena aktivnost ^{226}Ra u uzorku zemlje, koja iznosi 17.4(7) Bq, kao i korekcioni koeficijenti za sumiranje za najverovatnije prelaze ^{214}Bi.

Ključne reči: aktivnost, kalibracija, marineli geometrija, krive efikasnosti, koeficijenti za sumiranje

DETERMINATION ^{226}Ra ACTIVITY IN THE SOIL SAMPLES AND SUMMING CORRECTIONS COEFFICIENTS FOR ^{214}Bi

Gordana Pantelić

Abstract

High resolution gamma spectrometry is used for activity measurement of environmental samples. Detector calibration has to be performed for every geometry and every type of sample. Commercially available standards or natural radioactive materials are used for calibration. KCl is very suitable material. The activity of unknown element, which has at least two gamma lines, in the interval 200 - 2000 keV, is determined based on 40K activity. Activity of 226Ra in soil is determined as 17.4(7) Bq. Also, the summing correction coefficients for 214Bi are determined.

Keywords: activity, calibration, marineli geometry, efficiency curves, summing corrections coefficients

27.

AERO-GAMASPEKTROMETRIJSKA DETEKCIJA I TIPOVI GEOHEMIJSKIH RADIOAKTIVNIH ANOMALIJA U SRBIJI I SUSEDNIM OBLASTIMA I NJIHOV EKOLOŠKI ZNAČAJ

Adam Dangić
Rudarsko-geološki fakultet, Univerzitet u Beogradu
Djušina 7, Beograd i Projekt IGCP-287 (ko-lider)

Milan Milojević
Geoinstitut, Rovinjska 12, Beograd

1. UVOD

Geološku građu centralnih delova Balkanskog poluostrva, (uglavnom teritorija bivše Jugoslavije) karakteriše nekoliko većih geostrukturnih jedinica u kojima su zastupljene brojne geološke formacije različitih starosti i sastava. U nekima od ovih formacija pojavljuju se povišeni sadržaji radionuklida koji mogu da se kroz različite geohemijske procese lokalno, u manjoj ili većoj meri, akumuliraju obrazujući rudna ležišta, mineralne pojave i/ili oreole rasejavanja. Ove akumulacije zapravo predstavljaju geohemijske anomalije radioaktivnosti odnosno jednog ili više radionuklida, i mogu, čak i kada su niskih intenziteta, da budu putokaz za otkrivanje ležišta ruda urana i torijuma kao i nekih drugih mineralnih sirovina. S druge strane, kao izvori jonizujućeg zračenja one predstavljaju značajne rizike za zdravlje stanovništva.

Otkrivanje geohemijskih anomalija radioaktivnosti i radionuklida je stoga od dvostrukog interesa: (a) za prospekciju rudnih ležišta urana i torijuma i nekih drugih mineralnih sirovina, i (2) za zaštitu životne sredine i stanovništva od jonizujućeg zračenja. U oba pravca istraživanja mogu da se koriste ista metodologija i

instrumentacija, jer su i za otkrivanje ruda i za zaštitu životne sredine od značaja anomalije svih inetenziteta (čak i veoma niskih) i obrazovane u svim delovima prirode: litosferi, hidrosferi, atmosferi i biosferi. Pritom, svaki od pravaca istraživanja ima i neke specifičnosti kako u istraživanju tako i u interpretaciji dobijenih podataka.

Za efikasnu zaštitu stanovništva od jonizacionog zračenja iz prirode neophodno je da se identifikuju svi izvori zračenja, definišu njihove karakteristike i postavi odgovarajući monitoring. To je posebno kompleksan zadatak u područjima kompleksne geološke građe kakav je slučaj sa centralnim delovima Balkanskog Poluostrva. Jedan od modernih, efikasnih i pouzdanih metoda detektovanja geohemijskih anomalija U, Th i K-40 je aero-gamaspektrometrija. U radu su prikazani i analizirani različiti tipovi ovih anomalija koji mogu da se detektuju aero-gamaspektrometrijski, na nekoliko karakterističnih lokaliteta u Srbiji i jednom lokalitetu u istočnoj Bosni. Data je geohemijska interpretacija merenja gama-zračenja i procenjeni su uticaji otkrivenih koncentracija radionuklida na zdravlje populacije.

2. PRINCIPI, INSTRUMENTACIJA I METODI MERENJA

Rude i stene koje sadrže uran, torijum i kalijum kada se nađu na površini ili blizu površine terena predstavljaju izvore sekundarne disperzije i/ili sekundarnih koncentracija ovih elemenata. U zavisnosti od lokalnog geološkog sklopa i geohemijskih uslova i procesa, obrazuju se geohemijski oreoli rasejavanja različitih oblika i intenziteta, ali po pravilu znatno većih dimenzija u odnosu na primarni izvor, u različitim sredinama: tlu, vodama, vegetaciji i atmosferi. Generalno uzev, rudna ležišta i geohemijski oreoli predstavljaju geohemijske anomalije i za njihovo otkrivanje i ocenu koriste se različiti metodi istraživanja [1]. Za otkrivanje i istraživanje radiogenih geohemijskih anomalija koriste se različiti metodi, a jedan od novih i značajnih je aero-gamaspektrometrija [2, 3]. Ovaj metod omogućava brzo i efikasno detektovanje geohemijskih anomalija kako ukupnog gama zračenja tako i urana, torijuma i kalijuma na površini terena a odgovarajućom geohemijskom interpretacijom može da se proceni njihov značaj. Kako kod kalijuma ne dolazi do značajnije izotopske frakcionacije, uzima se da je relativna obilnost K-40 ista u svim sredinama (0,012 %); kod urana, praktičan značaj ima samo najobilniji izotop U-238 (relativna obilnost 99,274 %) [7]. U aero-gamaspektrometriji, sadržaj K se određuje direktno, preko K-40 a U i Th se određuju preko svojih potomaka gama-emitera, Bi-214 i Tl-208, respektivno.

Moderna aero-gamaspektrometrijska istraživanja zahtevaju sistem koji se sastoji od gamaspektrometra-detektora visoke osetljivosti i velikih dimenzija, letilicu (avion ili helikopter) i sistem za obradu velikog broja podataka. Istraživanja prikazana u ovom radu izveo je Geoinstitut Beograd a korišćen je sistem: spektrometar GR-800D GEOMETRICS, scintilacioni detektor DET-3072/512, set kristala NaJ(Tl) (10x10x40 cm) (rezolucija gama-zračenja 8,5-9,5 %) i avion [4]. Za merenje K-40 korišćen je pik 1,46 MeV, za uran je korišćen pik Bi-214 na 1,76 MeV a za torijum pik Tl-208 na 2,614 MeV. Merenje je vršeno na visini od 100-150 m iznad površine terena, po profilima na rastojanjima od 200 m, kontinualno i podaci su automatski registrovani. Uz ove mereni su i neki drugi parametri neophodni za određene korekcije registrovanih vrednosti (visina letilice, i sl.). Naime, neophodno

je da se kod merenih vrednosti gama-zračenja pre geohemijske interpretacije izvrše korekcije zbog varijacija visine letilice, uticaja radionuklida atmosfere i osnovnog zračenja i Komptonovog efekta [3]. Efekt varijacija visine letilice eliminiše se svođenjem svih podataka na istu visinu (120 m iznad površine terena), preko eksperimentalnih profila. Korekciju uticaja radionuklida atmosfere i osnovnog zračenja omogućava pogodna konfiguracijom kristala: za merenje ovih zračenja koristi se gornji set kristala (usmeren naviše), odvojen olovnom pločom (debljine 5 cm) od donjeg seta (usmeren ka površini zemlje).

Zračenja se registruju u impulsima/sekund (i/s). Kalibracija sistema može da bude primarna (internacionalni standardi, laboratorijski spektrometri) i sekundarna (velike kalibracione ploče i test-profili). Sekundarna kalibracija omogućava prevođenje korigovanih vrednosti zračenja u impulsima/sekund u koncentracije odgovarajućih elemenata. Međutim, zbog niza neodređenosti u prirodnim sistemima, za geohemijsku interpretaciju su zadržane vrednosti u impulsima/sekund.

Kod geohemijske interpretacije aero-gamaspektrometrijskih geohemijskih anomalija pojavljuje se nekoliko ozbiljnih problema. Prvi problem je vezan za detekciju urana i torijuma. Naime, uran i torijum se detektuju preko svojih potomaka Bi-214 i Tl-208, te dobijene vrednosti predstavljaju ekvivalent urana (eU) i ekvivalent torijuma (eTh). Kako se Bi-214 i Tl-208 nalaze pri kraju njhovih radioaktivnih serija U i Th, i kako je u pitanju površina zemlje, vrlo je verovatno da su usled supergenih geohemijskih procesa značajnije narušene radioaktivne ravnoteže U-2386 →Bi-214 odnosno Th-2326→Tl-208. Stoga, i dobijene vrednosti eU i eTh odstupaju u manjoj ili većoj meri od stvarnih vrednosti U i Th.

Posebni problemi u interpretaciji su uticaj geoloških odnosa kao i lokalnih geohemijskih procesa na migraciju i akumulaciju ovih radionuklida u površinskim uslovima i veza detektovanih aero-gamaspektrometrijskih geohemijskih anomalija sa njihovim pravim koncentracijama na površini ili blizu površine terena. Ovu problematiku ilustruju prikazani primeri u radu.

3. PROBLEMATIKA I LOKALITETI ISTRAŽIVANJA

Na teritoriji Srbije i okolnim područjima zastupljeno je više velikih geostrukturnih jedinica a pojavljuju se i raznovrsne geološke i rudne formacije. Posebno su interesantna za naša razmatranja: (1) Srpsko-makedonska masa, (2) pojas mezozojskih krečnjaka sa boksitima (3) Karpato-balkanska Cu-provincija, (4) Srpsko-makedonska Pb-Zn provincija, i (5) tercijarni sedimentni baseni. U ovim jedinicama-formacijama zastupljeni su rude i/ili mineralizacije urana ili geohemijski procesi koji dovode do obrazovanja specifičnih tipova geohemijskih radiogenih anomalija [8, 9, 10].

Srpsko-makedonsku masu izgrađuju serija škriljaca i mase granitoida a karakterišu je i pojave ruda urana, lokalizovane u i oko masa granitoida. Jedan od značajnijih lokaliteta sa pojavama ruda urana je područje planine Kukavice u JI Srbiji.

Teritoriju Srbije karakterišu brojni tercijarni sedimentni baseni a u nekima od njih, u blizini granitoidnih masiva, otkrivene su mineralizacije i rudne pojave urana. Jedan od ovih basena je i basen Polajnice, u podgorju planine Kukavice. Aero-gamaspektrometrijskim istraživanjima u području planine Kukavice obuhvaćena

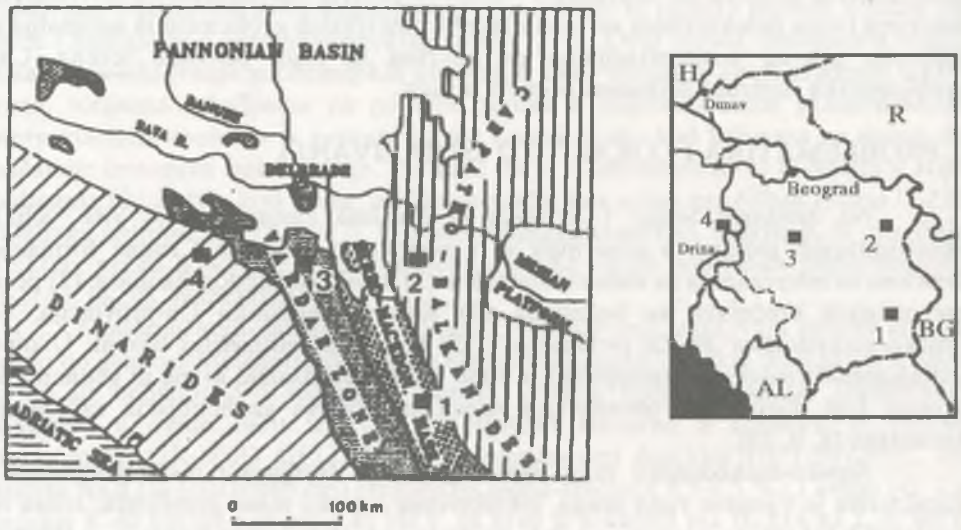
2 tipa rudnih pojava i mineralizacija urana: primarni, u kompleksu škriljaca sa granitoidima, i sekundarni, u tercijarniim sedimentima.

U kredno-tercijarnoj Karpato-balkanskoj Cu-metalogenetskoj provinciji, u I Srbiji, u i oko andezitskih masa kredno-tercijarne starosti pojavljuju se brojna hidrotermalna rudna ležišta i mineralizacije bakra. Za hidrotermalne procese vezane su i alteracije stena oko rude u kojima dolazi do obogaćenja, redistribucije i/ili osiromašenja stena sa K, U i Th. Slični geohemijski efekti pojavljuju se i u tercijarnoj Srpsko-makedonskoj Pb-Zn metalogenetskoj provinciji koja se proteže kroz zapadnu, centralnu i južnu Srbiju i u kojoj su Pb-Zn rude lokalizovane u i oko andezitsko-dacitskih masa. Aero-gamaspektrotrijska istraživanja su izvedena u prvoj provinciji na lokalitetu Cerova a u drugoj na lokalitetu Rudnik.

U pojasu mezozojskih krečnjaka unutražnjih Dinarida, koji se proteže od SI Bosne do JZ Srbije, pojavljuje se više boksitonosnih područja. Zbog razlika u supergenoj geohemiji U, Th i K, u i oko boksita se obrazuju specifični tipovi koncentracija/disperzije U, Th i K. Aero-gamaspektrotrijska istraživanja su izvedena u boksitonosnoj oblasti Vlasenice (I Bosna), na lokalitetu Cerova Višnjica [11].

4. REZULTATI I DISKUSIJA

Lokacije istraživanih područja prikazana su na sl. 1 a karte sa interpretacijama aero-gamaspektrometrijskih (AGS) istraživanja su prikazane na sl. 2. U diskriminacionim analizama korišćeni su ne samo intenziteti ukupne (TC) i specifičnih -40, eU, eTh) gama-radioaktivnosti već i njihovi količnici (U/Th, U/K, K/Th).



Slika 1. Karta geostrukturnih jedinica Srbije i okolnih oblasti i lokaliteti aero-gamaspektrometrijskih istraživanja.1- područje planine Kukavice; 2- područje Bora - lokalitet Cerova; 3- područje Rudnika, lokalitet Rudnik; 4- područje Vlasenice, lokalitet Cerova.

Sl. 2. Karta intenziteta gama-zračenja kalijuma, područje planine Kukavice. Mpl- glinovito peskovita serija; N- neogeni sedimenti; OlM- glinci, peščari, laporci; Γ, Γ/G- sitnozrni granitoidi; G/f- leukognajs; Sm- leptinoliti i mikašisti; A-amfiboliti; Gb- biotitski gnajs; Scom- hlorit-muskovitski gnajs. 1-3 geolo- ške granice: 1- utvrđena; 2- pretpostavljena; 3- eroziona; 4- rasedna zona; 5- izolinije radioaktivnog gama-zračenja kalijuma, i/s.

4.1. Istraživanja u području planine Kukavice

AGS istraživanjima u području planine Kukavice koja su obuhvatila prostore (70 km) prikazane na karti na sl. 2. Najveći deo tih prostora izgrađuje kompleks kristalastih škriljaca i gnajseva sa granitima (graniti Kukavice i Vlajne), u kojima se pojavljuju primarna orudnjenja urana i torijuma (hidrotermalne rude), uglavnom vezane za određene strukturne pravce. Kartom je obuhvaćen i manji deo tercijarnog basena Poljanice, sa sedimentnim serijama koje mogu da sadrže sekundarna orudnjenja i mineralizacije urana.

U AGS istraživanjima dobijene su, posle odgovarajućih korekcija, sledeće vrednosti-opsezi gama-radioaktivnosti: za ukupnu <2500->9000 cps (impulsa u sekundu); za K-40 <50->550 i/s (Sl. 2); za eU <10->150 i/s; i za eTh <25->170 i/s. Na osnovu diskriminacionih analiza ovih podataka kao i njihovih količnika izdvojeno je više geohemijsko-radiogenih anomalija kako u kompleksu metamorfita sa granitima tako i u neogenim sedimentima. AGS geohemijsko-radiogene anomalije u kompleksu metamorfita sa granitima su U-Th tipa i indiciraju moguće prisustvo primarnih hidrotermalnih orudnjenja i mineralizacija. Zone sa njihovim pojavljivanjem predstavljaju i područja rizika za stanovništvo od jonizujućeg zračenja.

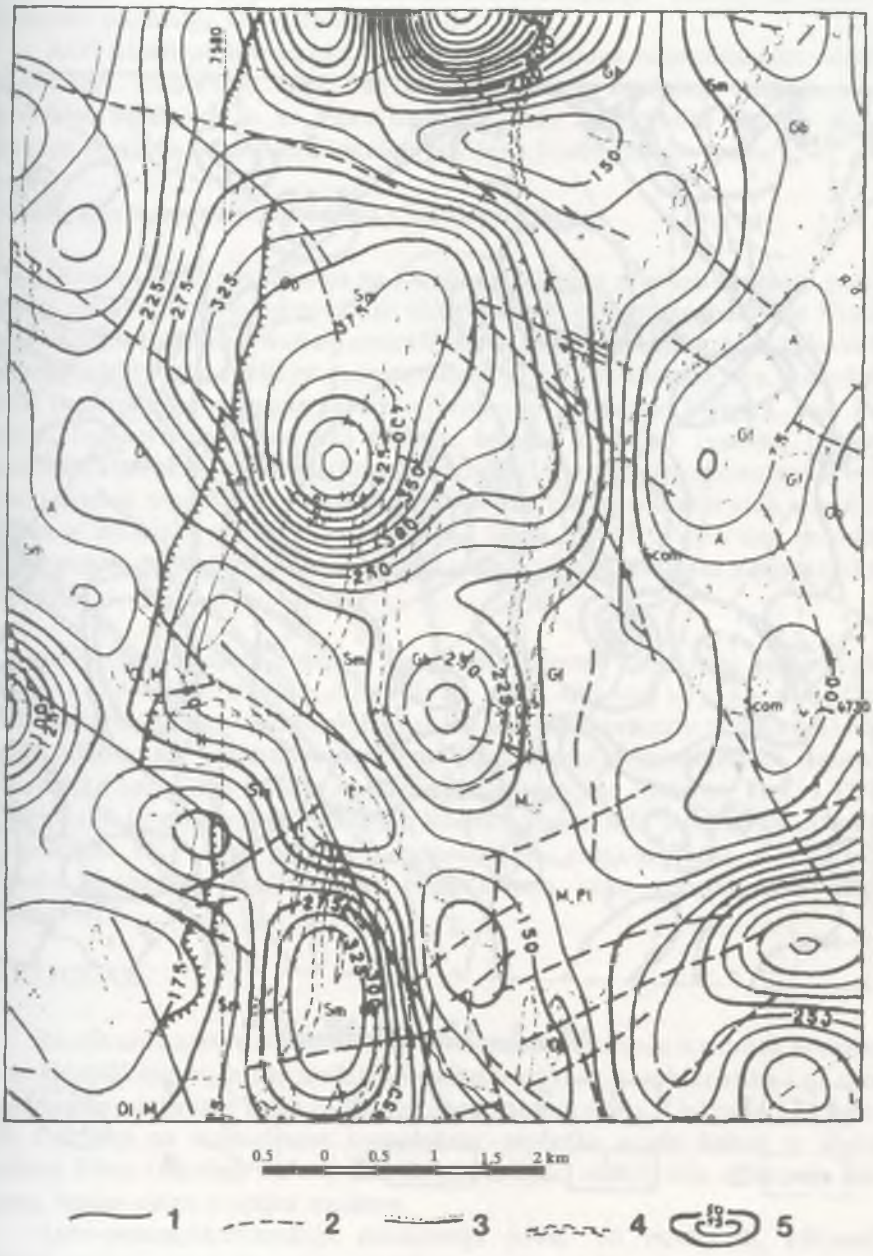
AGS geohemijsko-radiogene anomalije u neogenim sedimentima su U-tipa i indiciraju moguće prisustvo sekundarnih mineralizacija urana. Kako se pojavljuju u agrikulturnim i naseljenim područjima i u specifičnim geohemijskim uslovima, predstavljaju visok rizik za stanovništvo od jonizujućeg zračenja [6].

4.2 Istraživanja u području Bora i Rudnika

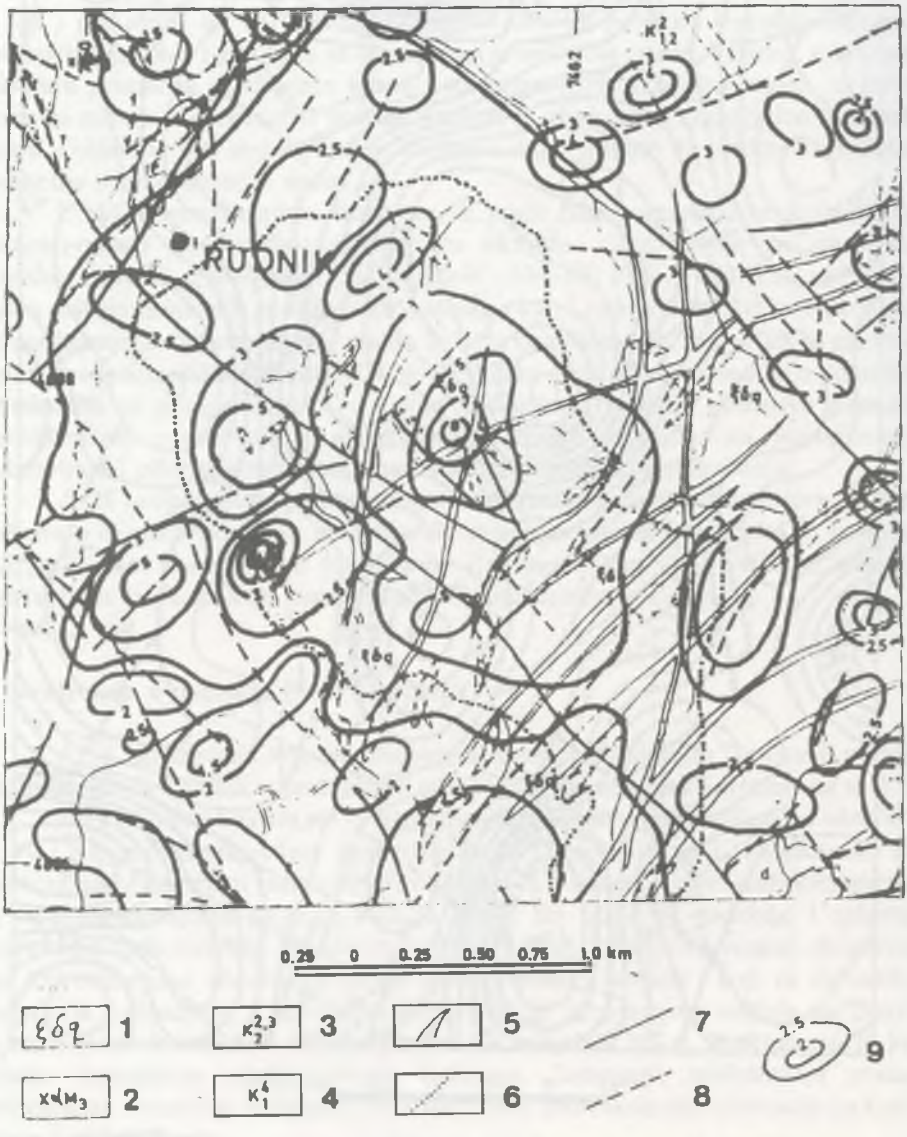
AGS istraživanja koja su obuhvatila prostore lokaliteta Cerova u području Bora i lokaliteta Rudnik u području Rudnika prikazane su na kartama na sl. 3 i 4.

Na lokalitetu Cerova AGS istraživanja su obuhvatila površinu od oko 70 km (Sl. 3). Ovaj prostor izgrađuju andeziti i daciti i piroklastiti I i II vulkanske faze, hidrotermalno izmenjeni vulkaniti i piroklastiti i Cu-rudne pojave. Karakteristična su dva tipa geohemijskih procesa koji su mogli da utiču na sadržaje i raspodelu proučavanih radionuklida: hidrotermalni (endogeni), za koje su vezani obrazovanje zona hidrotermalne alteracicije stena i obrazovanje Cu-ruda i koji su dovodili do obogaćenja kalijumom, i supergeni predstavjleni oksidacijom sulfida na površini terena, koji su dovodili do izvesnog ispiranja kalijuma. Na sl. 3 prikazane je karta izolinija intenziteta gama-zračenja kalijuma. Izdvojeni maksimumi zračenja (geohemijske anomalije kalijuma) indiciraju zone hidrotermalne alteracije za koje su vezane i sulfidne rude.

Na lokalitetu Rudnik AGS istraživanjima je obuhvaćen prostor veličini oko 50km^2. Istraživani teren izgrađuju neogeni kvarclatiti, kvarcmonconiti, dacitsko-kvarclatitski dajkovi, kredni krečnjaci i brečoidni krečnjaci. U centralnim delovima terena, oko dajkova se pojavljuju zone hidrotermalne izmene i deponovana su lokalno Pb-Zn sulfidne hidrotermalne rude. Pri hidrotermalnim promenama, stene su obogaćivane sa kalijumom. Na sl. 4 prikazana je karta izolinija odnosa intenziteta gama-zračenja kaliijuma i torijuma (K/Th). Ovaj odnos veoma dobro indicira zone hidrotermalno



Slika 3. Karta gama-zračenja kalijuma šireg područja ležišta Cerova. 1- silifikovani vulkaniti i piroklastiti; 2- andeziti i daciti I faze; 3- augithornblenda andeziti; 4-7 vulkanski aglomerati i breče, 4- II faze, 5- I faze, 6- horblenda andezita, 7- andezita i dacita; 8- hidrotermalno izmenjene stene; 9- mineralizacije bakra; 10- izolinije intenziteta gama-zračenja, i/s



Sl. 4. Karta odnosa gama-zračenja kalijuma i torijuma, šire područje rudnika Rudnik. 1- kvarcmonconiti; 2- kvarclatiti; 3- brečoidni krečnjaci; 4- krečnjaci; 5- dacitsko-kvarclatitski dajkovi; 6- hidro- termalno izmenjena zona; 7-8 geološke granice: 7- utvrđena, 8- pretpostavljena; 9- izolinije količnika intenziteta gama-zračenja K i Th (K/Th).

izmenjenih stena, za koje je vezana i sulfidna mineralizacija - dobijaju se kontrastne geohemijske anomalije sa vrednostima i >8.

AGS istraživanjima na ova dva lokaliteta utvrđene su geohemijske anomalije gama-zračenja. Generalno uzev, one ne predstavljaju značajniji rizik za zdravlje stanovništva. Međutim, to ne mora uvek da bude slučaj pošto u ovim tipovima orudnjenja mogu da se pojave i lokalno povišene koncentracije urana.

4.3 Istraživanja u područje Vlasenice - lokalitet Višnjica

Detaljna AGS istraživanja na lokalitetu Višnjica u boksitonosnom području Vlasenice obuhvatila su teren površine oko 6 km^2. Boksitonosno područje Vlasenice je jedno od najznačajnijih boksitnih područja bivše Jugoslaviji, odlikuje se kako velikim rezervama boksita tako i velikim rudnim telima. Boksiti su karsnog tipa, donjokredne starosti, bemitsko-hematitskog sastava. Geologiju lokaliteta Višnjica, kao i šireg područja, karakterišu paleozojski škriljci, trijaski krečnjaci (podina boksita) i gornjekredni i neogeni sedimenti (krovina boksita). U procesima obrazovanja boksita kalijum i uran su migrativni (kalijum kao rastvoran katjon a uran u vidu uranil-jona) a torijum je imobilan (element hidrolizata) - stoga, i boksiti Vlasenice se odlikuju relativno niskim sadržajem U (4-6,5 mg/kg) i značajnijim sadržajem torijuma (do oko 50 mg/kg) [11].

AGS istraživanjem dobijene su vrednosti (posle korekcija) gama-zračenja: ukupnog- <1500->3000 i/s, eU- <30->70 i/s, eTh- <30->60 i/s i K- <50->100 i/s. Statističkom obradom podataka dobijene su karte izolinija intenziteta zračenja i odnosa njihovih odnosa na kojima su izdvojne odgovarajuće geohemijske anomalije. Geohenmijske anomalije vezane za zračenje torijuma kao i odnosa Th/U i Th/K su najkontrastnije i one zapravo indiciraju ležišta i rudna tela boksita na površini ili ispod površine [11]. Ove geohemijske anomalije gama-zračenja, s obzirom na površinsku geohemiju torijuma, ne predstavljaju neke zdravstvene rizike za stanovništvo.

5. ZAKLJUČAK

Za efikasnu zaštitu stanovništva od jonizujućeg zračenja iz prirode neophodno je da se identifikuju svi izvori zračenja i definišu njihove karakteristike i na osnovu toga preduzmu adekvatne mere zaštite na nacionalnom nivou. Ovi zadaci su naročito obimni i složeni na teritorijama kompleksne geološke građe kakav je slučaj sa teritorijom Srbije i okolnih oblasti. Klasična zemaljska istraživanja zahtevaju mnogo vremena, brojne ekipe i velika sredstva.

Aero-gamaspektrometrija predstavlja jedan od modernih, efikasnih i pouzdanih metoda detekcije geohemijskih anomalija U, Th i K-40. U kombinaciji sa kompleksnom geohemijskom interpretacijom izmerenih gama-zračenja moguća je i procena detektovanih geohemijskih anomalija gama-zračenja kao rizika za zdravlje stanovništva.

Zbog toga što omogućava brzo, jeftino i efikasno istraživanje velikih područja i selekciju manjih lokaliteta za detaljna zemaljska istraživanja, ovaj metod treba da

nađe primenu u sistematskom proučavanju i zaštiti stanovništva od jonizujućeg zrašenja na nacionalnom nivou.

LITERATURA

[1] Dangić, A., Geohemija u istraživanju mineralnih sirovina, Tehnika, nauka, inženjering, 27, 109-126, 1987, Sarajevo. /Dangić, A., Geochemistry applied to mineral raw material research, Technology, Science, Engineering, 27, 109-126, 1987, Sarajevo.

[2] Vavilin, L.N., Aerogamaspektrometrija u geologiji, Nedra, 1982.

[3] Bristow, Q., Gamma-ray spectrometric methods in uranium exploration airborn instrumantation, G.S.C.,1979, Ottawa.

[4] Milojević, M., Primena metode aerogamaspektrometrijskih ispitivanja i mogućnost njene primene u Jugoslaviji, Magistarski rad, Rudarsko-geološki fakultet u Beogradu, [5] Bristow, Q., Gamma-ray spectrometric methods in uranium exploration airborn instrumantation, G.S.C.,1979, Ottawa. 1989, Beograd.

[6] Dangić, A., Milojević, M., Environmental geochemistry and radioactivity: anomalies detected by airborne gamma-ray spectrometry and their impacts, Krakow, Abstracts of 3th Int. Symp. on Environmental Geochemistry, 88-89, 1994, Krakow.

[7] Dangić, A., Geohemija, A. Dangić i I. Krstanović, urednici, Geoloska terminologija i nomenklatura, III: Geohemija, kristalografija, mineralogija, 1-88, 1983 Zavod za RGP RGF, Univ. u Beogradu, Beograd,.

[8] Dangić, A., Gordanić, V., Dangić, J., Ore deposits, mineralizations and geochemical dispersion of radioactive elements as potential environmental problems in Serbia, Dangić, A., ed., Investigation of Mineral Raw Materials and Environmental Protection, Igalo '92, SIT RGM, 19-23, 1992, Belgrade.

[9] Dangić, A., Protić, D., Mineralne i termalne vode Srbije: radioaktivni elementi i kvalitet voda, Zbornik radova međunarodne konferencije "Kvalitet voda", 149-156, 1994, Čačak.

[10] Dangić, A., Gordanić, V., Geohemija boksita Poćute (Z Srbija): pojavljivanje i sadržaji radioaktivnih elemenata i kalijuma, Radovi Geoinstituta, 29, - , 1994, Beograd.

[11] Dangić, A., Milojević, M., Geohemija boksita, disperzija radioaktivnih elemenata i aero-gamaspektrometrija: istraživanja u boksitonosnom području Vlasenice (I Bosna), Radovi Geoinstituta, 29, - , 1994, Beograd

AERO-GAMASPEKTROMETRIJSKA DETEKCIJA I TIPOVI GEOHEMIJSKIH RADIOAKTIVNIH ANOMALIJA U SRBIJI I SUSEDNIM OBLASTIMA I NJIHOV EKOLOŠKI ZNAČAJ

Adam Dangić , Milan Milojević

Rezime

Geološku građu Srbije i okolnih regija karakteriše nekoliko većih geostrukturnih jedinica u kojima su zastupljene brojne geološke formacije različitih starosti i sastava. U nekim od ovih formacija pojavljuju se povišeni sadržaji radionuklida koji kao izvor jonizujućeg zračenja predstavljaju rizik za zdravlje stanovništva.

U radu su prikazani i analizirani različiti tipovi geoloških anomalija radioaktivnosti koje su detektovane aero-gamaspektrometrijom na nekoliko lokacija u Srbiji.

Otkrivene anomalije radioaktivnosti razlikuju se po geohemijskom poreklu i zdravstvenim rizicima.

Ključne reči: aero-gamaspektrometrija; geohemijske anomalije; kalijum-40; uran; torijum; životna sredina; Srbija; preliminarna proučavanja.

AIRBORNE GAMMA-SPECTROMETRIC DETECTION AND TYPES OF GEOCHEMICAL RADIOACTIVE ANOMALIES IN SERBIA AND ADJACENT AREAS AND THEIR ECOLOGICAL IMPORTANCE

Adam Dangić and Milan Milojević

Abstract:

The territory of Serbia and adjacent areas is built up by many geological formations of diverse composition/age belonging to a few major geostructural units. Some of them may contain enrichments of radioactive elements may be risks (as sources of radioactivity) to the health of population. By the airborne gamma-spectrometric surveys, applied at a few localities in diverse geological units, zones of geochemically anomalous radio-activity were discovered, related to different geological-geochemical systems. The anomalies, defined by gamma-ray radioactivity, a total and specific ones (of K-40, and Bi-214 and Tl-208, as indicators of U and Th, respectively), differ in both geochemical types and environmental-health impacts.

Key words: Airborne gamma-spectrometry, Geochemical anomalies, Potassium-40, Uranium, Thorium, Environment; Serbia, Preliminary studies.

Glava VI

Nivoi izloženosti jonizujućem zračenju iz prirode i metode za proračun doza

28.

NIVOI IZLOŽENOSTI JONIZUJUĆEM ZRAČENJU IZ PRIRODE I METODE ZA PRORAČUN DOZA

Snežana Pavlović
Institut za nuklearne nauke Vinča, PF 522, 11001 Beograd
Dragoslav Nikezić
Prirodno - matematički fakultet Kragujevac

1. UVOD

Jonizujuće zračenje je prirodna karakteristika životne sredine, koja prati živi svet od nastanka na Zemlji, ali je čovek praktično tek nedavno postao svestan njegovog prisustva i dejstva. Od tada, šireći oblike primene jonizujućih zračenja ljudi, istovremeno i povećavaju stepen globalne izloženosti. Ipak, uz sve to, izvori jonizujućeg zračenja prirodnog porekla ostaju najznačajnija klasa izvora, sa aspekta izloženosti globalne populacije.

Pod izvorima jonizujućeg zračenja prirodnog porekla mogu se podrazumevati: kosmičko zračenje, radionuklidi iz zemljine kore i radionuklidi koji su udisanjem ili ishranom uneti i zadržani u telu. Izloženost ljudi javlja se kao "spoljašnja", od ozračivanja od izvora izvan tela ili "interna", odnosno "unutrašnja", usled raspada radionuklida unetih u telo, ingestijom ili inhalacijom.

Neki od izvora iz prirode su praktično konstantni u prostoru i vremenu i skoro nezavisni od ljudskih aktivnosti, kao na primer ^{40}K, dugoživeći radioaktivni izotop elementa koji je homeostatski kontrolisan u telu, ili kosmogeni radionuklidi koji su relativno homogeno distribuirani po površini Zemlje. Drugi, na primer radon, značajno

zavise od ljudskih delatnosti kojima se može uticati na stepen izloženosti. Između te dve krajnosti, postoji i kategorija izvora čiji doprinos nije ni veoma varijabilan, ali ni konstantan, kao što je kosmičko zračenje, koje zavisi od nadmorske visine, a, u manjoj meri, i od geografske širine, ili radionuklidi u tlu, čiji doprinos zavisi od geoloških karakteristika lokaliteta.

Ne postoji sasvim zadovaljavajući, jedinstveno prihvaćen način izražavanja i procene ukupne efektivne doze za čoveka, globalno od svih izvora, mada se periodično publikuju takvi izveštaji [1,2].

Globalna srednja godišnja efektivna doza od prirodnih izvora je procenjena na 2.4 mSv, od kojih je 1.1 mSv posledica spoljašnje izloženosti osnovnom nivou zračenja, a 1.3 mSv posledica izloženosti radonu [2]. U Tabeli 1. data je najnovija procena globalnog nivoa izloženosti kao i maksimalne procenjene vrednosti u oblastima sa povišenim nivoom osnovnog zračenja iz prirode [2]. Jačina doze kosmičkog zračenja zavisi od nadmorske visine i geografske širine, tako da su godišnje doze u oblastima povišenog izlaganja (lokacije na višim nadmorskim visinama) oko 5 puta više od prosečnih. Jačina doze usled zračenja iz tla zavisi od lokalnih geoloških uslova, tako da mogu biti i oko 10 puta više od prosečnih. Doze u pojediinim naseljima u blizini naslaga izvesnih vrsta mineralnog peska, mogu biti do oko 100 puta iznad srednjih vrednosti. Doze od radona i potomaka zavise od lokalnih geoloških uslova i načina zidanja i upotrebe zgrada, tako da su u nekim oblastima i 10 puta više od prosečnih, a lokalno čak i nekoliko stotina puta više.

Tabela 1. Godišnje efektivne doze za odrasle pojedince usled izvora prirodnog porekla [2]

Izvor izlaganja	Godišnja efektivna doza [mSv]	
	Tipična vrednost	Regionalni maksimumi
Kosmičko zračenje	0.39	2.0
Gama zračenje tla	0.46	4.3
Radionuklidi u telu (sem radona)	0.23	0.6
Radon i njegovi produkti	1.3	10
Ukupna vrednost (zaokružena)	2.4	

U Tabeli 2. prikazane su komponente radijacionog polja na zemlji i njihov intenzitet u standardnim mernim uslovima, 1 m iznad tla, koje su značajne sa dozimetrijskog stanovišta.

Tabela 2. Tipične komponente radijacionog polja u životnoj sredini (1 m iznad tla) [3]

čestica	Izvor	Energetski opseg [MeV]	Jačina fluensa (čestica) [$cm^{-2}s^{-1}$]	Jačina kerme u vazduhu [$nGy\ h^{-1}$]
α	Rn u vazduhu	0 - 9	$\sim 10^{-4}$	30
β ($e^{\pm}$)	Rn u vazduhu	0 - 3.3	$\sim 10^{-3}$	~1
"	tlo	0 - 3.3	$\sim 10^{-2}$	~10
"	Kosmički zraci	1 - 100	$6 \cdot 10^{-3}$	6
γ	Rn u vazduhu	0 - 2.6	0.3	2
"	Tlo	0 - 2.6	6	40
"	Kosmički zraci	0 - 10	$\sim 10^{-1}$	0.5
p	Kosmički zraci	10 - 1000	$2 \cdot 10^{-4}$	0.5
n	Kosmički zraci	0 - 100	$7 \cdot 10^{-3}$	~0.1
$\mu^{\pm}$	Kosmički zraci	100 - 10000	$2 \cdot 10^{-2}$	25
$\pi^{\pm}$	Kosmički zraci	100 - 100 000	$2 \cdot 10^{-5}$	~0.1

Primena izvora jonizujućih zračenja je zahtevala i razvoj adekvatnih metoda za procenu doza i procenu doprinosa izlaganju populacije. Jedan od mogućih načina da se procene doprinosi različitih izvora globalnom ozračivanju populacije, je komparacija sa doprinosom prirodnih izvora. U Tabeli 3. prikazan je jedan od mogućih načina komparacije, usrednjen na celokupnu svetsku populaciju. I iz ove tabele je očigledno, da su izvori jonizujućeg zračenja prirodnog porekla, najznačajniji činilac izloženosti populacije.

Tabela 3. Izloženost veštačkim izvorima kao ekvivalentan period izloženosti prirodnim izvorima [2]

Veštački izvor	Osnova	Ekvivalentan period izloženosti prirodnim izvorima
Medicinska izloženost	Jednogodišnja praksa na sadašnjem nivou	90 dana
Probe nuklearnog oružja	Kompletna praksa	2.3 godine
Nuklearna energetika	Ukupna praksa do danas Jednogodišnja praksa na sadašnjem nivou	10 dana 1 dan
Veliki akcidenti	događaji do danas	20 dana
Profesionalna izloženost	Jednogodišnja praksa na sadašnjem nivou	8 sati

2. KOSMIČKO ZRAČENJE

Termini "kosmičko zračenje" i "kosmički zraci" odnose se na primarne visokoenergetske čestice, čije je poreklo izvan Zemlje, a koje ulaze u zemljinu atmosferu, i na sekundarno zračenje, prizvedeno njihovim interakcijama u atmosferi. Konvencionalno, može biti klasificirano prema poreklu na: zahvaćeno čestično zračenje, galaktičko kosmičko zračenje i solarno čestično zračenje.

Zahvaćeno čestično zračenje se sastoji uglavnom od elektrona i protona zahvaćenih zemljinim magnetnim poljem u orbiti, i, iako može predstavljati radijacioni rizik za astronaute, na nivou zemlje ne doprinosi nikakvoj dozi.

Galaktičko kosmičko zračenje se uglavnom sastoji od protona, uz nešto helijuma i težih jona, i nastaje izvan sunčevog sistema, a najznačajniji je činilac za izlaganja na zemlji i u avionu. Po ulasku u atmosferu, visokoenergetske primarne čestice iz kosmosa interaguju (spalacija) sa jezgrima prisutnim u vazduhu (azot, kiseonik, argon) i proizvode neutrone, protone, mione, pione i kaone i različite produkte reakcija, od kojih su sa dozimetrijskog stanovišta značajni ^{3}H, ^{7}Be i ^{22}Na. Novonastalo sekundarno kosmičko zračenje, ima dovoljnu energiju da, zatim, izazove čitavu kaskadu događaja.

Solarno kosmičko zračenje dolazi sa Sunca, pri čemu se niskoenergetsko zračenje emituje kontinualno, a u toku magnetskih bura, koje se dešavaju otprilike jednom u dekadi, nastaje i visokoenergetska komponenta. Ovo zračenje je manje značajno za izlaganje na zemlji, jer nema dovoljnu energiju da probije zemljino magnetno polje. Njegov značaj se ogleda u modulisanju intenziteta galaktičkog kosmičkog zračenja. Kako se u toku maksimuma sunčeve aktivnosti galaktičke čestice odbijaju od sunčevog sistema, usled neregularnosti u magnetnom polju koje nastaju od solarnog kosmičkog zračenja, to i galaktičko kosmičko zračenje pokazuje periodično ponašanje sa periodom od 11 g, tako da ima maksimum u toku minimuma sunčevih aktivnosti, i obrnuto.

Da bi se procenila doza usled izloženosti kosmičkom zračenju neophodno je razmatrati i efekte nadmorske visine, geografske širine i šildinga, odnosno zaklonjenosti zgradama.

U periodima maksimuma solarnih aktivnosti, jačina doza jonizujuće komponente se smanji za oko 10 % na 10 km nadmorske visine, a u manjem stepenu na nivou mora. Jačina doze neutrona, glavne indirektno jonizujuće komponente, je znatno manja od doze jonizujuće komponente, ali se brže smanjuju sa nadmorskom visinom, dostižući maksimum na 10 - 20 km.

Tabela 4. Zavisnost kosmičkog zračenja od nadmorske visine [3]

Nadmorska visina [km]	Jačine kerme u vazduhu [nGy/h]
0	31.5
0.28	33.5
0.71	37.7
1.16	43.5
1.62	52.2
2.11	64.4
2.63	82.1
3.17	108
3.75	143

Tabela 5. Procenjene srednje godišnje efektivne doze kosmičkog zračenja u zavisnosti od nadmorske visine i geografske širine [2]

Lokacija	Populacija (1 000 000)	Nadmorska visina [m]	Godišnja efektivna doza [μSv]		
			(1)	(2)	Ukupno
La Paz, Bolivija	1.0	3900	1120	900	2020
Lhasa, čile	0.3	3600	970	740	1710
Kito, Ekvador	11.0	2840	690	440	1130
Meksiko Siti, Meksiko	17.3	2240	530	290	820
Najrobi, Kenija	1.2	1660	410	170	580
Denver, SAD	1.6	1610	400	170	570
Teheran, Iran	7.5	1180	330	110	440
Nivo mora			240	30	270
Globalni prosek			300	80	380

Legenda: (1) Jonizujuća komponenta
(2) Neutronska komponenta

Zidovi zgrada predstavljaju izvesnu zaštitu od kosmičkog zračenja, ali se stepen efikasnosti zaštite ne može proceniti sa greškom manjom od 25%, a pogotovo bez detaljnijih informacija o strukturi zgrade. Najčešće se usvaja vrednost faktora zaštite od 0.8. Zbog uticaja nadmorske visine na intenzitet kosmičkog zračenja, putnici i posada u komercijalnim avionima su izloženi povišenim nivoima jonizujućih zračenja. Jačina efektivne doze u toku komercijalnih letova je oko 3 μSvh^{-1}, a globalno posmatrano, prosečna pojedinačna godišnja efektivna doza usled avio putovanja je 2 μSv dok je ta vrednost za Severnu Ameriku 10 μSv [2,4].

3. KOSMOGENI RADIONUKLIDI

Nekoliko radionuklida se proizvodi u vazduhu (Tabela 7), interakcijama spalacije i neutronskog zahvata, kosmičkog zračenja sa atomima u vazduhu. Od svih njih, četiri najznačajnija radionuklida sa dozimetrijskog aspekta su ^{3}H, ^{7}Be, ^{14}C i ^{22}Na, a najznačajniji mehanizam izlaganja je ingestija. Najznačajniji od njih je ugljenik. Godišnja efektivna doza od ^{14}C je 12 μSv [2]. Izloženost ostalim radionuklidima je zanemarljiva, što se može videti iz Tabele 6.

Tabela 6. Godišnji nivoi unošenja ingestijom kosmogenih radionuklida i efektivne doze za odrasle [2]

Radionuklid	Unošenje [Bq god^{-1}]	Godišnja efektivna doza [μSv]
^{3}H	500	0.01
^{7}Be	1000	0.03
^{14}C	20000	12
^{22}Na	50	0.15

4. IZLOŽENOST JONIZUJUĆEM ZRAČENJU RADIONUKLIDA U TLU

Radionuklidi prirodnog porekla koji se javljaju u tlu mogu se uslovno podeliti u dve glavne kategorije:

- oni koji se javljaju pojedinačno, i
- oni koji su komponente jednog od tri lanca radioaktivnih elemenata:
  - a) lanac uranijuma koji počinje ^{238}U,
  - b) lanac torijuma koji počinje ^{232}Th, i
  - c) aktinijumski lanac koji počinje ^{235}U.

Samo radionuklidi sa vremenima poluraspada poredivim sa starošću Zemlje (ili njihovi produkti raspada) postoje i danas u materijalu zemljine kore. Sa dozimetrijskog aspekta glavni primordijalni radionuklidi su ^{40}K (vreme poluraspada $1.28 \cdot 10^{9}$ godina), ^{232}Th (vreme poluraspada $1.41 \cdot 10^{10}$g) i ^{238}U ($4.47 \cdot 10^{9}$g). Od sekundarnog značaja su i ^{87}Rb ($4.7 \cdot 10^{10}$ g) i ^{235}U ($7.04 \cdot 10^{8}$ g). Navedena tri lanca radioaktivnih teških elemenata doprinose najvećim delom osnovnom nivou jonizujućeg zračenja kome je ljudska populacija

Tabela 7. Glavni kosmogeni radionuklidi [5,6]

Radionuklid	Vreme poluraspada	Koncentracija u troposferi [Bq/kg]	Vrsta raspada i energija zračenja [MeV]	Izmerene koncentracije u padavinama [Bq/l]	Brzina proizvodnje [atoma/cm^{2}s]	Globalni inventar [kg]
^{3}H	12 god	$1.2 \cdot 10^{-3}$	β^- 0.0186	-	0.25	3.5
^{7}Be	53 d	0.01	γ 0.477	0.7	0.08	0.0032
^{10}Be	$1.6 \cdot 10^{6}$god	$1.2 \cdot 10^{-9}$	β^- 0.555	-	0.05	$3.9 \cdot 10^{5}$
^{14}C	5730 god	0.13	β^- 0.156	-	2.5	$6.8 \cdot 10^{4}$
^{22}Na	2.6 god	$1.1 \cdot 10^{-6}$	β^+ 0.545 γ 1.28	$2.8 \cdot 10^{-4}$	$8.6 \cdot 10^{-5}$	0.0019
^{24}Na	15.0 h	-	β^- 1.4 γ 1.37; 2.75	0.003-0.006	-	-
^{32}P	14 d	$2.3 \cdot 10^{-4}$	β^- 1.71	0.04-0.2	$8.1 \cdot 10^{-4}$	0.0004
^{33}P	24 d	$1.3 \cdot 10^{-4}$	β^- 0.246	0.04-0.2	$5.8 \cdot 10^{-4}$	0.0006
^{35}S	88 d	$1.3 \cdot 10^{-4}$	β^- 0.167	0.007-0.1	0.0014	0.0045
^{36}Cl	$3.1 \cdot 10^{5}$g	$2.5 \cdot 10^{-10}$	β^- 0.714	-	0.0011	$1.4 \cdot 10^{4}$
^{38}S	2.87 h	-	β^- 1.1 γ 1.88	0.007-0.2	-	-
^{38}Cl	37 min	-	β^- 4.91 γ 1.60; 2.17	0.15-2.5	-	-
^{39}Cl	55 min	-	β^- 1.91 γ 0.25; 1.27; 1.52	0.17-0.8	-	-
^{26}Al	740000 g	-	β^+ 0.543 γ 1.130; 1.809	-	$1.4 \cdot 10^{-5}$	1000
^{32}Si	450 g	-	β^- 0.065	-	$1.6 \cdot 10^{-4}$	1.4
^{39}Ar	270 g	-	β^- 0.219	-	0.0056	23
^{81}Kr	210 000 g	-	EZ, γ 0.276	-	10^{-6}	16.2

izložena. Za četvrti lanac, lanac neptunijuma, koji počinje ^{241}Pu, zna se da je postojao u određenom vremenskom periodu, ali kako ovaj radionuklid ima vreme poluraspada od samo 14 godina, postojao je samo kratko nakon formiranja [5]. Ostali članovi serije imaju takođe relativno kratka vremena poluraspada. Jedini preostali član lanca je ^{209}Bi, čije se vreme poluraspada procenjuje na oko $2 \cdot 10^{18}$ godina.

Tabela 8. Radionuklidi prirodnog porekla koji se javljaju pojedinačno u tlu [5,6]

Radionuklid	Izotopska zastupljenost [%]	Vreme poluraspada [god]	Vrsta raspada i energija [MeV]	Specifična aktivnost (elementa) [Bq/kg]
^{40}K	0.012	$1.26 \cdot 10^{9}$	β^- 1.33 γ sa EZ 1.46	31 635
^{50}V	0.25	$6 \cdot 10^{15}$	γ sa β^- 0.78; γ sa EZ 1.55	0.111
^{87}Rb	27.9	$4.8 \cdot 10^{10}$	β^- 0.28	$8.9 \cdot 10^{5}$
^{115}In	95.8	$6.0 \cdot 10^{14}$	β^- 0.48	185
^{123}Te	0.87	$1.2 \cdot 10^{13}$	EZ	78
^{138}La	0.089	$1.12 \cdot 10^{11}$	β^- 0.21; γ sa EZ 0.81, 1.43	766
^{142}Ce	11.07	$> 5 \cdot 10^{16}$	α	0.2
^{144}Nd	23.9	$2.4 \cdot 10^{15}$	α 1.83	9.3
^{147}Sm	15.1	$1.05 \cdot 10^{11}$	α 2.23	$1.3 \cdot 10^{5}$
^{148}Sm	11.27	$> 2 \cdot 10^{14}$	-	50
^{146}Sm	13.82	$> 1 \cdot 10^{15}$	-	12
^{152}Gd	0.20	$1.1 \cdot 10^{14}$	α 2.1	1.6
^{156}Dy	0.052	$> 1 \cdot 10^{18}$	-	$4.4 \cdot 10^{-5}$
^{174}Hf	0.163	$2 \cdot 10^{15}$	α 2.5	$6 \cdot 10^{-2}$
^{176}Lu	2.6	$2.2 \cdot 10^{10}$	β^-0.43;γ0.089; 0.203; 0.306	$8.9 \cdot 10^{4}$
^{180}Ta	0.012	$> 1 \cdot 10^{12}$	-	8.8
^{187}Re	62.9	$4.3 \cdot 10^{10}$	β^- 0.003	$1.04 \cdot 10^{6}$
^{113}Cd	12.3	$9 \cdot 10^{15}$	β^-	-
^{204}Pb	1.48	$1.4 \cdot 10^{17}$	α 2.6	-
^{190}Pt	0.013	$6.9 \cdot 10^{11}$	α 3.18	13

Prirodni uranijum se javlja u vidu svoja 4 izotopa, masenih brojeva 230, 234, 235 i 238. ^{238}U je prisutan u iznosu od 99.28 % i obično je u ravnoteži sa ^{234}U čija je zastupljenost 0.0058 %. Zastupljenost ^{235}U je 0.71 %. ^{230}U, je takođe član lanca ^{238}U, i ima kratko vreme poluraspada (20.8 dana).

Uranijum se nalazi u svim stenama i tlu. Povišen sadržaj uranijuma u fosfatnim stenama, uzrokuju i odgovarajuće povišene koncentracije uranijuma u komercijalnim fosfatnim đubrivima. Kako se uranijum nalazi u tlu i đubrivu, prisutan je i u hrani i u ljudskim tkivima.

je i u hrani i u ljudskim tkivima.

Jačine apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu usled radioaktivnosti tla, izvan zatvorenog prostora kreću se od 24 do 160 nGy/h, dok je populaciono ponderisana srednja vrednost oko 55 nGy/h [2]. Povećan sadržaj vode u tlu i snežni pokrivač utiču, u manjem stepenu, na smanjenje jačine apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu, ukoliko se posmatraju prosečne godišnje vrednosti u temperaturskim zonama sa umerenim padavinama. U ekstremnim klimatskim uslovima, sa obilnim snežnim pokrivačem, ova smanjenja mogu ići i do 20 %. Upotreba fosfatnih đubriva može dovesti do manjeg porasta jačine doze.

Na većini mesta na zemlji, varijacije sadržaja prirodnih radionuklida se kreću unutar relativno uskih granica, ali se ponegde javljaju i značajnije devijacije. Oblasti sa značajno povišenim jačinama apsorbovane doze u vazduhu širom sveta, vezuju se za prisustvo materijala bogatih torijumom i uranijumom, kao što je mineralni pesak koji sadrži monacit. Glavne anomalije u koncentracijama radioaktivnih minerala u tlu nađene su u Indiji i Brazilu. U Brazilu se razlikuju dva tipa anomalija - jedna, na određenim plažama u vidu monacitnog peska, i druga u državi Minas Gerais. Monacit je teško rastvoran mineral retkih zemalja, koji se na ovim plažama javlja zajedno sa mineralom ilmenit koji mu daje karakterističnu crnu boju. Glavni radionuklidi u monacitu su iz ^{232}Th serije. Jačine apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu, na Atlanskoj obali Espirito Santo u Brazilu kreću se od 100 do 4000 nGy/h.

U državi Kerala, na jugozapadnoj obali Indije, monacitne oblasti su znatno veće, i naseljenije. Jačine doza se kreću od 200 do 4000 nGy/h.

Jedinstvena anomalija se nalazi u blizini Pacos de Caldas u državi Minas Gerais, u vidu brda visokog 250 m. Na ovoj tzv. "Gvozdenoj planini" (Morro do Ferro) u blizini vrha, blizu površine tla, nalazi se jedinstvena rudna gromada, koja sadrži oko 30.000 t torijuma i procenjuje se, 100.000 t elemenata retkih zemalja. U oblasti od oko 30.000 m^2 jačina apsorbovane doze se kreće od 10.000 - 20.000 nGy/h. Flora u ovoj oblasti sadrži toliko ^{228}Ra da se može direktno autoradiografisati.

Na obali Kenije, u Mombasi, izmerene su vrednosti od 12.000 nGy/h nad karbonatitima koji sadrže torijum.

Ramsar na Kaspijskom moru, u Iranu, ima doze od 30.000 nGy/h. Jačine doza od 100.000 nGy/h su merene na uranilferitnim stenama u švedskoj.

Veliko iznenađenje u naučnom svetu bilo je otkriće iz 1972, da je rudnik urana Oklo, u zapadnoafričkoj republici Gabon, ustvari fosilni prirodni reaktor star 2 milijarde godina. Procenjuje se da je kritičnost održavana oko 1 milijardu godina u toku kojih je oslobođena energija od 15.000 MW·godina i utrošeno 6t ^{235}U. Nađeno je, takođe, da je migracija fisionih produkata i transuranskih elemenata u okolinu veoma mala. Ispitivanja anomalija kao što su Gvozdena planina i Oklo, vrše se i u cilju nalaženja rešenja za postojeće probleme, kao što je na primer, odlaganje radioaktivnog otpadnog materijala, analogno sa prirodnim rešenjima koja su se pokazala uspešnim.

4.1. Procene doza u zatvorenom prostoru

Procene jačine doza zračenja u zatvorenom prostoru, na osnovu brojnih nacionalnih studija pokazuju da se jačina doze unutar stanova kreće u opsegu od 20

do 190 nGy/h, sa srednjom vrednošću od 80 nGy/h. Uočava se da okolni građevinski materijal podiže nivoe jačina doza za oko 40 - 50%. Radi jednostavnije procene doza u zatvorenom prostoru od građevinskog materijala razvijen je i koncept indeksa korišćene aktivnosti (activity utilization index) [2].

4.2. Ekstrakcija i prerada određenih prirodnih sirovina

Ekstrakcija i obrada materijala iz zemlje utiče na izloženost prirodnim izvorima globalne populacije kada ovi materijali, njihovi poluproizvodi ili otpad u tehnološkom procesima sadrže koncentracije radionuklida iznad prosečnih. Pri tim industrijskim procesima rizik od zračenja je u principu mali u poređenju sa rizikom od hemijski štetnih agenasa, tako da se zračenje uglavnom ne kontroliše sistematski.

Pod ovim postupcima najčešće se podrazumevaju: sagorevanje uglja, proizvodnja energije iz ostalih fosilnih goriva, upotreba fosfatnih ruda i vađenje i prerada mineralnog peska.

Procenjen doprinos efektivnoj dozi od upotrebe uglja za termoelektrane, emisijom produkata sagorevanja u atmosferu, je oko 2 μSv godišnje po pojedincu, globalno, mada uz vrlo visoku neodređenost ulaznih parametara. Opseg procena doza usled upotrebe ugljeva u domaćinstvu kreće se u rasponu 0.4 do 8 μSv [2]. Ugljeni pepeo nastao u termoelektranama koristi se širom sveta u izgradnji puteva, asfaltnih mešavina i kao đubrivo, a 5 % ukupnog pepela koristi se i u građevinarstvu, što je sa dozimetrijske tačke gledišta najznačajnije. Procenjuje se da je njegov doprinos globalnoj izloženosti oko 5 μSv [2].

Doprinosi globalnoj izloženosti od upotrebe ostalih vrsta fosilnih goriva, treseta, prirodnog gasa i geotermalne energije su oko nekoliko nSv godišnje po pojedincu [2].

Fosfatne rude su početni materijal za proizvodnju svih fosfatnih proizvoda i glavni izvor fosfora za đubriva. Pregled koncentracija prirodnih radionuklida u fosfatnim đubrivima dat je u izveštaju UNSCEAR iz 1982 [1]. Koncentracije ^{232}Th i ^{40}K u fosfatnim stenama svih vrsta su približno jednake prosečnim koncentracijama u tlu, dok su koncentracije ^{238}U i njegovih produkata raspada povećane u fosfatnim naslagama sedimentnog porekla. Tipična vrednost specifične aktivnosti ^{238}U je oko 1500 Bq kg^{-1}. Izloženost stanovništva javlja se kao posledica emisije efluenata u procesu hemijske prerade rude i kao posledica upotrebe đubriva i otpadnih materijala tehnološkog procesa. Procene uticaja ispuštanja u vode i vazduh u okolini velikih industrijskih kompleksa u Zapadnoj Evropi kreću se i do maksimalnih vrednosti od 150 μSv godišnje [2].

Procenjuje se da je potrošnja fosfatnih đubriva u svetu oko 30.000.000 t P_2O_5, i da njihova upotreba širom sveta predstavlja najvažniji izvor mobilnog ^{226}Ra u životnoj sredini. Godišnja primena fosfatnih đubriva doprinosi povećanju sadržaja ^{238}U u tlu za oko 1%. Ukupan doprinos jačini doze u zadnjih 100 godina primene ovih đubriva procenjuje se na oko 1 nGy/h, što je mali deo normalnog prirodnog fona iz tla od 60 nGy/h. Imajući sve to u vidu, kao i unošenje ingestijom procenjuje se globalna godišnja efektivna doza po odraslom pojedincu na 2 μSv [2].

Upotreba otpadnih materijala iz industrije fosfatnih đubriva u građevinarstvu može značajno povećati nivoe izloženosti (i do 70 nGy/h), jer se koncentracije ^{226}Ra

mogu kretati od 900 do 2 200 Bq/kg.

Ukupno posmatrano, izloženost jonizujućem zračenju koje je posledica obrade i upotrebe materijala iz zemljine kore, je relativno mala u poređenju sa ukupnom izloženošću izvorima prirodnog porekla i procenjuje sa na oko 20 μSv, uz jasnu napomenu da je procena izvršena sa visokom nesigurnošću ulaznih parametara [2].

5. IZLOŽENOST JONIZUJUĆEM ZRAČENJU RADIONUKLIDA U TELU

Treći osnovni činilac izloženosti jonizujućem zračenju iz prirode su prirodni radionuklidi u ljudskom telu.

Kalijum je pod homeostatskom kontrolom organizma, mada postoje bolesna stanja koja utiču na njegov nivo. Procenjuje se da je godišnja efektivna doza usled ^{40}K u telu 165 μSv za odrasle, a 185 μSv za decu [2].

U principu, procene efektivnih doza usled interne kontaminacije radionuklidima se ne mogu vršiti na osnovu direktnih merenja, već na osnovu usvojenih modela, statističkih podataka i proračuna. Kako su elementi ovih proračuna vezani za široko varijabilne i praktično individualne podatke o anatomskim veličinama, fiziološkim i biohemijskim funkcijama, Međunarodna komisija za zaštitu od zračenja razvila je i publikovala filozofiju, metodologiju i referentne podatke za ovu vrstu proračuna. Relevantni medicinski parametri su standardizovani i publikovani u vidu koncepta "Referentnog čoveka" [7].

Fiziologija i metabolizam su modelovani u vidu sistema "kompartmenata", (tzv. prostora - u fiziološkom smislu) u kojima se radioaktivni elementi zadržavaju izvesno vreme, iz koga se određenom brzinom eliminišu ili u koji nekom brzinom stižu. Kinetika sistema se opisuje sistemima diferencijalnih jednačina, a metodologija je principijelno usvojena iz teorije linearnih sistema i sistema automatskog upravljanja [8].

Izloženost radonu je najznačajniji element ljudske izloženosti prirodnim izvorima, a posmatra se izdvajeno od ostale 3 komponente osnovnog fona, jer nivoi u normalnim uslovima znatno variraju, a visoki nivoi se mogu relativno lako sprečiti. Zbog kompleksnosti anatomije respiratornog sistema i procesa u njemu, posebno se i detaljnije razmatraju modeli za proračun doza od radona i njegovih potomaka.

6. DOZIMETRIJSKI MODEL RESPIRATORNOG TRAKTA

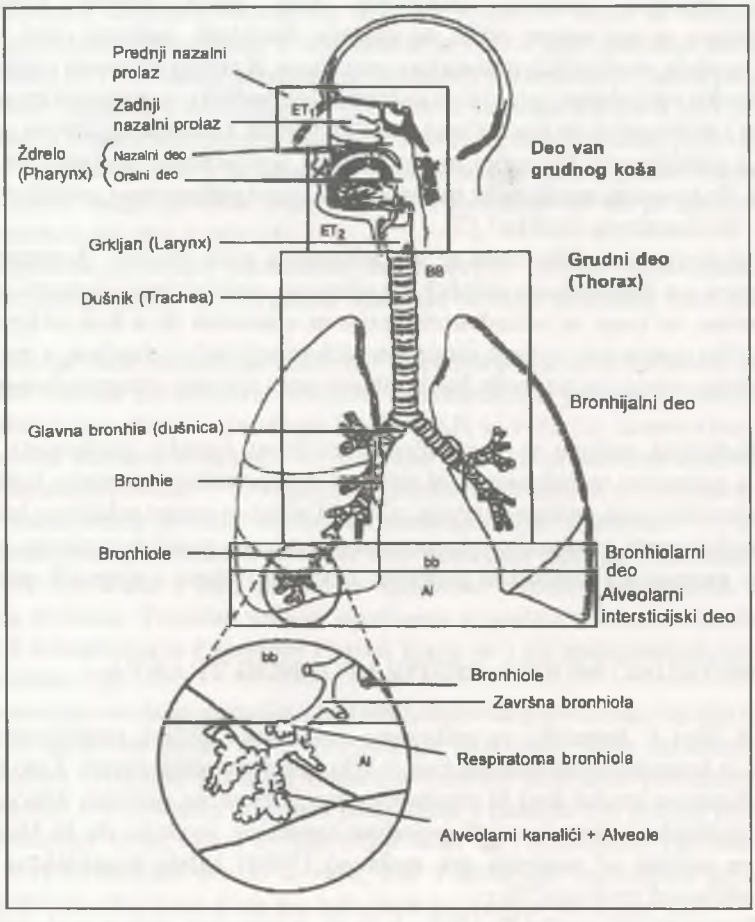
Na Slici 1. šematski su prikazane anatomske oblasti respiratornog trakta. Očigledna je kompleksnost sistema koji je bilo potrebno modelovati. Zato još uvek ne postoji jedinstven model koji bi obuhvatio sve relevantne procese. Mnogi su autori tokom poslednjih godina razvijali pojedine segmente modela, da bi Međunarodna komisija za zaštitu od zračenja tek nedavno (1994) izdala kompleksan model za potrebe zaštite od zračenja [9].

Dozimetrijski model ljudskih pluća se, u principu, sastoji iz sledećih delova:

- geometrijski model traheo - bronhijalnog stabla i pulmanornog dela

- matematički tretman depozicije aerosola na unutrašnjim zidovima vazdušnih puteva (bronhija i bronhiola),
- biološki model transporta nataloženih radonovih potomaka, čišćenjem ili prenosom u krv,
- model raspodele ćelija mete,
- proračun apsorbovane energije (doze).

Dozimetrijski modeli različitih autora se razlikuju u više aspekata. Pre svega, to je matematički tretman depozicije, čišćenja i prenosa aerosola u krv. Stari ICRP model [10] ljudskih pluća predstavlja ljudska pluća u obliku prostih matematičkih "kompartmenata". Veliki deo nataložene aktivnosti, oko 95%, se vrlo brzo prenese u krv sa vremenom polueliminacije (vreme za koje se polovina nataložene aktivnosti prenese u krv) od 15 minuta, što je kratko u poredjenju sa vremenom poluraspada nataložene aktivnosti od 30 minuta, (vreme poluraspada ^{214}Pb je 27 min). čišćenje pluća je zanemareno u ovom modelu.



Slika 1. Anatomske oblasti respiratornog trakta [9]

Drugi model [11] razmatra taloženje i čišćenje aerosola u k-toj generaciji bronhijalnog stabla. Prenos u krv je zanemaren, a čišćenje se obavlja samo transportom duž sluzokože. Bronhijalno stablo je podeljeno u više generacija sa različitim brzinama pomeranja sluzokože.

Treći model ljudskih pluća [12], razmatra konkurenciju izmedju čišćenja aerosola mukusom i prenosa u krv. čišćenje je različito za slobodne i pripojene radonove potomke. Slobodni potomci se vrlo brzo prenose u krv, dok se pripojeni mogu preneti u krv, raspasti ili se preneti prema gornjim delovima disajnih puteva mehanizmom čišćenja (pokretanjem mukusa naviše). Ponašanje slobodnih radonovih potomaka, kako je to pretpostavljeno u ovom modelu, utiče na znatnu promenu doze od njih.

četvrti model pluća [13], je najkomplikovaniji, jer pored procesa koje uzimaju u obzir napred navedeni modeli, procenjuje i dozu od alfa emitera u epitelnom sloju na putu u krv.

Druga, ali manje značajna razlika, izmedju pomenutih modela je geometrijski oblik pluća i bronhijalnog stabla. Prvi i treći model pretpostavljaju simetrični model ljudskih pluća, tzv. Weibel-ov model, [14], a drugi i četvrti model usvajaju Yeh-Schum-ov model [15]. Izbor jednog ili drugog geometrijskom modela ima uticaja na vrednost izračunate apsorbovane doze. Uz sve ostale pretpostavke iste, Weibel-ov model daje vrednost za apsorbovanu dozu za oko 30% veću u odnosu na Yeh Schum-ov model.

Treća razlika izmedju gornjih modela je lokacija ćelija mete ispod površine epitela. Najosetljivije na zračenje su ćelije bazalnog sloja i potrebno je izračunati energiju predatu ovom sloju. Drugi model uzima da su bazalne ćelije na dubini od 22 μm ispod površine. Za bronhiole generacije preko 10, ovaj model pretpostavlja dubinu od 10 Im. Treći i četvrti model uzimaju raspodelu dubina bazalnog sloja onako kako je to dato u referenci [16].

Počev od 1991 godine, osetljivim se smatraju i sekretorne ćelije. Pomenuti modeli su razvijeni pre 1991 i ne uzimaju u obzir dozu u ovim ćelijama.

Drugi, treći i četvrti model su testirani za iste aerosolne i druge uslove. Menjani su različiti parametri aerosola i biološke karakteristike; izračunate su apsorbovane i efektivne doze po svakom od ova tri modela za izlaganje radonovim potomcima u zatvorenom prostoru i izlaganje u rudnicima i izvršena su uporedjivanja. Rezultati ovih računanja su detaljno dati u referenci [17].

6.1. Taloženje radioaktivnih aerosola u ljudskim plućima

Deo radonovih potomaka koji se zadrže u plućima je od fundamentalnog značaja pri proračunu veze izmedju apsorbovane doze u slojevima bazalnih i sekretornih ćelija i izlaganja radonovim potomcima. Ovaj problem se proučava već skoro četrdeset godina [18]. Pristup ovom problemu može biti na jedan od četiri načina. To su:

a) proučavanja "in vivo" ,
b) proučavanja "in vitro",

c) teorijska proučavanja, i
d) eksperimenti na životinjama.

Proučavanja in vivo podrazumevaju merenja zadržanog dela radonovih potomaka u ljudskim plućima na živim ljudima. Ovo se može obavljati na dva načina [19]. Prvi način je merenjem gama zračenja iz pluća na aparaturama za merenje zračenja celokupnog ljudskog tela (*Whole Body Counter*). Pored toga potrebno je odrediti koncentraciju radonovih potomaka u prostoriji u kojoj se vrši merenje. Iz dobivenih informacija može se odrediti deo radonovih potomaka koji se zadrže u ljudskim plućima. Drugi način merenja je zasnovan na merenju koncentracije radonovih potomaka u udahnutom i izdahnutom vazduhu: njihov količnik daje deo radonovih potomaka zadržanih u plućima.

Merenja prvog tipa omogućuju odredjivanje raspodele zadržanih potomaka u respiratornom traktu, pomeranjem detektora iznad odredjenih delova tela. Problem kod ove vrste merenja je odredjivanje aktivnosti iz dobivenog broja impulsa pod odredjenim pikovima u spektru (odnosno kalibracija). Potrebno je praviti odgovarajuće fantome radi kalibracije. Drugi metod merenja daje ukupnu retenciju, bez mogućnosti odredjivanja raspodele aktivnosti u raznim delovima tela.

Metode in vitro podrazumevaju proučavanje retencije radioaktivnih aerosola u raznim eksperimentalnim modelima. Prave se eksperimentalni modeli ljudskih pluća, i to najčešće od plastike; pomoću odgovarajućih pumpi uduvava se vazduh, kontaminiran poznatom koncentracijom radonovih potomaka, u te modele. Kontrolišu se parametri atmosfere značajni za retenciju; to su dijametri i koncentracije radioaktivnih aerosola, njihova hemijska forma i dr. Moguće je menjati brzinu propuštanja vazduha, kao i njegov smer (čime se simulira udisanje i izdisanje). Po prekidu propuštanja vazduha meri se aktivnost zadržana u raznim delovima modela respiratornog trakta i donose odgovarajući zaključci [20,21].

Pod teorijskim pristupom podrazumeva se izvodjenje jednačina koje daju retenciju u raznim delovima respiratornog trakta u zavisnosti od raznih značajnih parametara. Vrednosti izračunate pomoću ovih jednačina se uporedjuju sa merenim vrednostima. Veći broj jednačina je dobiven analitičkom aproksimacijom eksperimentalno dobivenih podataka [22]. Neke od jednačina koje se primenjuju za računanje retencije su dobivene u drugim oblastima fizike ili tehnike, kao na primer poznata Gormley-Kenedy-jeva jednačina [23]. Svrha postavljanja ovih jednačina je da se odredi retencija u onim delovima respiratornog trakta i u onim uslovima u kojima merenja nisu moguća ili nisu obavljena.

Pored ova tri pomenuta pristupa problemu retencije radioaktivnih aerosola u ljudskim plućima potrebno je pomenuti još i eksperimente na životinjama [24] i dr.

Respiratorni trakt se za potrebe proučavanja taloženja radonovih potomaka može podeliti u tri oblasti (Slika 1).

To su:

a) nos, usna duplja, larynx, pharynx i 3 cm gornjeg dela traheje, dalje označavan sa N-P;
b) traheo- bronhijalno stablo, označavan sa T-B i
c) alveolna oblast.

Čestice nataložene u N - P regionu se kreću naviše pokretanjem mukusa, do larynx-a, odakle se prenose u stomak. Radioaktivnost nataložena u ovom delu je biološki beznačajna jer se sve emitovane alfa čestice apsorbuju u vrlo debelom sloju mukusa. Isti mehanizam čišćenja, pokretanje mukusa naviše je značajan i za T-B region. Jedan deo radioaktivnih aerosola se preko kapilara prenosi u krv ili limfni sistem .

Taloženje radioaktivnih aerosola je funkcija više parametara koji se mogu podeliti u dve grupe i to:

a) parametri atmosfere i

b) parametri subjekta.

Od parametara atmosfere koji utiču na retenciju radioaktivnih aerosola u ljudskim plućima najznačajniji je, medijana raspodele aerosola po dijametarima i odgovarajuća standardna devijacija. Pored ovih parametara, stepen dostignute ravnoteže radona i potomaka u atmosferi je značajan pri proračunu doze od nataloženih potomaka u plućima. Parametar koji je od velikog značaja za proračun retencije (i doze) u plućima je srednji slobodni deo ^{218}Po (RaA). Značaj nepripojenog dela ^{218}Po je u tome što se on zadržava u plućima sa efikasnošću od 100%. To je razlog da on daje značajan doprinos ukupnoj dozi.

Od značaja je i rastvorljivost radioaktivnih aerosola u mukusu, koja zavisi od njihove hemijske forme. Prema rastvorljivosti aerosoli se grubo mogu podeliti u vrlo rastvorljive, srednje i nerastvorljive.

Subjektivni faktori koji utiču na taloženje radioaktivnih aerosola u plućima su sledeći:

a) parametri povezani sa brzinom disanja, a to su zapremina vazduha uneta pri jednom udisaju (m^3), učestanost disanja koja se izražava u 1/ks, (odnosno broj udisaja u minuti) i trajanje jednog ciklusa disanja; i

b) osobine i stanje samih pluća kao i navike subjekta (pušenje) i dr. Razne infekcije i bolesti respiratornog trakta slabe mehanizme čišćenja pluća, čime se povećava aktivnost nataložena u plućima [25]. Ovi parametri se dosta teško mogu uzeti u obzir pri računanjima u raznim dozimetrijskim modelima.

6.2. Mehanizmi taloženja radioaktivnih aerosola u ljudskim plućima

Taloženje radioaktivnih aerosola se odigrava preko tri procesa. To su:

a) difuziona depozicija,

b) depozicija sudarom i

c) sedimentacija.

Pod difuzionom depozicijom se podrazumeva taloženje radioaktivnih aerosola na zidovima cevi kroz koju se vazduh kreće, a usled difuzionog kretanja aerosola. Deo aerosola koji se nataloži je funkcija koeficijenta difuzije, brzine vazduha, dijametra i dužine cevi, dijametra aerosola i dr. Karakteristika toka vazduha kroz cev (laminarni ili turbulentni tok) je takodje od uticaja na taloženje.

U slučaju laminarnog toka vazduha, deo f_d aerosola, nataložen na zidove cevi, dat je Gormley-Kenedy-jevom jednačinom [23]:

$$f_d=4.07h^{\frac{2}{3}}-2.4h-0.446h^{\frac{4}{3}} \quad za \quad h<0.0156 \tag{1}$$

$$f_d=1-0.819e^{-7.314h}-0.0975e^{-44.6h}-0.0325e^{-114h} \quad za \quad h>0.0156 \tag{2}$$

$$h=\frac{D\tau}{2r^2} \tag{3}$$

U gornjoj jednačini,

D je koeficijenat difuzije,

r poluprečnik cevi kroz koju struji vazduh, i

τ je vreme za koje aerosol predje od jednog do drugog kraja cevi.

Očigledno je, da je

$$\tau=\frac{l}{v} \tag{4}$$

gde je:

l dužina cevi, a

v brzina toka vazduha.

U slučaju turbulentnog toka difuziona depozicija je data Landahl-ovom jednačinom [26] koja glasi:

$$f_d=2(2h)^{\frac{1}{2}}(1-2(\frac{2h}{9})^{\frac{1}{2}}) \tag{5}$$

gde je h isto kao u kod Gormley-Kenedy-jevoj jednačini.

U gornjim jednačinama pojavljuje se koeficijenat difuzije aerosola. On se može izračunati iz sledeće jednačine:

$$D=\frac{CkT}{3\pi\eta d} \tag{6}$$

gde su:

k Bolcmanova konstanta,

T apsolutna temperatura,

η viskoznost vazduha, i

d dijametar aerosola.

C je konstanta koja se zove Kunningham-ova korekcija i računa se po sledećoj formuli:

$$C=1+1.23\frac{\lambda}{d}+0.44e^{-0.87\frac{\lambda}{d}} \quad (7)$$

gde je:

λ dužina srednjeg slobodnog puta molekula vazduha, koja iznosi 0.0653 μm na normalnoj temperaturi i pritisku.

Karakter toka vazduha kroz T-B stablo je sledeći: do 6-te generacije bronhija uzima se da je tok turbulentan, a na dalje je laminaran. Granica turbulencije je stvar diskusija i rasprava; prema nekim autorima turbulencija se prostire sve do 10-te generacije [26], dok prema drugima [27] turbulencija prestaje već od treće generacije.

Nataloženi deo je znatno veći pri turbulentnom toku nego pri laminarnom. U ranijim radovima [28] uzimano je da je tok laminaran u celom T-B stablu. Ovakav pristup je izazvao znatno manju procenu nataložene aktivnosti u prvih nekoliko generacija bronhija.

Drugi proces taloženja radioaktivnih aerosola je sudarno-inercijalno taloženje. Značajan je za aerosole većih dijametara, to jest za d > 0.3 Îm. Deo čestica f_i , koji se nataloži ovim procesom je dat sledećom jednačinom:

$$f_i=1.3(C_1-0.001) \quad (8)$$

pri čemu je:

$$C_1=\frac{4r^2v}{36\mu r_b} \quad (9)$$

U ovoj jednačini,

r je poluprečnik aerosola,

v brzina vazduha u bronhijama,

μ viskoznost vazduha, i

r_b poluprečnik bronhija.

Treći proces taloženja radioaktivnih aerosola u T-B stablu je sedimentacija. Značajan je za čestice većih dijametara.

Taloženje pripojenih radonovih potomaka u nosu se računa pomoću sledeće jednačine :

$$F_{N-P}=-0.63+\log(d^2F) \quad (10)$$

pri čemu je F tok vazduha u l/min. F_{N-P} je deo aerosola prečnika d koji se zadrže u nosu [22]. Ova jednačina je dobivena fitovanjem eksperimentalnih podataka.

Taloženje u alveolnom regionu je procenjeno da iznosi 20 %, unete aktivnosti [21].

6.3. Geometrijski model

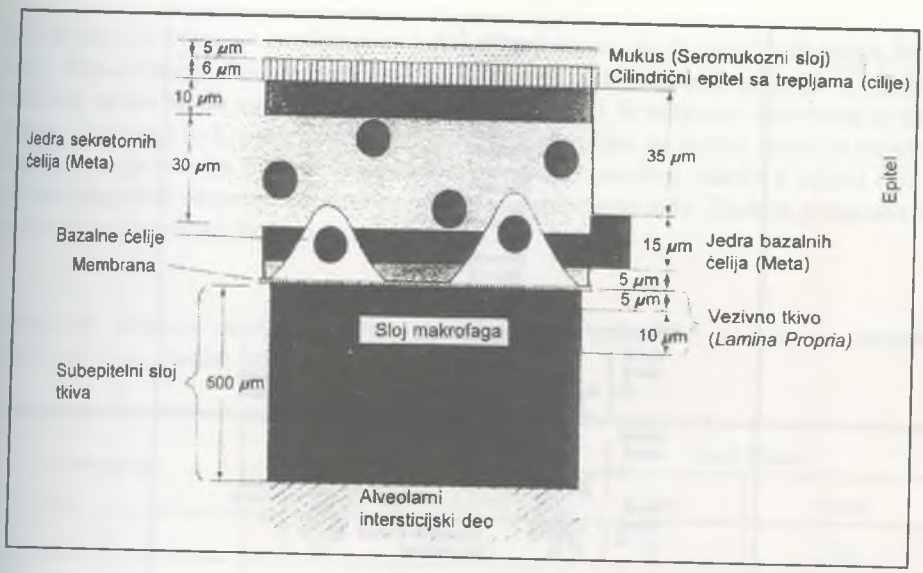
Sekretorne i bazalne ćelije u bronhijalnom epitelu, i u manjem iznosu, sekretorne ćelije u bronhiolama su identificirane kao glavna meta za izazivanje bronhogenog kancera. Položaj ovih ćelija u epitelu je od izuzetnog značaja za proračun apsorbovane doze u njima. Zid bronhije/bronhiole sastoji se iz nekoliko slojeva. Sa unutrašnje strane nalazi se sloj sluzi nazvan mucus. Ispod su cilije, i epitel. U epitelu se nalaze sekretorne, bazalne ćelije i drugo. Položaj i debljina ovih slojeva je merena od strane više autora. Pošto je domet alfa čestica u tkivu 48 μm (6 MeV) i 71 μm (7,69 MeV) rastojanje od tačke emisije do mete je od izuzetnog značaja.

Model lokacije, sekretornih i bazalnih ćelija u bronhijalnom regionu, prikazan je na Slici 2. Uzeto je da je debljina mucusa 5 μm, dužina cilija je 6 μm. Ispod cilija je sloj ispunjen fluidom i tkivom u kome nema jedara bazalnih i sekretornih ćelija. Sloj sekretornih ćelija je debljine 25 μm, a bazalnih 15 μm, pri čemu bazalne ćelije ulaze u sloj sekretornih oko 5 μm. Ispod sloja bazalnih ćelija nalazi se bazna membrana, krvni sudovi i dr.

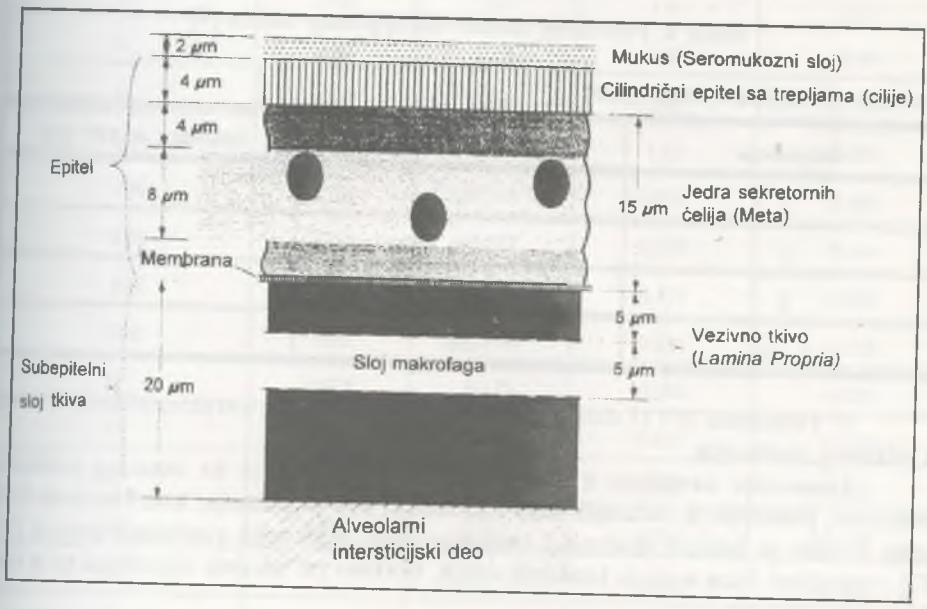
Model lokacije sekretornih ćelija u bronhiolarnom delu je prikazan na Slici 3. Sloj mukusa je debljine 2 μm, cilije su 4 μm. Osetljivi sloj sekretornih ćelija je na dubini od 10 do 18 μm ispod površine mukusa (odnosno 4 do 12 μm ispod površine epitela).

Drugi autori su takodje merili debljinu pojedinih slojeva zida bronhije. Ovde se naročito ističu radovi [16] i [30]. Oni su proučavali i zavisnost debljine pojedinih slojeva od generacije bronhije. U Tabeli 9. dati su reprezentativni rezultati debljine epitela prema Gastineau i Baldwin-u.

Pored modela "lokacije" osetljivih ćelija za proračun doze potreban je i model dimenzija "vazdušnih" puteva. Ovaj model je potreban iz dva razloga: prvo da se proračuna deo nataloženih radonovih potomaka u svakoj generaciji kroz celo T-B stablo; i drugo da se nakon izračunate depozicije odredi površinska kontaminacija alfa emiterima. Ovaj model se ponekad naziva "geometrijski " model pluća.

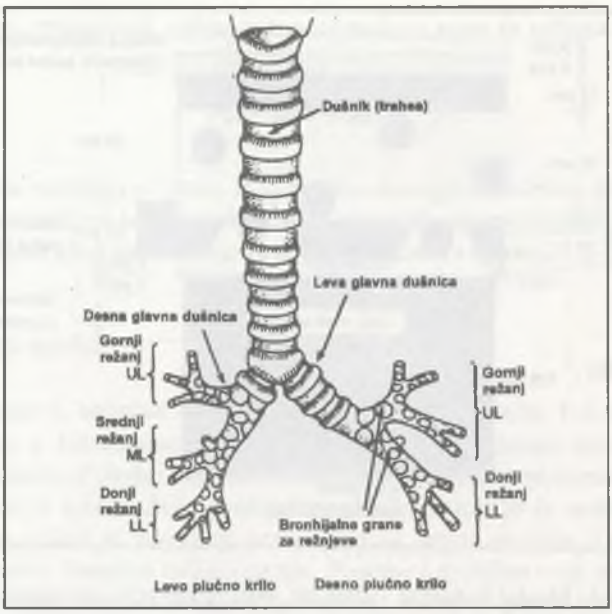


Slika 2. Model lokacije ćelija do 9-te generacije grananja [9]



Slika 3. Model lokacije ćelija posle 9-te generacije grananja [9]

U upotrebi su, kako je već ispred rečeno, Weibelo-ov simetrični i Yeh-Schum-ov asimetrični geometrijski model. Na Slici 4. prikazano je prvih nekoliko generacija T-B stabla prema Yeh-Schum-u.



Slika 4. Priibližan model bronjijalnog stabla [9]

Tabela 9. Debljina epitela [μm]

Generacija	Gastineau i dr, 1972 [16]	Baldwin i dr. 1991 [30]
1	80	40
2	50	39
3	50	36
4 - 16	50	33

U Tabelama 10 i 11 date su srednje morfometrijske karakteristike T-B stabla za odraslog muškarca.

Dimenzije navedene u Tabelama 10 i 11 odnose se na odraslog muškarca. Medjutim, potrebno je računati dozu i za ženski deo populacije, kao i za decu. U tu svrhu koriste se faktori skaliranja (umanjavanja) dimenzija vazdušnih puteva [31], [32]. Proračuni doza u sloju bazalnih ćelija, zavisno od uzrasta objavljeni su u radu [33].

6.4. Proračun apsorbovane doze

Ovde će ukratko biti dat opis proračuna doze u T-B stablu. Proračun se sastoji iz sledećih koraka.

a) Odredjivanje konverzionih koeficijenata koji daju apsorbovanu dozu u osetljivim ćelijama po jednoj emitovanoj alfa čestici. Pri odredjivanju ovih

koeficijenata potrebno je uračunati položaj alfa emitera i mete (osetljivih ćelija, što je ranije diskutovano). Položaj emitera je još uvek pod znakom pitanja. U nekim radovima uzima se da su nataloženi radonovi potomci homogeno rastvoreni u sloju mukusa; u drugim pak, pretpostavljeno je da se oni nalaze na samoj površini mukusa. Postoje i pretpostavke o tome da radonovi potomci prodiru dublje u epitel i da je njihova raspodela eksponencijalno opadajuća sa dubinom zida. Zadnja pretpostavka povećava konverzione koeficijente.

Tabela 10. Srednje morfometrijske karakteristike [cm] T-B trakta za odraslog muškarca (levo plućno krilo)

Generacija	gornji režanj		donji režanj	
	d [cm]	l [cm]	d [cm]	l [cm]
0	10.	2.01	10	2.01
1	5.63	1.38	5.63	1.38
3	1.45	1.03	1.42	1.15
4	1.02	0.64	1.13	0.68
5	1.09	0.535	0.891	0.559
6	1.02	0.426	1.02	0.454
7	0.751	0.341	0.836	0.365
8	0.832	0.307	0.778	0.316
9	0.555	0.234	0.771	0.298
10	0.482	0.178	0.611	0.286
11	0.388	0.135	0.544	0.211
12	0.343	0.1	0.431	0.146
13	0.267	0.078	0.302	0.102
14	0.215	0.061	0.224	0.076
15	-	-	0.188	0.061
16	-	-	-	-

b) Odredjivanje aktivnosti nataložene u svakoj generaciji bronhija u zavisnosti od brzine unošenja radioaktivnosti.

Tabela 11. Srednje morfometrijske karakteristike T-B trakta za odraslog muškarca (desno plućno krilo)

Generacija	gornji režanj		srednji režanj		donji režanj	
	d ŠcmĆ	l ŠcmĆ	d ŠcmĆ	l ŠcmĆ	d ŠcmĆ	l ŠcmĆ
0	10	2.01	10	2.01	10	2.01
1	3.09	1.75	3.09	1.75	3.09	1.75
2	1.22	1.02	3.02	1.33	3.02	1.33
3	0.8	0.76	2.27	0.72	0.88	1.01
4	1.27	0.65	1.34	0.620	1.09	0.80
5	1.25	0.579	1.63	0.528	1.33	0.65
6	0.827	0.454	1.04	0.376	1.22	0.583
7	0.988	0.355	1.04	0.317	0.796	0.471
8	0.798	0.278	0.691	0.268	0.803	0.367
9	0.557	0.216	0.527	0.199	0.880	0.347
10	0.401	0.158	0.394	0.147	0.9	0.317
11	0.350	0.118	0.266	0.106	0.591	0.249
12	0.250	0.088	0.225	0.083	0.449	0.181
13	0.194	0.07	0.172	0.064	0.337	0.314
14	0.143	0.058	0.118	0.051	0.257	0.101
15	-	-	-	-	0.222	0.077
16	-	-	-	-	0.158	0.066

c) Odredjivanje *ravnotežne aktivnosti u svako*j bronhiji uzimajući u obzir brzinu taloženja, brzinu čišćenja, prenos u krv i raspad. Za ovo je potrebno rešiti niz diferencijalnih jednačina sledećeg oblika:

$$\frac{dN_{ij}}{dt}=\frac{B_{ij}}{\lambda_i}+A_{i-1,j}+\lambda_{c,j+1}N_{ij+1}-(\lambda_i+\lambda_k+\lambda_{c,j})N_{ij} \qquad (11)$$

gde je $N_{i,j}$ broj atoma *i*-tog radonovog potomka u bronhiji generacije *j*, $B_{i,j}$ je brzina taloženja *i*-tog radonovog potomka u bronhiji generacije *j*, i izražava se u Bq/s; λ_i je konstanta radioaktivnog raspada i -tog radonovog potomka; $A_{i,j}$ je ravnotežna aktivnost *i*-tog radonovog potomka u bronhiji generacije *j*, $\lambda_{c,j}$ je konstanta čišćenja

mukusom u j-toj generaciji i λ_k je konstanta prenosa u krv.

Prva tri člana desne strane gornje jednačine povećavaju broj atoma i-tog radonovog potomka u j-toj generaciji i to na račun taloženja, raspada prethodnog (i-1 - og) potomka i prenosa mukusom iz j+1 generacije. Zadnji član jednačine (sa predznakom -) uračunava smanjenje broja atoma i-tog potomka u j-toj generaciji i to na račun raspada, prenosa u krv i čišćenja.

Rešenje jednačine je u sledećem obliku:

$$A_{ij}=\frac{\lambda_r A_{i-1,j}+\lambda_{c,j+1}A_{i,j+1}+B_{ij}}{\lambda_i+\lambda_{c,j}+\lambda_k} \qquad (12)$$

Prethodna jednačina ustvari čini sistem većeg broja jednačina koje se moraju početi sa rešavanjem od 16-te generacije i to za prvi potomak i=1 (^{218}Po). Nakon toga sledi rešavanje za i=2 i i=3 (drugi i treći radonov potomak), u 16-toj generaciji, da bi se posle toga prešlo na računanje za 15-tu generaciju. Na taj način se izračunaju ravnotežne aktivnosti u svim generacijama T-B stabla.

d) Izračunate ravnotežne aktivnosti se sada množe sa ranije odredjenim konverzionim faktorima čime se direktno dobija apsorbovana doza u sloju bazalnih i sekretornih ćelija.

Nakon svega ovog sledi množenje odgovarajućim koeficijentima radi dovodjenja na sistemske (ili željene) jedinice.

Opisana procedura se mora programirati i izvršavati na računarima.

Kao krajnji rezultat dobija se apsorbovana doza, (ili efektivna doza, ukoliko se izvrši množenje apsorbovane doze odgovarajućim težinskim faktorima) po jediničnom izlaganju radonovim potomcima.

Napravljeni programi onda omogućuju ispitivanje zavisnosti doze od raznih relevantnih parametara kao što su:

- dijametar aerosola;
- brzina udisanja;
- faktor ravnoteže radona i potomaka;
- slobodna frakcija i td.

Moguće je računati dozu u pojedinim delovima T-B stabla; na primer samo u segmentalnim bronhijama i dr.

Od interesa je srednja vrednost efektivne doze po jedinici izlaganja radonovim potomcima u prvih 10 generacija T-B stabla. UNSCEAR 1982 [1] je preporučio vrednost od 5 mSv/WLM. Druga preporučena vrednost od strane NCRP je 12 mSv/WLM.

U radu [34] dobijena je vrednost od 3.8 mSv/WLM.

Nakon odredjivanja zadnjeg konverzionog koeficijenta, put do stvarne doze koju pojedinac primi od radonovih kratkoživećih potomaka vodi preko poznavanja izloženosti tog pojedinca. Za to je potrebno znati srednju vrednost izlaganja u WLM, koju treba pomnožiti sa faktorom 5 mSv/WLM. Na taj način dobija se efektivna ekvivalentna doza koju je odredjeni pojedinac primio.

U radu nije detaljnije analiziran i najnoviji ICRP model [9], ali je on usvojio rezultate istraživanja koja su zadnjih godina rađena i koja su ovde izložena.

LITERATURA

[1] United Nations Scientific Committee On the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), *Sources and Effects of Ionizing Radiation,* New York 1982

[2] United Nations Scientific Committee On the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), *Sources and Effects of Ionizing Radiation*, UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, United Nations, New York, 1993

[3] Lowder, W. M. and Miller, K. M., *Cosmic and Terrestrial Gamma Radiation Measurement* in Fifth International Symposium on the Natural Radiation Environment, Tutorial sessions, EUR 14411 EN, 1993

[4] *Radiation Exposure of Civil Aircrew*, Proceedings of a Workshop Luxembourg, June 25-27,1991, Radiation Protection Dosimetry, Vol. 48, No.1, 1993.

[5] Merril Eisenbud, *Environmental Radioactivity, from Natural, Industrial and Military Sources*, 3rd ed, 1987, Academic Press, Inc.

[6] Kathren R. L, *Radioactivity in the Environment: Sources, Distribution and Surveillance*, 1986, Harwood Academic Publishers

[7] *Reference Man: Anatomical, Physiological and Metabolic Characteristics*, International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 23

[8] *Radionuclide Release into the Environment: Assessment of Doses to Man* ICRP Publication 29, Annals of the ICRP Vol 2, No. 1, 1978

[9] *Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection*, ICRP Publication 66, Annals of the ICRP, Vol. 24, Nos 1-3, 1994

[10] *Limits on Intakes of Radionuclides by Workers,* International Commission on Radiological Protection. Annals of ICRP No 3/4 1979

[11] Harley N.H., Pasternack B.S., *Environmental Radon Daughters Alpha Dose Factors in Five-Lobed Human Lung.* Health Physics 42, str 699 1982

[12] Jacoby W., Eisfeld K., *Dose to Tisuess and Efective Dose Equivalent by Inhalation of Rn-222, Rn-220 and their Short - lived Daughters.* GSF reports S-626, 1980

[13] James A.C., JAcoby W., Steinhausler F. *Respiratoru track Dosimetry of Radon and Thoron Daughters.* Rad. Hazards in Mining (ed. M. Gomez) Soc. Min. Eng. New York str 42, 1982

[14] Weibel E.R, *Morphometry of the Human Lung,* Springer - Verlag, Berlin 1963

[15] Yeh H.C., Schum G.M., *Models of the Human Lung Airways and their Applications to Inhaled Particles Deposition.* Bull. Math. Biology. 42, str 461, 1980

[16] Gastineau, M.R., Walsh, J.P., Underwood,N. *Thickness of bronchial epithelium relation to exposure to radon.* Health Phys. 23,857-860 (1972).

[17] James, A.C. *Dosimetric approaches to risk assessment for indoor exposure to radon daughters.* Radiat. Prot.Dosim. 7,353-366 (1984)

[18] Landahl H.D. *On the Removal of Airborne Droplets by rhe Human Raspiratory Tract I The Lung.* Bull Math. Biophysics. 12, str 43. 1950

[19] Falk R. *Respiratory Tract Deposition of Radon Daughters in Humans Radiation Protect.* Dosim. 7. str 377, 1984

[20] Stahlhofen W., Gebhart J., Heyder J., *Experimental Determination of the Regional Deposition of Aerosol Particles in the Human Respiratory Tract.* Amm. Ind. Hyg. Association Journal. 41/6 str 385. 1980

[21] Chan T., Lippmann M. *Experimantal Measurements and Empirical Modeling of the Regional Deposition of Inhaled Particles in Humans.* Amm. Ind. Hyg. Association Journal 41. str 369. 1980

[22] Mercer T., *The Deposition Model of the Task Group on the Lung Dinamics. A Comparison with the Recent Experimental Data.* Health Physics 29, str 673. 1975

[23] Gormley P.G., Kennedy M., *Diffusion From a Stream Flowing Through a Cilindrical Tube.* Proceed. R Irish Acad. A 52 str 163. 1949

[24] Desrosiers A., Kennedy A., Litle J.B. *Rn-222 Dosimetry in the Sirian Golden Hamster Lung.* Health Physics 35, str 607, 1978

[25] Creasia D., Netteshiem P., Hamons A. *Impairment of the Lung Clearance Mechanism by Respiratory Infection.* Health Physics 23, str 865. 1972

[26] Landahl H.F. *Particle Removal by the Respiratory Sistem.* Bull. Math Biophysics. 12, str 43. 1963

[27] Martin D., Jacoby W., *Diffusion Deposition of Small-sized Particles in the Bronchial Tree.* Health Physics 23, str 23. 1972

[28] Harley, N.H., Pasternack, B.S. *Alpha Absorption Measurements applied to lung dose from radon daughters* Health Phys. 23,771-782 (1972).

[29] *Comparative dosimetry of Radon in mines and homes*, National Academy Press, Washington, D.C. 1991

[30] Baldwin, F., Hovey, A., McEven, T., O´Connor, R., Unruh, M., Bowden, D.H. Surface to nuclear distances in human bronchial epithelium: relationships to penetration by Rn daughters. Health Phys. 60,155-162 (1991).

[31] Yu C.P., Xu G.B. *Predicted Particle Deposition of Diesel Particles in Young Humans.* Journal Aerosols Sci. 18, str 419. 1987

[32] Phalen R.F., Oldham M.J., Beacage C.B., Crocker T.T., Mortensen J.D. *Postanatal Enlargement of Human Tracheo-bronchial Airways.* Anat. Rec. 212. str 368. 1985

[33] Hofman W. *Dose Caluclation for the Respiratory Tract from Inhaled Natural Radioactive Nuclides as a Function of Age.* Health Physics 34, str 31 1982

[34] Nikezić D., *Doprinos Eksperimentalnom i Teorijskom Proučavanju ozračenosti stanovništva i pojedinaca u zatvorenim prostorijama*, Dokt. dis. Prirodno Matem. fak. Univerzitet u Kragujevcu 1990

NIVOI IZLOŽENOSTI JONIZUJUĆEM ZRAČENJU IZ PRIRODE I METODE ZA PRORAČUN DOZA

Snežana Pavlović, Dragoslav Nikezić

Rezime

U ovom radu dat je ukupan pregled izvora zračenja prirodnog porekla u životnoj sredini i komparirani njihovi relativni doprinosi globalnoj izloženosti populacije, na bazi najnovijih međunarodnih izveštaja. Kao glavni nosilac izloženosti, izdvojen je radon, i za njega su analizirani postojeći dozimetrijski modeli.

Ključne reči: izloženost, izvori jonizujućeg zračenja u prirodi, radon, model respiratornog trakta

NATURAL RADIATIONS EXPOSURE LEVELS AND DOSE ASSESSMENT METHODS

Snežana Pavlović, Dragoslav Nikezić

Abstract

This paper compares natural radiation sources worldwide, according to the latest international reports, and assess their relative contribution. Radon is separately considered being the main source of global exposure, and respiratory tract model is presented.

Key words: exposure, natural sources of radiation, radon, respiratory tract model

29.

IZRAČUNAVANJE KONVERZIONIH KOEFICIJENATA ZA BAZALNE I SEKRETORNE ĆELIJE TRAHEO-BRONHIJALNOG TRAKTA, NA OSNOVU TRI GRUPE RELEVANTNIH EKSPERIMENTALNIH PODATAKA

Dragoslav Nikezić
Prirodno matematički fakultet Kragujevac
Dušica Vučić
Univerzitet u Nišu,Tehnološki fakultet
Leskovac, Durmitorska 19

1. UVOD

Više od 50% ukupne doze, koju opšta populacija primi od prirodnih radioaktivnih izvora, potiče od inhalacije radona i njegovih kratkoživećih potomaka. Ta apsorbovana doza izrazito je najveća u respiratornom traktu. Da bi se odredio radijacioni rizik za ljudska pluća, neophodno je povezati ekspoziciju (u WLM) i apsorbovanu dozu. Za ovo konvertovanje korišćeno je više različitih dozimetrijskih modela [1], [2], [3]. Ti modeli su dosta složeni i sadrže: geometrijski model traheo-bronhijalnog stabla, model depozicije radonovih potomaka, model čišćenja, nazalnu i oralnu filtraciju, itd. Jedna od uloga ovih modela jeste izračunavanje apsorbovane doze u osetljivim ćelijama respiratornog trakta, po jediničnoj površinskoj aktivnosti, deponovanoj unutar bronhijalnih zidova. Kritična meta su ćelije u bazalnom i sekretornom sloju traheo-bronhijalnog stabla. Apsorbovana doza u ovim slojevima zavisi od više parametara, a jedan od najznačajnijih je debljina sloja epitela. Ovaj parametar, zajedno sa drugim relevantnim veličinama, eksperimentalno su odredili Gastineau [4] i Baldwin [5]. U studiji Gastineau-a, pulmonarni uzorci su se nalazili u parafinu, prethodno pripremljeni za patološka istraživanja. Merenja su

izvršena optičkim mikroskopom, sa uvećanjem 500 puta. Nisu uzimani u obzir starost, pol i istorija pušenja kod pacjenata. Efekat skupljanja je proučavan uporedjivanjem dijametra eritrocita u uzorku i njegovog "fiziološkog" dijametra. Druga, Baldwin-ova studija se zasniva na merenjima na svežim uzorcima pulmonarnog tkiva. Kod merenja bronhijalnog epitela uzeta je veličina Q-10 imaginarnog analitičkog sistema. Dijametar bronhija je odredjivan korišćenjem MOP-Videoplan imaginarnog analitičkog sistema. Izvesne teškoće su bile prisutne kod pripreme preparata, kao i kod odredjinanja efekta skupljanja za vreme preparacije. Za razliku od studije Gastineau-a, studija Baldwin-a uzima u obzir starost, pol i istoriju pušenja pacijenata.

Baldwin et al. su dobili 34 do 50 % manje vrednosti za debljinu sloja epitela. Ova manja debljina epitela podrazumeva manje rastojanje do biološki osetljivog područja, što u njemu može prouzrokovati znatno povećanje apsorbovane doze.

U studiji *"Comparative dosimetry of Radon in mines and homes"* [6], takođe su dati modeli lokacije sekretornih i bazalnih ćelija u bronhijalnom (generacije 1 do 9) i bronhiolarnom epitelu (generacije 10 do 16).

U ovom radu izvršena su izračunavanja apsorbovane doze u slojevima bazalnih i sekretornih ćelija, korišćenjem modela datog u [6], kao i korišćenjem podataka Gastineau-a [4] i Baldwin-a [5].

2. MODEL

U ovom radu je izračunavana apsorbovana doza u slojevima bazalnih i sekretornih ćelija, po jediničnoj površinskoj aktivnosti, koja potiče sa unutrašnje strane bronhijalnih zidova. Ova apsorbovana doza po jediničnoj površinskoj aktivnosti nazvana je, kraće, konverzioni koeficijent. U proračunima je korišćen sledeći model vazdušnih puteva: bronije su predstavljene cilindrom, unutrašnjeg radijusa r i dužine H. Bronhijalni zid se sastoji iz pet slojeva: mukus, cilije, fluidni sloj, sekretorne i bazalne ćelije. Debljine ovih slojeva su označene sa: x_m,x_c,x_f,x_s i x_b, respektivno.

Značajan faktor u određivanju doze je raspodela alfa-emitera u epitelu. U literaturi se nalaze različita usvajanja u pogledu raspodele alfa-emitera u sloju mukusa: Bykhovskii [7] usvaja eksponencijalno smanjivanje aktivnosti alfa-emitera u mukusu, Wise [8] koristi homogenu raspodelu, itd. U ovom radu je usvojeno da su alfa-emiteri homogeno raspoređeni u sloju mukusa.

Alfa čestice, pri prolasku kroz epitel, gube svoju energiju. Vrednost energije, deponovane u ćelijama mete, zavisi od zaustavne moći tkiva za alfa čestice.

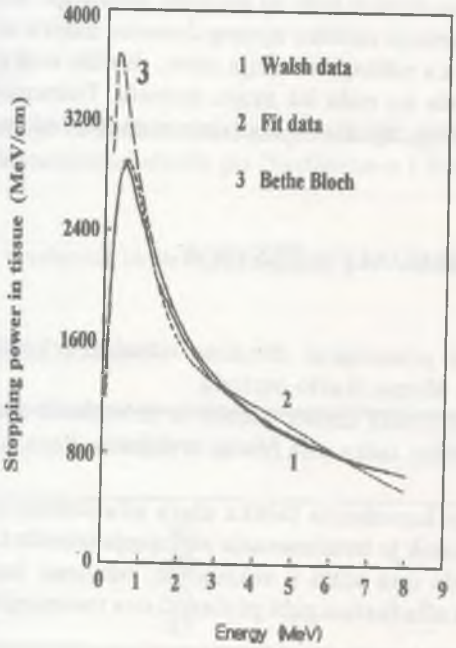
Zaustavna moć teških naelektrisanih čestica u fizičkoj sredini data je Bethe-Bloch-ovom jednačinom. Za slučaj alfa čestica i tkiva kao fizičke sredine, Bethe-Bloch-ova jednačina se može, pogodno, dati u sledećem obliku [9]:

$$-\frac{dE}{dx}=\frac{c_1}{E}\ln(C_2E) \qquad (1)$$

gde su: E kinetička energija alfa čestice,

· C_1 i C_2 konstante, čije su numeričke vrednosti:
C_1=1263 MeV^2/cm i C_2= 7.99 MeV^{-1} (2)

Bethe-Bloch-ov teorijski tretman daje dobro slaganje sa eksperimentom u oblasti velikih brzina i malih naelektrisanja incidentnih čestica. Međutim, u oblasti niskih energija incidentnih čestica, dolazi do odstupanja teorijskih i eksperimentalnih vrednosti za zaustavnu moć. Prihvatljive eksperimentalne podatke o zaustavljanju alfa-čestica u tkivu dao je Walsh [10]. Zaustavna moć alfa čestica na osnovu Walsh-ovih podataka i na osnovu Bethe-Bloch-ovog izraza prikazana je na Slici 1.



Slika 1. Zaustavna moć u mekom tkivu za alfa čestice: 1.Walsh-ovi eksperimentalni podaci; 2.Fitovani podaci; 3.Bethe-Bloch-ova jednačina.

Zaustavna moć u tkivu pokazuje izrazit maksimum ispod energije od 2 MeV. Primetna su odsipanja zaustavne moći, date na osnovu Bethe-Bloch-ovog izraza, od vrednosti koje je Walsh dobio eksperimentalno i to u oblasti niskih energija alfa čestica (ispod 1.5 MeV). Zbog toga smo Walsh-ove eksperimentalne podatke fitovali sledećom formulom:

$$-\frac{dE}{dx}=A_1Ee^{-\alpha_1 E}+A_2Ee^{-\alpha_2 E} \qquad (3)$$

gde su: A_1,A_2, α_1, α_2, konstante koje smo varirali do slaganja sa Walsh-ovim podacima .Rezultati jednačine (3) daju slaganje sa Walsh-ovim podacima više od 95%, u oblasti energija alfa čestica ispod 1.5 MeV, što je, takođe, prikazano na Slici 1.

Merenje zaustavne moći je teže od merenja jonizacije. Kriva, koja predstavlja jonizaciju alfa čestica u funkciji ostatka njenog dometa, naziva se "Bragg-ova kriva". Idući od visokih energija ka nižim, jonizacija raste, dostiže svoj maksimum pre kraja dometa,a zatim oštro pada na nulu na kraju dometa. Pomenuti maksimum je tzv. "Bragg-ov pik" i predstavlja, ujedno, i maksimum zaustavne moći. Bragg-ov pik se jasno uočava na Slici 1.

3. SIMULACIJA ISTORIJE ALFA ČESTICA

U ovom radu je primenjena direktna simulacija kretanja alfa čestica. Pri simuliranju je korišćena Monte Karlo metoda.

Simulacja prolaska alfa čestice sastoji se iz sledećih (uobičajenih) koraka:

i) Uzimanje polazne tačke alfa čestice u sloju mukusa, kao i biranje početnog pravca.

ii) Izračunavanje koordinata tačaka ulaza alfa čestica u slojeve sekretornih i bazalnih ćelija. Sledeći korak je izračunavanje rastojanja između tačke gde je emitovana alfa čestica i tačaka gde ona ulazi u sekretorni, odnosno bazalni sloj. Takođe se izračunava energija koju alfa čestica gubi prolazeći ova rastojanja, i to koristeći sledeću relaciju:

$$\int_0^X dx=X=\int_{E_x}^{E_0}\frac{EdE}{dE/dx} \qquad (4)$$

gde je E_x energija koju alfa čestica, početne energije E_0, ima posle prelaska rastojanja X u tkivu (ili u vazduhu, u slučaju prolaska alfa čestice kroz prostor bronhijalnog cilindra).

iii) Određivanje energije deponovane u sekretornom i bazalnom sloju, kao razlike između ulazne i izlazne energije.

Oko 44 do 48% alfa čestica prolazi kroz vazdušnu šupljinu bronhija, vraća se

u tkivo i doprinosi apsorbovanoj dozi u njemu. Energija, koju te čestice gube kroz vazduh, izračunava se korišćenjem jednačine (1), uz uzimanje numeričkih vrednosti za konstante C_1 i C_2:

$C1 = 1.37\ MeV^2/cm \quad C2 = 6.52\ MeV^{-1}$ (5)

Koraci i), ii), iii) su u ovim izračunavanjima simulirani 10^4 puta. Apsorbovana doza, u posmatranim slojevima, po jednoj emitovanoj alfa čestici, dobija se deljenjem srednje apsorbovane energije po jednoj alfa čestici, sa masom sekretornog i bazalnog sloja. Proizvod apsorbovane doze po jednoj emitovanoj alfa čestici i unutrašnje površine bronhije, daje apsorbovanu dozu po jediničnoj površinskoj aktivnosti unutrašnje površine bronhije. Ovaj redosled simulacija je osnova za kompjuterski program nazvan CCOEF (Conversion coefficient) [11].

4. ULAZNI PODACI

U izračunavanju su korišćene tri grupe ulaznih podataka: raspodela debljina epitela kroz traheo-bronhijalno stablo po Gastineau-u i Baldwin-u,kao i podaci dati u referenci [6].

U Tabeli 1. date su vrednosti za debljine epitela po Gastineau-u i Baldwin-u.

Tabela 1. Debljine epitela u μm.

Bronchus-Generation		Baldwin et al.[1]	Gastineau et al.[2]
Main steam	1	40	80
Lobar	2	39	50
Segmental	3	36	50
Subsegmental	4-16	33	50

Vrednosti za debljinu epitela, u skladu sa referencom [6], su 50 μm za bronhijalni i 15 μm za bronhiolarni region.

Za proračune su bile potrebne i vrednosti za dijametar i dužinu bronhija, kao i za dužinu cilija i debljinu mukusa. One su date u Tabeli 2.

Podaci za dužinu i dijametar bronhija su uzeti po Martin-u i Jacoby-u [12], a oni predstavljaju tzv. Weibel-ov model pluća.

Prema referenci [6], debljina mukusnog gela je 5 μm u bronhijalnom regionu, a 2 μm u bronhiolarnom regionu. Odgovarajuće vrednosti za dužinu cilija su 6 μm i 4 μm, respektivno.

Tabela 2. Dihotomusni Weibel-ov model pluća. Ulazni parametri za program CCOEF. Svi parametri su u μm.

Gen	Bronch	Diam.	Length	Mucous Bald.	Mucous Gast.	Cilia Bald.	Cilia Gast
0	Trache	18000	120000		7.5	6.5	7.5
1	Main	12200	47600	5	7.5	6.4	7.5
2	Lobar	8300	19000	5	7.5	6.3	7.5
3	Lobar	5600	7600	5	7.5	6.0	7.5
4	Segm.	4500	12700	5	7.5	5.8	7.5
5	Segm.	3500	10700	5	7.5	5.8	7.5
6	Segm.	2800	9000	5	7.5	5.6	7.5
7	Intra-	2300	7600	5	7.5	5.6	7.5
8	segme-	1860	6400	5	7.5	5.6	7.5
9	ntal.	1540	5400	5			

5. REZULTATI I DISKUSIJA

Konverzioni koeficijenti za bazalne ćelije

Apsorbovana doza u sloju bazalnih ćelija, po jednoj alfa čestici, emitovanoj sa jedinične unutrašnje bronhijalne površine, dobivena u ovim proračunima, data je u Tabeli 3. (za ^{218}Po) i Tabeli 4. (za ^{214}Po).

Tabela 3. Dozni konverzioni koeficijent za alfa čestice od 6 MeV. Apsorbovana doza u bazalnim ćelijama po jednom raspadu, po jedinici površine, u nGy po raspadu/cm^2.

Gen.	Gastineau	Baldwin	Ref. [3]
1	0	1.9	0.7
2	0	4.2	0.8
3	0.	21.5	0.7
4	0.	22.7	0.8
5	0.	23.9	0.8
6	0.	22.7	0.8
7	0.	21.4	0.8
8	0.	21.1	0.8
9	0.	3.1	0.7

Tabela 4. Dozni konverzioni koeficijent za alfa čestice od 7.69 MeV. Apsorbovana doza u bazalnim ćelijama po jednom raspadu, po jedinici površine, u nGy po raspadu/cm^2.

Gen.	Gastineau	Baldwin	Ref. [3]
1	0	60.7	58.3
2	40.3	87.7	60.2
3	38.6	136.7	69.3
4	37.9	164.	72.2
5	36.2	159.	73.8
6	39.8	164.9	76.5
7	36.9	165.3	78.4
8	36.7	168.7	76.7
9	35.2	168.6	77.7

U Tabelama 3. i 4. prva kolona predstavlja broj generacije, dok su u drugoj, trećoj i četvrtoj koloni dati konverzioni koeficijenti dobiveni na osnovu podataka Gasti- neau-a, Baldwin-a i reference [6], respektivno. Može se videti da je najveća doza dobivena na osnovu podataka Baldwin-a.

Na osnovu podataka Gastineau-a, apsorbovana doza u bazalnom sloju jednaka je nuli, u slučaju ^{218}Po. Razlog ovome leži u činjenici da domet alfa čestica energije 6 MeV iznosi, u tkivu, 48 μm [3], dok je debljina epitela, po Gastineau-u, 50 μm. Ovo je značajno kod izračunavanja apsorbovane doze u T-B stablu, koja potiče od nevezanih frakcija ^{218}Po, a koji se sa velikom verovatnoćom deponuju u respiratornom traktu.

Rezultati dobiveni na osnovu podataka Baldwin-a daju vrednosti od 1.9 do 4 nGy po jednom raspadu po jedinici površine. Značajan je nagli porast vrednosti između treće i četvrte generacije. Posle četvrte generacije, konverzioni koeficijent je, skoro, konstantan.

Korišćenjem podataka iz [6], dobivene su vrednosti oko 0.8 nGy i one ne zavise od broja generacije. Te vrednosti su oko 30 puta manje nego one dobivene na osnovu raspodele Baldwin-a.

Konverzioni koeficijenti za alfa čestice energije 7.69 MeV, koje emituje ^{214}Po, date su u Tabeli 4. Ponovo su vrednosti, dobivene na osnovu podataka Baldwin-a najveće. Konverzioni koeficijent, na osnovu Baldwin-ove raspodele, je najmanji u prvoj generaciji i iznosi oko 60 nGy, zatim se povećava do pete generacije, posle koje varira oko 160 nGy po jednom raspadu po cm^2.

Konverzioni koeficijenti, računati na osnovu podataka iz [6], nalaze se u opsegu od 58 do 78 nGy po jednom raspadu po cm^2, što je za faktor 2 manje nego u slučaju Baldwin-ove raspodele.

Rezultati na osnovu podataka Gastineau-a su 4 puta manji od istih, prema podacima Baldwin-a. Vrednosti se slabo menjaju sa brojem generacije, i iznose od 30 do 40 nGy po jednom raspadu po cm^2.

Upoređujući podatke iz Tabela 3. i 4. može se primetiti da je konverzioni koeficijent znatno veći za alfa čestice energija 7.69 MeV, nego za alfa čestice energija 6 MeV. Korišćenjem podataka Baldwin-a,konverzioni koeficijent je preko 10 puta veći za alfa čestice 7.69 MeV, nego za 6 MeV. Ovo je još izraženije kod rezultata, dobivenih na osnovu podataka iz reference [6], a odnos konverzionih koeficijenata za 7.69 MeV i 6 MeV iznosi oko 100.

Ovi rezultati jasno pokazuju da je rastojanje između izvora alfa čestica i biološki senzitivne mete vrlo bitan faktor. Taj faktor utiče na stvarnu dozu koju primaju bazalne ćelije. To rastojanje zavisi od debljine pojedinih slojeva koji čine bronhijalni zid. One su, ipak, individualna karakteristika. Tako, pojedinci sa manjim debljinama slojeva epitela, mogu primiti znatno veću dozu.

Konverzioni koeficijenti za sekretorne ćelije

U skladu sa [6], sekretorne ćelije su, takođe, osetljive i mogu biti mesto nastanka kancera pluća. Baldwin i Gastineau ne daju debljine slojeva sekretornih ćelija. Ipak,u [6] je data lokacija sekretornih ćelija u bronhijalnom epitelu, kao i struktura slojeva epitela. Tako su konverzioni koeficijenti za sekretorne ćelije izračunavani samo na osnovu podataka iz reference [6]. Rezultati su dati u Tabeli 5.

Tabela 5. Dozni konverzioni koeficijent za alfa čestice od 6 MeV i 7.69 MeV. Apsorbovana doza u sekretornim ćelijama po jednom raspadu po jedinici površine u nGy po raspadu/cm^2.

Generation	6 MeV	7.69 MeV
1	77.8	183.4
2	87.4	185.5
3	93.2	179.7
4	98.3	194.
5	100.5	198.3
6	104.4	200.7
7	104.7	197.9
8	103.5	194.4
9	103.3	195.5

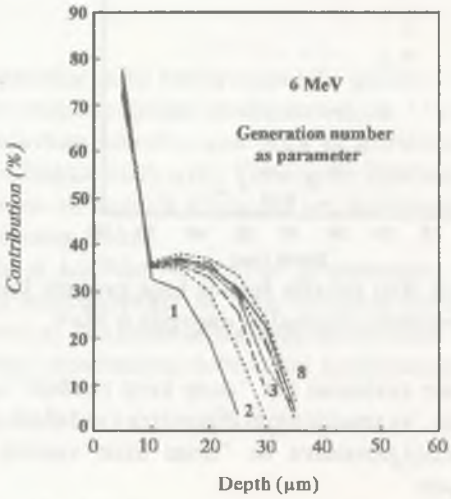
Prva kolona predstavlja broj generacije, a druga i treća daju konverzione koeficijente za 6 MeVodnosno 7.69 MeV.

Konverzioni koeficijent za alfa čestice energija 6 MeV, raste do pete generacije, posle koje je skoro konstantan i iznosi oko 130 nGy po jednom raspadu po cm^2. Za alfa čestice energije 7.69 MeV konverzioni koeficijent je veći za faktor 2 ,nego za 6 MeV. On varira za 10% u prvih 9 generacija T-B stabla.

Promena doze sa dubinom

Rezultati pokazuju da se kriva zavisnosti doze od dubine malo menja sa brojem generacije. Zbog toga su prikazani samo tipični rezultati, dobiveni za prvu generaciju.

Promena doze sa dubinom, ispod površine mukusa, prikazana je na Slici 2.



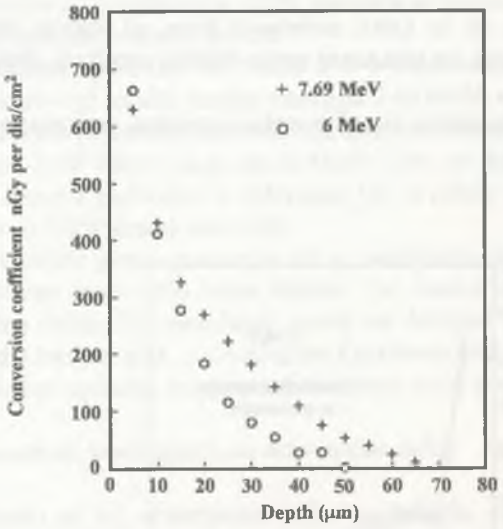
Slika 2. Konverzioni koeficijent u nGy po raspadu po cm^2.

Dobijene krive su za generaciju n=1.

Niža kriva je za alfa čestice energije 6 MeV, dok se viša odnosi na 7.69 MeV. Ove krive se malo menjaju sa brojem generacije i usvojenim debljinama slojeva.

Raspodela doze alfa čestica koje prolaze bronhijalnu šupljinu

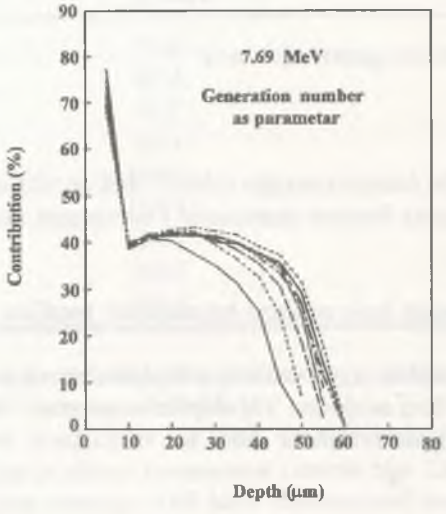
Neke alfa čestice prolaze kroz vazdušnu šupljinu bronhija, vraćaju se u tkivo i doprinose apsorbovanoj dozi u njemu. Taj doprinos (nazvan "doza kroz vazduh"), za alfa čestice od 6 MeV, prikazan je na Slici 3.



Slika 3. Doprinos ukupnoj dozi od alfa čestica koje prolaze kroz vazdušnu šupljinu bronhija, inicijalne energije 6 MeV.

Ova slika prikazuje zavisnost tzv. "doze kroz vazduh" od dubine, sa brojem generacije kao parametrom. Sa smanjenjem dijametra vazdušnih puteva (što odgovara povećanju broja generacije),povećava se "doza kroz vazduh". Ove alfa ćestice doprinose dozi iznad 35 μm.

"Doza kroz vazduh" za alfa čestice energije 7.69 MeV prikazana je na Slici 4.



Slika 4. Doprinos ukupnoj dozi od alfa čestica koje prolaze kroz vazdušnu šupljinu bronhija, inicijalne energije 7.69 MeV.

Doprinos je najveći u prvom, površinskom, sloju bronhijalnog zida, i iznosi oko 70%. Nakon toga dolazi ravni deo do dubine 40 μm. Dužina ravnog dela se povećava sa smanjenjem dijametra bronhije.

Ovi rezultati ukazuju na dve stvari:

a) neophodno je u proračunima uzeti u obzir alfa čestice koje prolaze kroz vazdušnu šupljinu. Zanemarivanje ovih čestica može dati manje vrednosti doze koju primaju senzitivne ćelije;

b) bronhije se moraju posmatrati kao cilindar. Neki modeli zanemaruju postojanje krivine cilindra, što može kao pristup biti nepodesno.

6. ZAKLJUČCI

Rastojanje izmedju tačke emitovanja alfa čestice i ćelija meta je vrlo kritičan parametar, na osnovu koga se, zatim, izračunava doza. U ovom radu je, u nameri da se to pokaže, izračunavana apsorbovana doza uz korišćenje raspodele Baldwin-a i Gastineau-a, kao i podataka datih u [6]. Primenom Baldwin-ove raspodele u modelu ljudskih pluća, dobivene su najveće vrednosti pri izračunavanju apsorbovane doze u T-B regionu respiratornog trakta.

U ovom radu je korišćen Weibel-ov geometrijski model T-B stabla. Pored ovog, sprovedena su izračunavanja sa Yeh-Schum-ovim modelom, za podatke po Gastineau-u i Baldwin-u. Pokazalo se da ovaj model daje rezultate za apsorbovanu dozu, koji su vrlo slični rezultatima dobivenim korišćenjem Weibel-ovog modela.

REFERENCE

1. James, A.C. *Dosimetric approaches to risk assessment for indoor exposure to radon daughters.* Radiat. Prot. Dosim. 7,353-366 (1984)
2. Harley, N.H. *Comparing radon daughter dose: Environmental versus underground exposure.* Radiat. Prot. Dosim.7,371-375, (1984)
3. Hofmann, W. *Lung cancer induction by inhaled radon daughters- What is relevant dose?.* Radiat. Prot. Dosim. 7,367-370, (1984)
4. Gastineau, M.R., Walsh, J.P., Underwood,N. *Thickness of bronchial epithelium relation to exposure to radon.* Health Phys. 23,857-860 (1972).
5. Baldwin, F., Hovey, A., McEven, T., O´Connor, R., Unruh, H., Bowden, D.H. *Surface to nuclear distances in human bronchial epithelium: relationships to penetration by Rn daughters.* Health Phys. 60,155-162 (1991).
6. Comparative dosimetry of Radon in mines and homes, National Academy Press, Washington, D.C. 1991
7. Bykhovskii, A.V., Khachirov, G.Dzh., Shishkanov, G.N., Dubrovin, A.S., Klyuch E.V. *Dose to the epithelium of the upper respiratory tract from radon and its daughter products.* Health Phys. 23,13-22 (1972),
8. Wise, N.K. *Dose conversion factors for radon daughters in underground and open-cut mine atmospheres.* Health Phys. 43,53-64 (1982).
9. Harley, N.H., Pasternack, B.S. *Alpha absorption measurements applied to lung dose from radon daughters.* Health Phys. 23,771-782 (1972).

10. Walsh, J.P. *Stopping power and range of alpha particles.* Health Phys. 19,312-316 (1970).
11. Nikezić, D. *Doprinos experimentalnom i teorijskom proučavanju ozračenosti stanovništva i pojedinaca u zatvorenim prostorijamam.* Universitet u Kragujevcu, Kragujevac, Yugoslavia, Doctorska teza (1990).
12. Martin, D., Jacoby, W. *Diffusion deposition of small-sized particles in the bronchial tree.* Health Phys. 23. 23-29 (1972)

IZRAČUNAVANJE KONVERZIONIH KOEFICIJENATA ZA BAZALNE I SEKRETORNE ĆELIJE TRAHEO-BRONHIJALNOG TRAKTA, NA OSNOVU TRI GRUPE RELEVANTNIH EKSPERIMENTALNIH PODATAKA

Dragoslav Nikezić i Dušica Vučić

Rezime:

Kratkoživeći radonovi potomci se kontinualno deponuju u gornjem delu traheo-bronhijalnog stabla. Oni emituju alfa čestice čijem su dejstvu izložene osetljive ćelije u epitelu bronhijalnig zida. U ovom radu su prikazani rezultati izračunavanja apsorbovane doze u slojevima bazalnih i sekratornih ćelija traheo-bronhijalnog regiona. Proračuni su sprovedeni za tri grupe relevantnih eksperimentalnih podataka [4],[5] i [6]. U proračunima ja korišćena Monte Karlo metoda. Procenjen je i doprinos dozi od alfa čestica koje prolaze kroz vazdušnu šupljinu bronhija. Takođe je određena promena doze sa dubinom tkiva.

Ključne reči: Radon, absorbovana doza, traheo-bronhijalno stablo

DOSE ABSORBED IN THE BASAL AND SECRETORY CELLS OF THE TRACHEO-BRONCHIAL TREE, DUE TO THE UNIT BRONCHUS INNER SURFACE ACTIVITY

Dragoslav Nikezić, Dušica Vučić

Abstract

Short lived radon daughters are deposited continuously in the upper part of a tracheo-bronchial tree. They emit alpha particles which expose a sensitive cells in the epithel of the bronchi wall. The results of the absorbed dose calculations in the layers of basal and secretory cells of tracheo-bronchial regions, per unit surface activity are given in this paper. Calculation has been done for three sets of relevant experimental data [4],[5],[6]. Monte Carlo method was used for these calculations. Contribution of the alpha particles which cross the air cavity in bronchi was estimated.

Key words: Radon, absorbed dose, tracheo bronchial tree.

30.

PRIRODNI RADIONUKLIDI U HRANI

Ivana S. Đujić
Institut za hemiju, tehnologiju i metalurgiju - Centar za hemiju,
Njegoševa 12, 11000 Beograd

1. UVOD

Nastanak i razvoj života na zemlji je nezamisliv bez jonizujućeg zračenja prirodnog porekla. Telo prosečnog čoveka je svakog sata izloženo eksternom zračenju od oko 500.000 čestica kosmičkog porekla i 200.000.000 γ-kvanta emitovanih od strane prirodnih radionuklida zemaljskog porekla. Interna ekspozicija tkiva od oko 15 miliona dezintegracija ^{40}K, β i γ zracima i pluća od nekoliko desetina hiljada dezintegracija produkata raspada Rn se odigrava svakog sata. Više od 50 % ukupne godišnje doze od 2 mSv potiče od potomaka Rn akumuliranih u plućima, a manje od 50% od kosmičkih čestica, zemljinog γ-zračenja i ishrane.

Količina prirodnih radionuklida u životnoj sredini, iako ekstremno mala, u poređenju sa količinom tragova stabilnih elemenata, je zbog velike toksičnosti značajna (^{210}Pb je 20 x 10^6 puta toksičnije od svog stabilnog potomka ^{206}Pb). Međutim, zbog "malog" faktora apsorbcije i doprinosa ukupnoj prirodnoj radioaktivnosti, opasnost od unošenja radionuklida prirodnih nizova radioaktivnog raspada preko gastro-intestinalnog trakta je kod ljudi dugo bila zanemarivana (1). Novija ispitivanja su pokazala da je apsorbcija prirodnih radionuklida preko gastrointestinalnog trakta kod novorođenčadi i mladih 10 - 20 puta veća nego kod odraslih kao i da su, zahvaljujući tehnološkom razvoju, količine deponovanih radionuklida u tkivima ljudi danas 100 - 500 puta veće nego pre 5000 godina.

Merenja prirodnih radionuklida u životnoj sredini i ispitivanja njihovog metabolizma su i ranije bila koristan izvor informacija o ponašanju nekih stabilnih elemenata i analog za ispitivanja proizvedenih radionuklida. Danas se merenja prirodnih radionuklida u čoveku i životnoj sredini koriste kao osnovni standardi za procenu: 1) uticaja rasutih proizvedenih radionuklida u životnoj sredini na radijacionu dozu globalne populacije i 2) profesionalne ekspozicije.

Najveći deo ispitivanja prirodnih radionuklida u hrani se i danas odnosi na ^{40}K, koji je najvažniji prirodan radionuklid. Njegova koncentracija u pojedinim uzorcima hrane je veća od 1 kBq/ kg, a specifična aktivnost u organizmu, zbog konstantnog izotopskog odnosa i samoregulacije, praktično je konstantna. Učešće ^{40}K u dozi koja potiče od prirodnih radionuklida u hrani je za neke oblasti oko 80%. Doprinos drugih izotopa dozi je mnogo manji ali je toksičnost veća. Tako je tipičan dnevni unos ^{226}Ra samo nekoliko desetih delova Bq, a odgovarajuća godišnja doza 20-30 μSv.

Broj podataka o sadržaju radionuklida uranovog, torijumovog i aktinijumovog niza u namirnicama i ishrani je mali, a postojeći rezultati se teško mogu iskoristiti za utvrđivanje njihovih odnosa u drugim geografskim oblastima. Posledica ovakvog načina i obima ispitivanja su mnogo lošije definisani poremećaji u količini prirodnih radionuklida kod biljaka, životinja i ljudi, kao i njihova toksičnost, u poređenju sa mikroelementima.

Kako, pod različitim okolnostima, otpadne materije i prateći proizvodi industrije urana i fosfata mogu da zagade životnu sredinu prirodnim radionuklidima uranovog i torijumovog niza u tom stepenu da postaju realni ili potencijalni rizik po zdravlje ljudi, potrebno je da znamo efekte njihovog hroničnog unošenja na organizam ljudi i internu dozu zračenja.

Sve navedeno ukazuje da je znanje o sadržaju prirodnih radionuklida u hrani neophodno, kako sa nutritivnog i medicinskog gledišta, tako i sa gledišta radijacione zaštite . Cilj ovog istraživanja bio je da se dobiju podaci o sadržaju ^{40}K, ^{238}U, ^{226}Ra, ^{230}Th i ^{232}Th u namirnicama iz Srbije, i na osnovu podataka o prosečnom dnevnom unosu pojedinih namirnica, utvrdi približno njihov dnevni unos.

2.MATERIJAL I METODE

U perodu 1984-1992 sakupljani su uzorci raznih namirnica u Srbiji. Posle homogenizovanja i pulovanja u zbirnim uzorcima namirnica, koji ne predstavljaju celokupnu nacionalnu proizvodnju, određeni su prirodni radionuklidi. Tako su dobijene prve informacije o količini ^{40}K, u namirnicama iz Srbije. Kasnije, tokom 1991 - 1992 godine, u Srbiji su sakupljani prema protokolu podgrupe za tragove elemenata u hrani FAO organizacije (2) uzorci pšeničnog i kukuruznog brašna, krompira, mleka, goveđeg i svinjskog mesa (Tabela 1.) od kojih su, posle homogenizovanja i pulovanja, formirani nacionalni reprezentativni uzorci navedenih namirnica.

U svim uzorcima je aktivnost ^{40}K određivana direktno sa Ge(LI) detektorom na 4096 kanalnom γ-spektrometru i izrtačunavana iz atomskom apsorbcionom spektrometrijom (AAS) izmerene vrednosti stabilanog kalijuma ali su, zbog niže granice detekcije, prikazani samo rezultati dobijeni AAS merenjima.

Tabela 1. Protokol uzorkovanja namirnica za dobijanje nacionalnih reprezentativnih uzoraka

Mesto uzimanja uzoraka	Broj uzoraka		
	Vojvodina	Centralna Srbija	Kosovo
Pšenično brašno			
Mlin	108	92	4
Maloprodaja	52	43	7
Kukuruzno brašno			
Mlin	46	94	10
Maloprodaja	20	68	4
Krompir			
Maloprodaja	14	56	6
Mleko			
Mlekara	60	150	30
Maloprodaja	32	76	14
Govođe meso			
Klanica	42	48	4
Maloprodaja	19	23	6
Svinjsko meso			
Klanica	46	53	1
Maloprodaja	34	48	-

U odmerenu masu dehidriranih uzoraka namirnica (100 - 500 g) za analizu ^{238}U, ^{226}Ra, ^{230}Th i ^{232}Th je pre žarenja dodata poznata količina rastvora trasera ^{133}Ba, ^{229}Th, ^{232}U i ^{225}Ra. Uzorci su žareni pri 400 - 500 °C preko noći i kompletno razloženi sa HNO_3-H_2O_2-$HClO_4$. Ostatak je rastvoren u 6M HCl i ekstrahovan U i Fe sa Alumine-336 (3). Posle reekstrakcije iz organske faze je uklonjeno Fe Hg-katodnom elektrolizom, a U istaložen sa Ce kao fluorid (4) i na α–spektrometru merena njegova aktivnost.

Iz rastvora zaostalog posle odvajanja urana je zatim istaložen Th kao kiseo kalcijumoksalat sa Ca. Talog sa Th je ispran sa HNO_3, rastvoren u 8M HNO_3 i iz rastvora ekstrahovan. sa Aliquot-336 (5). Izdvojen Th je zatim reekstrahovan, istaložen sa CeF_3 i merena njegova aktivnost na α-spektrometru.

Iz rastvora zaostao posle izdvajanja Th je na kraju izdvojen i Ra sa Ba kao sulfat i u platinskom sudu stopljen sa smešom Na_2CO_3 i K_2CO_3. Posle rastvaranja u destilovanoj vodi i filtriranja iz stopljene mase je izdvojen zaostao $BaCO_3$, rastvoren u 4 M HCl i rastvor uparen do suva. Ostatak je rastvoren u 0.05 M cikloheksandiamin-tetrasirćetnoj kiselini, propušten kroz katjonsku kolonu i sa 3M HNO_3 eluiran Ra elektro-deponovan na srebrni disk. Aktivnost ovako pripremljenog izvore je posle 2 nedelje merena na α-spektrometru (6).

Za dobijanje informacije o prosečnom dnevnom unosu pojedinih namirnica i izračunavanje dnevnog unosa pojedinih namirnica sa hranom u Srbiji uzeti

su rezultati dobijeni anketom o utrošenoj količini artikala lične potrošnje u domaćinstvima" za 1991 godinu (7).

3. REZULTATI I DISKUSIJA

U tabelama 2 - 6 su za ispitivane namirnice dati podaci o dnevnoj potrošnji, izmerenom sadržaju ^{40}K, ^{238}U, ^{226}Ra, ^{230}Th i ^{232}Th i izračunatom dnevnom unosu navedenih prirodnih radionuklida.

Podaci dobijeni za prosečan dnevni unos pojedinih namirnica u Srbiji za 1991 godinu se značajno razlikuju od podataka dobijenih za 1971 godinu (8), kao i od podataka iznetih za druge zemlje (9, 10). Glavni uzroci razlika u ishrani između naše populacije i populacije drugih zemalja su; struktura ishrane, navike u ishrani i način života. Podaci o prosečnom dnevnom unosu hrane za 1971 i 1991 godinu u Srbiji jasno pokazuju da je, u navedenom periodu, došlo do promene navika u ishrani i potrošnji pojedinih kategorija hrane.

Sve navedeno ukazuje da je za donošenje regulative u oblasti ishrane, procenu zdravstvenog rizika i radiološku zaštitu stanovništva neophodno dobro poznavanje strukture ishrane, navika i varijacija u ishrani koje su posledica mesta stanovanja, karakteristika životne sredine, starosti, pola, standarda, načina života i niza drugih faktora.

3.1. Dnevni unos ^{40}K

Od prirodnih radionuklida jedino se ^{40}K smatra esencijalnim jer ulazi u sastav čovekovog organizma i nalazi se pod homeostatskom kontrolom. U prirodi ^{40}K se nalazi u smeši sa stabilnim izotopima kalijuma ^{39}K i ^{41}K (^{39}K - 93.08%, ^{40}K - 0.0119% i ^{41}K - 6.9%). Fizičko vreme poluraspada ^{40}K je 1.26×10^9 godina, a biološko vreme poluraspada od 58 dana. Metabolizam rdioaktivnog izotopa kalijuma je isti kao i stabilnih izotopa.

Rezultati analize ispitivanih uzoraka namirnica iz Srbije na sadržaj ^{40}K su pokazali da se najveće količine kalijuma nalaze u spanaću (245.0 Bq/kg), orahu (185.2 Bq/kg) i pasulju (148.3 Bq/kg), kao i da su mrkva, iznutrice, meso, morska riba, kruške i kukuruzno brašno namirnice sa visokim sadržajem ^{40}K. (>100 Bq/kg). Prosečan dnevni unos ^{40}K sa pojedinim grupama namirnica, izračunat na osnovu dobijenih vrednosti za potrošnju namirnica u 1991 godini i njegovu aktivnost u njima, bio je za: voće - 5.4 Bq, žitarice - 20.2 Bq, meso. riba i jaja - 16.2, mlečne proizvode - 13.8 Bq, povrće - 22.8 Bq i alkoholna pića - 1.71 Bq. Ukupan dnevni unos ^{40}K preko navedenih namirnica bio je (78.1 Bq), samo 10% niži od svetskog proseka (85 Bq) (11). Međutim, kako ispitivanjem nisu obuhvaćene sve namirnice čija godišnja potrošnja prelazi 1 kg, a među njima ima i namirnica sa značajnim sadržajem kalijuma. to je ukupni dnevni unos ^{40}K u Srbiji preko hrane sigurno veći od svetskog proseka.

Analiza doprinosa pojedinih kategorija namirnica dnevnom unosu ^{40}K u Srbiji je pokazala da je kod nas, kao i kod stanovnika Njujorka, glavni izvor kalijuma povrće, kao i da postoje velike razlike u doprinosu voća i ostalih kategorija namirnica dnevnom unosu ^{40}K između stanovnika Njujorka i Srbije (Tabela 9).

Tabela 2. Prosečni dnevni unos ^{40}K u Srbiji

Namirnica	Potrošnja g/dan	Sadržaj ^{40}K Bq/kg	Unos ^{40}K Bq/kg
Mlečni proizvodi			
kravlje mleko*	270.4	44.7±6.27	12.08
beli sir	27.9	31.6±1.45	0.88
tvrdi sir	3.6	29.3±1.16	0.11
Jaja	22.2	31.3	0.69
Meso i proizvodi od mesa			
svinjsko*	48.2	103.4±8.16	4.98
govede*	26.8	92.4±6.24	2.48
živinsko	32.1	93.3±4.70	2.99
jagnjeće	8.5	76.5	0.65
iznutrice	1.9	122.9	0.23
salame	13.7	84.5	1.15
suvo meso	12.6	168.7	2.13
Riba			
rečna	8.8	79.3	0.70
morska	1.9	117.4±8.46	0.22
Žitarice			
hleb	221.3	55.3	12.24
brašno pšnično*	194.8	26.3±1.82	5.23
brašno kukuruzno*	24.1	105.7±3.05	2.55
Povrće			
krompir*	92.1	109.2±10.85	10.06
pasulj	17.8	148.3±10.20	2.64
crni i beli luk	15.3	74.3±5.20	1.14
mrkva	9.3	125.6	1.17
kupus	41.6	73.6	3.06
spanać	0.5	245.0	0.12
paradajz	35.1	71.3	2.50
paprika	29.9	68.6	2.05
krastavac	-	72.4	-
zelena salata	0.4	42.6	0.02
boranija	0.9	64.4	0.06
Voće			
jabuke	38.6	23.1	0.89
kruške	9.9	109.4	1.08
jagode	-	48.4	-
trešnje	1.4	44.2	0.06
višnje	1.4	51.8	0.07
kajsije i breskve	0.4	59.2	0.02
šljive	0.3	65.5	0.02
lubenice i dinje	23.6	70.4	1.66
grožđe	9.4	39.3	0.37
orah	0.3	185.2	0.06
Piće			
vino	15.1	18.0	0.27
pivo	48.2	14.4	0.69
rakija	15.3	49.3	0.75

* nacionalni reprezentativni uzorci namirnica sakupljeni 1991-1992 godine

Tabela 3. Prosečan dnevni unos ^{238}U u Srbiji

Namirnica	Potrošnja g/dan	Sadržaj 238U Bq/kg	Unos 238U Bq/kg
Mlečni proizvodi			
kravlje mleko*	270.4	0.55±0.11	0.149
beli sir	27.9	0.64±0.19	0.018
tvrdi sir	3.6	0.93±0.16	<0.001
Jaja	22.2	2.44	0.054
Meso i proizvodi od mesa			
svinjsko*	48.2	2.00±0.11	0.096
govede*	26.8	2.16±0.15	0.058
živinsko	32.1	5.68±0.37	0.182
jagnjeće	8.5	3.25	0.028
iznutrice	1.9	16.34	0.031
salame	13.7	24.50	0.336
suvo meso	12.6	8.14	0.103
Riba			
rečna	8.8	7.31	0.064
morska	1.9	11.97±0.74	0.023
Žitarice			
hleb	221.3	19.35	4.282
brašno pšnično*	194.8	4.22±0.37	0.822
brašno kukuruzno*	24.1	5.37±0.43	0.129
Povrće			
krompir*	92.1	0.72±0.06	0.066
pasulj	17.8	23.68+2.42	0.422
crni i beli luk	15.3	49.35±2.34	0.755
mrkva	9.3	5.80	0.054
kupus	41.6	94.70	3.940
spanać	0.5	20.25	0.010
paradajz	35.1	3.40	0.119
paprika	29.9	<1.00	
krastavac	-	<1.00	--
zelena salata	0.4	34.25	0.014
boranija	0.9	2.18	<0.001
Voće			
jabuke	38.6	1.34	0.052
kruške	9.9	2.40	0.024
jagode	-	11.34	-
trešnje	1.4	4.20	<0.005
višnje	1.4	7.32	0.010
kajsije i breskve	0.4	2.03	<0.001
šljive	0.3	1.50	<0.001
lubenice i dinje	23.6	3.64	0.086
grožđe	9.4	<1.00	
orah	0.3	234.20	0.070
Piće			
vino	15.1	1.80	0.027
pivo	48.2	1.38	0.067
rakija	15.3	25.13	0.384

* nacionalni reprezentativni uzorci namirnica sakupljeni 1991-1992 godine

Tabela 4. Prosečan dnevni unos ^{226}Ra u Srbiji

Namirnica	Potrošnja g/din	Sadržaj ^{226}Ra mBq/kg	Unos ^{226}Ra mBq/kg
Mlečni proizvodi			
kravlje mleko*	270.4	4.3±0.19	1.174
beli sir	27.9	4.5±0.09	0.125
tvrdi sir	3.6	6.3±0.24	0.140
Jaja	22.2	68.3	1.516
Meso i proizvodi od mesa			
svinjsko*	48.2	1.7±0.1	0.082
goveđe*	26.8	1.6±0.1	0.043
živinsko	32.1	22.6±0.8	0.725
jagnjeće	8.5	19.4	0.165
iznutrice	1.9	36.2	0.069
salame	13.7	38.4	0.526
suvo meso	12.6	10.2	0.129
Riba			
rečna	8.8	12.4	0.109
morska	1.9	19.3	0.037
Žitarice			
hleb	221.3	61.5	13.610
brašno pšnično*	194.8	73.4±2.4	14.298
brašno kukuruzno*	24.1	82.5±3.3	1.988
Povrće			
krompir*	92.1	4.7±0.2	0.433
pasulj	17.8	47.8±3.6	0.851
crni i beli luk	15.3	105.0±2.34	1.606
mrkva	9.3	11.5	0.107
kupus	41.6	286.0	11.898
spanać	0.5	102.3	0.051
paradajz	35.1	11.6	0.407
paprika	29.9	2.9	0.087
krastavac	-	3.7	-
zelena salata	0.4	63.6	0.025
boranija	0.9	7.2	<0.001
Voće			
jabuke	38.6	11.9	0.459
kruške	9.9	17.8	0.176
jagode	-	41.3	-
trešnje	1.4	24.3	0.034
višnje	1.4	36.4	0.051
kajsije i breskve	0.4	17.3	0.007
šljive	0.3	5.6	0.002
lubenice i dinje	23.6	9.4	0.222
grožđe	9.4	2.7	0.025
orah	0.3	367.5	0.110
Pića			
vino	15.1	12.4	0.187
pivo	48.2	5.3	0.255
rakija	15.3	130.0	1.989

* nacionalni reprezentativni uzorci namirnica sakupljeni 1991-1992 godine

Tabela 5. Prosečan dnevni unos ^{230}Th u Srbiji

Namirnica	Potrošnja g/dan	Sadržaj 230Th mBq/kg	Unos 230Th mBq/dan
Mlečni proizvodi			
kravlje mleko*	270.4	0.32±0.05	0.087
beli sir	27.9	0.36±0.04	0.010
tvrdi sir	3.6	0.78±0.06	<0.003
Jaja	22.2	0.83	0.018
Meso i proizvodi od mesa			
svinjsko*	48.2	2.20±0.10	0.106
goveđe*	26.8	2.50±0.09	0.067
živinsko	32.1	0.40±0.03	0.013
jagnjeće	8.5	-	-
iznutrice	1.9	-	-
salame	13.7	-	-
suvo meso	12.6	-	-
Riba rečna	8.8	1.21	0.011
morska	1.9	1.48±0.09	0.003
Žitarice			
hleb	221.3	8.4	1.858
brašno pšnično*	194.8	4.80±0.29	0.935
brašno kukuruzno*	24.1	5.37±0.32	0.129
Povrće			
krompir*	92.1	0.14±0.02	0.013
pasulj	17.8	24.2±1.76	0.431

Tabela 6. Prosečan dnevni unos ^{232}Th u Srbiji

Namirmca	Potrošnja 232Th g/dan	Sadržaj 232Th mBq/kg	Unos 232Th mBq/dan
Mlečni proizvodi			
kravlje mleko*	270.4	0.2±0.03	0.054
beli sir	27.9	0.3±0.03	0.008
tvrdi sir	3.6	0.3±0.02	0.001
Jaja	22.2	0.15	0.003
Meso i proizvodi od mesa			
svinjsko*	48.2	1.7±0.05	0.048
goveđe*	26.8	1.8±0.09	0.050
živinsko	32.1	0.2±0.03	0.006
jagnjeće	8.5	-	-
iznutrice	1.9	-	-
salame	13.7	-	-
suvo meso	12.6	-	-
Riba			
rečna	8.8	1.4	0.012
morska	1.9	1.9±0.07	0.004
Žitarice			
hleb	221.3	2.6	0.575
brašno pšnično*	194.8	3.4±0.09	0.662
brašno kukuruzno*	24.1	3.1±0.14	0.075
Povrće			
krompir*	92.1	0.05±0.003	0.005
pasulj	17.8	14.3±0.12	0.254

* nacionalni reprezentativni uzorci namirnica sakupljeni 1991-1992 godine

3.2 Dnevni unos ^{238}U

Uran se u prirodi nalazi kao smeša izotopa $^{238,235,234}U$ (odnos masa 99.27 %, 0.72 % i 0.0057 %). Izotopi urana ^{238}U i ^{235}U su roditelji radioaktivnih nizova urana i aktino-urana, a ^{234}U uran nastaje radioaktivnim raspadom ^{238}U i u ravnoteži je sa njim. U organizmu U se, bez obzira na hemijski oblik i vreme akutne izloženost, ponaša kao toksikant jer deluje kao izvor jonizujućeg zračenja, a može da deluje i kao hemijski toksični element. Fizičko vreme poluraspada U je 4.51×10^9 godina a biološko vreme od 1 - 500 dana (zavisno od pokretljivosti jedinjenja urana).

Ispitivanja sadržaja U u hrani iz raznih delova sveta su pokazala da postoje velike varijacije u količini U, ali i da su prirodni odnosi koji postoje između pojedinih izotopa uglavnom očuvani (^{235}U - ^{238}U i dr) (12).

Naši rezultati analize ^{238}U u namirnicama iz Srbije (Tabela 3) su pokazali da orah sadrži najviše urana - 234 mBq/kg, zatim slede kupus - 94.7 mBq/kg, luk - 49.3 mBq/kg, zelena salata - 34.25 mBq/kg. pasulj - 23.68 mBq/kg i druge namirnice sa nižim sadržajem urana. Vrednost izračunata, na osnovu navedenih podataka, za ukupan dnevni unos ^{238}U - 12.48 mBq odgovara vrednostima datim za Francusku, Englesku (Tabela 7) i SAD (Tabela 9). Prosečnom dnevnom unosu ^{238}U u Srbiji najviše su doprineli povrće (5.4 mBq ili 43 %) i žitarice (5.2 mBq ili 42 %). Kod stanovnika Njujorka doprinos povrća i žitarica prosečnom dnevnom unosu ^{238}U je manji, ali je zato doprinos mesa, riba i jaja veliki (41 %) (Tabela 9).

Tabela 7. Dnevni unos ^{238}U u nekim zemljama (14)

Zemlja	mBq/dan
Evropa	
Francuska	12
Z.Nemačka	30
SSSR	45
Engleska	12
Srbija	12
Azija	
Japan	11-60
Severna Amerika	
SAD	15-17

3.3. Dnevni unos ^{226}Ra

^{226}Ra je potomak ^{238}U. Zbog fizičkog vremena poluraspada od 1600 godina, velike hemijske aktivnosti, malog stepena eliminacije iz organizma (potrebno je od 7 - 45 godina da se eliminiše polovina od unete količine ^{226}Ra iz organizma) sa godinama se njegova količina u organizmu povećava (13).

Analiza ^{226}Ra u namirnicama iz Srbiji je pokazali da orah - 367.5 mBq/kg i kupus - 286.0 mBq/kg sadrže najviše radijuma. Niži sadržaj ^{226}Ra imaju luk, spanać, rakija i žitarice (od 61.5 -130 mBq/kg) i druge namirnice.

Ukupnom dnevnom unosu ^{226}Ra kod stanovnika Srbije su na osnovu dobijenih rezultata najviše doprinele žitarice (29.9 mBq/kg ili 57.2 %) i povrće (15.47 mBq/kg ili 29.6 %). Dobijeni rezultati za doprinos su u saglasnosti sa doprinosom žitarica i povrća kod stanovnika Njujorka (Tabela 9).

Prosečni dnevni unos ^{226}Ra u Srbiji sa namirnicama je 52.3 mBq i odgovara prosečnom unosu ^{226}Ra u drugim zemljama (Tabela 8).

Tabela 8. Dnevni unos ^{226}Ra u nekim zemljama (14)

Zemlja	mBq/dan
Evropa	
Belgija	44
Čehoslovačka	110
Francuska	37-52
Italija	30-52
Holandija	74
Poljska	22
Z.Nemačka	110
Engleska	30-44
Srbija	54
Azija	
Kina	3-89
Indija	24-140
Japan	40
Severna Amerika	
SAD	27-67
Porto Riko	25
Južna Amerika	
Argentina	26
Brazil	110

3.4. Dnevni unos ^{230}Th

Podataka o količinama ^{230}Th koji je kao i ^{226}Ra potomak ^{238}U u organizmu i njegovoj distribuciji ima malo. Oni ukazuju da su glavno mesto deponovanja ^{230}Th kosti (69 - 75 %,) i pluća (11 - 13 %) (12). Naši, iako nepotpuni, rezultati određivanja sadržaja ^{230}Th u pojedinim namirnicanama i mernja njegovog prosečnog dnevnog unosu su pokazali da je doprinos žitarica ukupnoj dnevnoj dozi veći (62.3 % ili 1,3

mBq) nego kod stanovnika Njujorka (32 % ukupnog dnevnog unosa) (Tabela 5). Doprinos povrća prosećnom dnevnom unosu ^{230}Th je kod stanovnika Njujorka veći (50 %) nego u Srbiji (22 % ili 0.44 mBq) (Tabela 9).

Izračunat dnevni unos ^{230}Th sa analiziranim namirnicama je u Srbiji bio 2 mBq, 3 puta manji nego kod stanovnika Njujorka.

3.5. Dnevni unos ^{232}Th

^{232}Th je najznačajniji član torijumovog niza radioaktivnog raspada. Fizičko vreme poluraspada ^{232}Th je 1.6 x 10 ^{10} godina. Glavna mesta deponovanja ^{232}Th su kosti, pluća i jetra. Od ispitivanih namirnica pasulj ima najvišeje ^{232}Th (14.3 mBq/kg), prva sledeća grupa namirnica začajna po sadržaju ^{232}Th su žitarice, koje imaju 4 - 5 puta manje torijuma od pasulja i na kraju meso (Tabela 6). U prosečnom dnevnom unosu ^{232}Th sa hranom u Srbiji najviše doprinose žitarice (74.7 %) i povrće (14.7 %), a kod stanovnika Njujorka povrće (65 %), žitarice (15 %) i meso, ribe i jaja (14 %).

Prosečan dnevni unos ^{232}Th sa hranom u Srbiji je za 50 % niži nego kod stanovnika Njujorka (Tabela 9).

Tabela 9. Doprinos glavnih kategorija namirnica dnevnom unosu prirodnih radionuklida kod stanovnika Njujorka (NY) [11, 14] i Srbije(S)

% dnevnog unosa										
Kategorija	^{40}K		^{238}U		^{230}Th		^{232}Th		^{226}Ra	
	NY	S	NY	S	NY	S	NY	S	NY	S
Voće	24.4	5.4	3	5	1	-	1	-	19	3
Žitarice	8.5	25.6	29	42	32	62	17	75	43	57
Meso,riba, jaja	16.9	20.8	41	8	14	11	14	7	12	7
Mlečni proizv	21.9	16.7	3	2	3	5	3	3	6	3
Povrće	29.1	29.2	24	43	50	22	65	15	20	30
Dnevni unos, mBq	130*	78.1*	15.9	12.5	6.25	2.01	4.15	1.76	51.8	52.3

Reference:

1. United Nations Scientific Comittee on the Effects of Atomic Radiation (UNCEAR), 1966, 21st Session, Suppl. No.14 (A/6314, United Nations, New York.
2. Koumpulainen J., Protocol for the 1986-1988 activities of the FAO European Cooperative Network on trace elements Sub-network E. Trace Element Status in Food. Agricultural Research Center of Finland, 31600 Jokoinonen, Finland 1985.
3. Fisenne I.M.., Perry P.M., Welford G.A., Determination of Uranium isotopes in Human Bone Esh, Anal. Chem. 52,777-779, 1980.
4. Sill C.W., Williams R.L., 1961, Preparation of actinides for alpha spectrometry without electrodeposition, Anal. Chem. 53, 412-415, 1981.
5. Fisenne I.M.., Perry P.M., Determination of Plutonium in Tissues by Alyquat-336 extraction, Radiochem. Radioanal. Lett. 33,259-264, 1978.
6. Yamamoto M., Kawamura H., Igarashi Y., Shiraishi K., Ueno K., Measurement of low-level ^{226}Ra in human bone by using ^{225}Ra tracer and alpha spectrometry: Approach without use of Ba carrier. Radiochemical Acta, 55, 163-166,1991.
7. "Anketa o utrošenoj količini artikala lične potrošwe u domaćinstvima u SRJ 1991 godine", Savezni zavod za statistiku, Beograd, 85, 1993.
8. "Anketa o utrošenoj količini artikala lične potrošwe u domaćinstvima u SFRJ 1971 godine", Savezni zavod za statistiku, Beograd, 56, 1973.
9. Roop M. E,, Age dependent values of dietary intake for assessing human exposure to environmental pollutants, Health Physics, 39, p. 151-163, 1980.
10. Yand Y.Y., Nelson B. C., An estimation of daily food usage factors for assessing radionuclide intakes in the U.S. population, Health Physics, 50,245-257, 1986.
11. Fisenne M.I., Perry M.P., Stable Elements in Diet, Environment Measurements Laboratory, Annual Report - Calender year 1987, p109-110, 1987
12. Fiisenna M.I., Perry MP., Decker M.K., Keller W.H., The Daity intake of $^{234,235,238}U$, $^{228,230,232}Th$ and $^{226,228}Ra$ by New York City Residents, Health Physics, Vol. 53, No. 4357-363, 1987.
13. Klusek C.S., Activities of the IAEA Program "Fallout Monitoring in Environment and Food" proceedings of IAEA-NBS International Workshop on Practical Analytical Approaches to the Assessment of Human Dietary Intake of Nutrients, Toxic Constituents and Radionuclides, IAEA Report IAEA/AL/005, p.44, 1988.
14. Radiation Protection Sihft 5th, International Symposium on the Natural Radiation Inveronment, Tutorial Session, Report EUR14411 in EN, 234-236, 1993.

PRIRODNI RADIONUKLIDI U HRANI

Ivana S. Đujić

Rezime

Prikazani su rezultati merenja prirodnih radionuklida uranovog, torijumovog i aktinijumovog niza i ^{40}K u nacionalnim reperezentativnim uzorcima pšeničnog i kukuruznog brašna, krompira mleka, svinjskog i govedjeg mesa sakupljenim tokom 1991-1992 godine i drugih namirnica, koje ne predstavljaju celokupnu nacionalnu proizvodnju (sakupljenih u periodu 1984-1992). Na osnovu podataka o utrošenoj količini artikala lične potrošnje u domaćinstvima u Srbiji 1991 godine izračunat je prosečan dnevni unos pojedinih namirnica, a zatim i prirodnih radionuklida, za stanovnike Srbije. Prosečan dnevni unos radionuklida sa hranom u mBq bio je za ^{234}U-18, ^{235}U-07, ^{238}U-16, ^{230}Th-6, ^{232}Th-4, ^{226}Ra-52 i ^{40}K-78.

Ključne reči: Hrana, prirodni radionuklidi, unos, ^{40}K, ^{210}Pb, ^{238}U, ^{230}Th, ^{232}Th, ^{226}Ra.

NATURALLY OCCURRING RADIONUCLIDES IN FOOD

Ivana S. Đujić

Abstract

The naturally occurring radionuclides are the major source of radiation exposure to humans. The principal way of natural radiation exposure is the inhalation of ^{222}Rn decay products (about 85% of the total). The remainder is equally divided between internally deposited radionuclides, cosmic and terrestrial sources.

In the present study, the content of ^{40}K, ^{210}Pb, ^{226}Ra, ^{230}Th, ^{232}Th and ^{238}U in representative food samples (milk, pork, beef, potatoes, wheat and corn flour) and samples of different food items that do not represent entire national production but provide interesting additional data for approximative calculation of naturally occurring radionuclide intake is presented. Daily weight of food eaten, participation of food groups, as well as daily intake by food of mentioned naturally occurring radionuclides in the Serbian diet was obtained on the base of house hold budget surveys.

The result obtained for daily intake estimates in mBq for Serbian population are 78.1 (^{40}K), 38.2(^{210}Pb), 52.3(^{226}Ra), 2.0(^{230}Th), 1.76(^{232}Th) and 12.5(^{238}U).

Key words: Food, naturally occurring radionuclides, intake, ^{40}K, ^{210}Pb, ^{238}U, ^{230}Th, ^{232}Th, ^{226}Ra

31.

JONIZUJUĆA ZRAČENJA U ZATVORENIM ARHITEKTONSKIM PROSTORIMA KAO EKOLOŠKI PROBLEM

Mara Đukanović
Šumarski fakultet, Odsek za pejzažnu arhitekturu
Kneza Višeslava 1, 11000 Beograd

1. UVOD

Do nedavno arhitektura se računala kao " umetnost mase u prostoru " pa je njena estetska funkcija bila primarna. čuveni arhitekta Korbizje ističe funkcionalizam, što je značilo racionalno korišćenje prostora u okviru arhitektonskog objekta. Arhitektura prelazi i put konstruktivizma kao značajne ideje vodilje, a gradovi 20 veka se razvijaju po dva modela: progresističkom ili kulturaloškom. Arhitektura ide svojim putem a tehnologija joj pomaže da može da gradi u bilo kom području (podjednako u žarkom pojasu kao i na krajnjem severu), na bilo kom terenu i u nedogled po broju spratova. Istovremeno, mada ne i voljno, arhitektura se odvaja od prirode i prirodnih zakonitosti.

Međutim, početkom 80-tih godina 20 veka, "otkriva se" životna sredina, problemi vezani za nju. Ovome su doprinela dva značajna događaja:

1. Po nalogu Rimskog kluba , rezultati istraživanja[1,2] ukazuju na "granice rasta" na ograničenom prostoru naše planete (1970 i 1971) i

2. Prva konferencija Ujedinjenih nacija o životnoj sredini koja je održana u Štokholmu 1972 godine [3.4].

Ova dva događaja ukazala su na zajedničke globalne probleme u životnoj sredini, a u sledeće dve dekade dešavaju se velike katastrofe koje to i dokazuju (Seveco, Sandoz, Meksiko-Siti, Bopal, Černobilj..).

Dvadeset godina posle štokholmske konferencije, organizuje se Druga konferencija o životnoj sredini i razvoju, u Rio De Žaneiru 1992 godine, na kojoj se donosi niz značajnih dokumentata među kojima je i Agenda 21, koja daje uputstva, između ostalog i o takozvanom "održivom razvoju" u gradovima i naseljima [5].

U međuvremenu, postepeno se budi ekološka svest i na međunarodnom i na nacionalnom nivou, čine se mnoge mere i postupci, pa i ekološki način mišljenja. Obavljaju se razne vrste istraživanja , u koje spada i kvalitet životne sredine u okviru samih objekata u kojima ljudi žive ili duže vremena tokom dana borave.

Arhitektura i arhitektonski objekti se više ne posmatraju kao umetnost i umetnički predmeti, već su ljudska naselja ekološke kategorije : ekosistemi, a stambene zgrade ljudska staništa. U njima nije više značajan samo ekonomski kvalitet-životni standard, već i ekološki kvalitet životne sredine, onaj koji garantuje nezagađene uslove života.

2. EKOLOŠKI KVALITET STANOVANJA

Ekološki kvalitet stanovanja podjednako podrazumeva kvalitet vazduha i površinskih voda, blizinu snabdevanja vodom za piće, postojanje, kvalitet i kvantitet vegetacijskog pokrivača, klimu predela, pravac i jačinu vazdušnih strujanja i padavina, insolaciju, stanje higijene naselja... I zbog toga za današnji pojam *kvaliteta stanovanja*, podjednaki značaj imaju faktori sredine:

a) spoljašnji i
b) unutrašnji.

a) Spoljašnji faktori i izbor lokacije

Spoljašnji ekološki faktori se odnose na kvalitet faktora sredine u gradu, blizinu izvora buke i drugih zagađivača sredine, nivo podzemnih voda... ali i kvalitet terena i podloge-zemljišta na kome će se naselje ili građevinski objekat podizati.

Znači da ovde spadaju svi oni faktori sredine, koji, iako su spoljašnji, mogu da pozitivno ili negativno utiču na kvalitet stanovanja ili objekata neke druge namene.

Ljudi su neprekidno izloženi nekoj vrsti prirodnog zračenja, kosmičkom zračenju, kao i zračenjima iz nekih prirodnih materijala-stena i njihovih delova, i iz zemljišta. Ali i razne ljudske aktivnosti stvaraju takozvane veštačke izvore zračenja, kakvi su na primer, upotreba razne radioaktivne opreme u medicinske svrhe, zatim proizvodnja i korišćenje nuklearne energije, oprema u raznim istraživačkim centrima, i na kraju, nuklearni otpad, posle isteka vremena upotrebe i odsluženja svega nabrojanog.

Izbor lokacije za stambeni ili neki drugi objekat u kome je potreban ekološki standard, danas se ne određuje samo prema povoljnostima klime i orijentacije u odnosu na strane sveta, već se uzimaju u obzir i blizina zagađivača (kao negativan faktor), ali i izbor terena, sada ne više samo u odnosu na nosivost (čvrstoću na pritisak) i nivo podzemnih voda, već i izbor sa stanovišta ljudskog zdravlja.

b) Unutrašnji ekološki faktori

Ovi faktori se odnose na mikroklimu u samom objektu za stanovanje ili nekom drugom u kome se provodi veliki deo vremena (bolnički, školski, hotelski, kancelarijski, fabrički objekti i slično). Najznačajniji faktor jeste kvalitet vazduha, odnosno sve ono što utiče na stvaranje takozvanog vazdušnog komfora. To neposredno znači :

- izbor lokacije i kvaliteta zemljišta i
- izbor građevinskog materijala [6].

3. POJAVA RADONA

Radon je prirodan inertan radioaktivan gas. Za ljudski organizam je škodljiv. Unet u organizam, on ne ostaje na disajnim organima, ali njegovi naelektrisani joni (proizvodi njegovog raspadanja) prianjaju za sve materijale pa čak i za čestice vazduha. Kada se ove čestice udahnu, ostaju u plućima i stalno ih ozračuju. Ljudi ga udišu uglavnom iz zatvorenih prostorija u kojima se javlja iz različitih izvora: zemljišta, podzemne vode ili građevinskih materijala.

On nastaje raspadanjem uranijuma koji se prirodno javlja u mnogim stenama i zemljištu odakle može da bude transportovan po zemljinoj površini. Može se rasprostrti po vazduhu okoline, a nivo mu je veoma nizak i bezopasan. Ali ako se radon nađe u zatvorenim prostorijama, tada njegovo dejstvo može da bude negativno po ljudsko zdravlje.

Osim iz zemljišta, radon može da se nađe i u podzemnim vodama, pa , ukoliko je nivo podzemne vode viši, u odnosu na donje etaže zgrada, tada se on može naći u objektu u većim količinama.

Glina kao podloga na kojoj se podiže objekat može da bude nepovoljna kako zbog mogućnosti pojave radona tako i zbog zadržavanja vlažnosti, jer u letnjem periodu ne može da prati temperaturu vazduha. Takođe je veoma štetan i podvodni teren, kako zbog pojave radona tako i zbog vlage koja pogoduje nehigijeni i stvaranju uslova za razvitak bakterija, plesni, insekata i drugih organizama, u podrumskim prostorijama i etažama bližim terenu. Ovi nepovoljni uticaji se dalje šire po celom objektu.

Reslez i saradnici [4] su otkrili da raskopano zemljište na mestima gde je obavljana eksploatacija fosfata sadrži deset puta više radona nego pre raskopavanja. Korisnici objekata podignutih na takvom terenu izloženi su stalnom dejstvu jonizujućeg zračenja radona.

4. UTICAJ MIKROKLIME NA ZDRAVLJE KORISNIKA STAMBENOG OBJEKTA

Prema tome, kvalitet mikroklime u okviru stambenog objekta ima podjednak značaj kako za fizičko tako i za mentalno zdravlje ljudi koji koriste arhitektonske objekte kao svoja stalna ili privremena staništa.

U stanu ili sopstvenoj kući, ljudi provode , prema nekim autorima i do 70% svog vremena (Von Rosenbladt), pa su prema tome više izloženi mikroklimi u objektu nego spoljašnjoj. Mnoga današnja istraživanja (WHO, UNEP, WMO, EPA i drugi) veliki akcenat stavljaju na uticaj raznih vrsta zračenja na ljudski organizam i ostali živi svet.

Radonu se pripisuje kao najozbiljniji i najverovatniji štetni zdravstveni efekat kod ljudi, povećani broj malignih oboljenja na bronhijama, zbog taloženja izotopa radona. Radon-gas može da dopre i do koštane srži.

a) Radon u zatvorenom prostoru

Mnoga istraživanja upozoravaju da se radon, osim iz zemljišta i podzemnih voda, može naći u građevinskom objektu iz drugih, direktnih izvora, kao što su mnogi građevinski materijali ili voda iz gradskog vodovoda (iz slavina). B.Koen [6] je višegodišnjim istraživanjima pratio nivo radionukleida u 169 stanova u Pitsburgu i konstatovao njihovo prisustvo. Pronašao je (što su kasnija istraživanja potvrdila) da ih ima manje tamo gde je promaja i provetrenost jača. Dalja istraživanja su pokazala da se radon zadržava u objektima koji su "hermetički" zatvoreni, koji su građeni mahom od betona (u kome je šljunak sa primesama raspadnutog uranijuma) i drugih prefabrikovanih elemenata (naročito od šljako-blokova).

Prethodna istraživanja Svetske zdravstvene organizacije [7] su potvrdila da neki građevinski materijali emituju radon. To su stene i kameni materijali (šljunak i pesak) u kojima ima više ili manje tragova uranijuma. Takvi su neke vrste granita, peščara, škriljca, fosfata... Prema vrsti upotrebe nekih agregata, beton je takođe stavljen pod sumnju , kao i neki drugi prefabrikati kod kojih postoji visok rizik izlaganju stanovnika jonizujućem zračenju.

Radi uštede u gradnji i smanjenju otpadnih materijal, 70-tih godina 20 veka u građevinarstvu su se koristili blokovi od šljake i pepela. Oni su se takođe, u kasnijem proučavanju pokazali kao izvori radona.

Tabela 1 - Moguće izlaganje radonu iz građevinskih materijala [7]

1. kamen škriljac	v	
2. kamen peščar	n	
3. kamen granit	v,s,n	
4. opeka-glina	s,n	
5. blok-šljaka	v,s,n	
7. beton normalne konsistencije	s,n	
8. otpaci uranijumove rude	v	
9. fosfatna šljaka	v,s,n	stepen izlaganja:
10.beton-aerisani škriljac	v	
11.zgura	s	v= visok
12.beton na bazi peska (malter)	n	s=srednji
13.gipsane ploče	v,s,n	*n=nizak*

Međutim, može se reći da su navedeni materijali stavljeni pod sumnju, ali da se sve to ne može uzeti kao utvrđeno, jer su različiti kvaliteti svih pomenutih materijala, i stepen njihove mogućnosti emitovanja radona, je različit u različitim područjima odakle se takav materijal eksploatiše.

Kako je štednja energije započela 1973 u toku i posle takozvane "naftne krize", tako su graditelji u mnogim zemljama pronalazili i koristili razne vrste izolacije na zgradama (razne izolacione ploče, izolacione pene, trostruko zastakljivanje, efikasne dihtunge na prozorima i vratima i slično), u cilju očuvanja toplotne energije. Na taj način, radon je ostajao "zarobljen" u zatvorenom prostoru, i štetno delovao na stanare i ostale korisnike.

Istraživanja koja su obavljena u Velikoj Britaniji [8] pokazuju da je procentualni odnos radioaktivnog zračenja u životnoj sredini (tabela 2.) zračenje iz zemljišta i iz zgrade ide do 14% od ukupnog.

Potrebe za izgradnjom kuća za stanovanje kao i ostalih objekata koji prate razvoj i funkcionisanje civilizacije, svakim danom sve više rastu. Rast je paralelan porastu broja stanovnika, čiji se broj pri kraju drugog milenijuma približava cifri od 6 milijardi.

Tabela 2 - Radioaktivnost u životnoj sredini, iz raznih izvora (u %) [8]

1. kosmički zraci	10%
2. radon gas iz zemljišta	47%
3. gama zraci iz tla i objekata	14%
4. toron (oblik radona)	4%
5. medicinska oprema	12%
6. iz hrane i pića	12%
7. ostalo	1%

Prognoze govore da se može očekivati da taj broj za oko 35 godina (oko 2025 god.) bude oko 8,5 milijardi, a da oko 2100 godine dođe do udvostručavanja današnjeg broja (oko 12 milijardi) [9,10]. Prema tome, biće potrebno još mnogo lokacija i građevinskog materijala potrebnog da se sve to izgradi, i to u količinama ukupno do danas urađenim. A već je danas u svetu 1/4 beskućnika od ukupne ljudske populacije.

Razvoj ljudske civilizacije u novoj tehnološkoj eri ide munjevitom brzinom.U traganju za novim prostorima za izgradnju , zadnje dekade 20 veka, veoma je popularno u urbanoj obnovi gradova, primena podzemnog urbanizma. Ispod nivoa terena rastu čitavi gradovi sa većim brojem etaža, sa isključivim veštačkim osvetljenjem i veštačkom klimom. U njima nema ni govora o prirodnom provetravanju. Ovi prostori se ne istražuju po potanju pojave radona.

Čovek evolucijom nije prilagođen da veći deo dana provodi u takvim veštačkim uslovima. Kako će to delovati na ljudski organizam i koliko je izlaganje jonizujućem zračenju u tim uslovima ostaje da budućnost otkrije. A možda bi bilo bolje da se od ovakve izgradnje odustane pre nego što se dokažu negativni efekti.

Zbog toga dosadašnje greške, pa i greške u građenju moraju da se prevaziđu, a u daljoj izgradnji moraju se primenjivati, kako nove tehnologije tako i novi koncepti o "održivom razvoju", razvoju koji zahteva mnogo mudrosti da bi se i sledećim generacijama ostavila mogućnost razvoja a ne samo golog preživljavanja.

Literatura

1. Forrester J., *" World Dinamics"* (1971 god. Cambridge)
2. Medouz D. et al. *"Granice rasta"* (1976 god. "Stvarnost" Zagreb)
3. Đukanović M. *"Ekološke dimenzije"* (str.25-29, 1984 god. Institut zaštite na radu, Niš)
4. Đukanović M. *"Ekološki izazov"* (str.56-58 i 447-452; 1991 god. "Elit" Beograd)
5. *"Napori Ujedinjenih nacija za bolju životnu sredinu 21 veka"* (1992. Savezno ministarstvo za životnu sredinu, Beograd)
6. Đukanović M. *" Ekološki kvalitet stanovanja u objektima od pečene gline"* ("Izgradnja" vol. XLVII, Br.7-8 1993 god., str.19-24, Beograd)
7. *"Healt Aspects Releted to Indoor Air Quality"* (WHO, Regional Office for Europe, 1979. Kopenhagen)
8. *"Radon"* (National Radiological Protection Board, 1993. London)
9. *"Our Common Future"* (The World Commission on Environment and Development, 1987. Oxford University Press, Oxford, New York)
10. *World Resources*, A Guide to the Global Environment- Toward Sustainable development 1992-93 (Oxford University Press 1992. Oxford, New York)

JONIZUJUĆA ZRAČENJA U ZATVORENIM ARHITEKTONSKIM PROSTORIMA KAO EKOLOŠKI PROBLEM

Mara Đukanović

Rezime

Arhitektonski objekti se ne posmatraju kao umetnički predmeti, već su ljudska naselja ekološke kategorije a stambene zgrade ljudska staništa.

Izbor materiijala za gradnju je od velike važnosti jer neki gradjevinski materijali emaniraju radon što može uzrokovati značajne zdravstvene rizike.

Svrha ovog rada je da ukaže na značaj ispitivanja gradjevinskih materijala pre upotrebe a takodje i kontrole kvaliteta zemljišta na kome se planira gradnja.

Ključne reči: arhitektonski prostor, radon, radioaktivni gas, prirodno zračenje, gradjevinski materijal, podzemne vode, jonizujuća zračenja

IONISING RADIATIONS - AN ECOLOGICAL PROBLEM OF INDOOR ARCHITECTURAL ENVIRONMENT

Mara Đukanović

Abstract

Architectural buildings are assesed not only for their esthetic characteristics but human settlements are considered now, as ecosystems and homes and flats as habitats (biotops). Because of that healthy environment and influences of nonpolluting factors are of a great importance.

The use of apropriate building materials harmles to health, contrary to the use of those that emit radon with its ionising efects and consequent health hazards, is of a great importance, too.

The purpose of this paper is to emphasize the importance of investigation of building materials before their use, as well as the importance of quality control of soil where the construction is planned.

Key words: architectural environment, radon, radioactive gas, outdoor influence, indoor influence, natural radiation, architectural building, building materials, underground water, ionising radiations

32.

ANALIZA I EKSPERIMENTALNA VERIFIKACIJA PRORAČUNATIH EKVIVALENTNIH DOZA KOD PILOTA

Dragoljub P. Antić
Institut za nuklearne nauke "Vinča", p.f. 522, 11001 Beograd

1. UVOD

Kod letova komercijalnih putničkih aviona bezbednost po život i zdravlje putnika i osoblja postavlja se kao osnovni preduslov. U tom smislu se razmatra i pitanje izloženosti jonizujućem zračenju i rade se analize sigurnosnog tipa, koje utvrdjuju maksimalne ekvivalentne doze , pri maksimalno nepovoljnoj kombinaciji drugih uslova.

Jedna takva sigurnosna analiza radjena je za osoblje "Jugoslovenskog Aerotransporta (JAT)". Korišćeni su teorijski modeli za procenu doza osoblja aviona sa podacima iz literature o promeni kosmičkog zračenja sa visinom, geografskom širinom i solarnom aktivnošću. Obradjeni su svi letovi odabranih pilota-uzoraka tokom jedne godine. Podaci o letovima odabranih pilota-uzoraka preuzeti su iz zvanične evidencije JAT-a. Dobijeni rezultati su publikovani u nekoliko referenci, [13-16].

Eksperimentalna provera, koja čini centralni deo ovog rada, potvrdila je valjanost korišćenog teorijskog modela i dobijenih rezultata teorijskih proračuna.

2. OSVRT NA ISTRAŽIVANJA UTICAJA JONIZUJUĆEG ZRAČENJA NA LETAČKO OSOBLJE

Problem izloženosti kosmičkom zračenju kod letova na velikim visinama pretstavlja jedan od problema koji se javio sa razvojem kosmičke tehnologije i avijacije. Tako je 1961. godine nastala prva studija Foelshea iz Langley Research Center posvećena ovom problemu, [1], kasnije upotpunjena, [2]. Tokom 60-tih i 70-tih godina radjen je veći broj studija supersoničnog transporta sa radiobiološkog aspekta. Jedna od prvih jeste izveštaj Comitee 1 of the ICRP Task Group on the Biological Effects in High-Energy Radiations, [3]. Neke najvažnije činjenice o fluksu i spektrima kosmičkog zračenja, kao i o mernim tehnikama, prikazane su u referencama [4-6]. Timski rad NASA-e i više nacionalnih laboratorija i stručnih udruženja u SAD, uključujući i izvodjenje brojnih eksperimenata, rezultovao je dvema veoma citiranim studijama [7,8]. Podaci o dozimetrijskom profilu kosmičkog zračenja u zemljinoj atmosferi (brzine apsorbovanih i ekvivalentnih doza u zavisnosti od visine i geomagnetske širine), prikazani u referenci [7], dobijeni su na osnovu složenih proračuna uz korišćenje modela ljudskog tela (tzv. "fantom") i uslova ozračavanja na odgovarajućim visinama. Ovi podaci, koji se veoma mnogo koriste i citiraju, korišćeni su kod proračuna prikazanih u ovom radu.

Osim ovih studija, bilo je više objavljenih rezultata istraživanja u nacionalnim institutima i asocijacijama u SAD, V.Britaniji, Kanadi, Nemačkoj, a uglavnom se radi o istraživačima sa univerzitetskih katedri i raznorodnih instituta. Neke studije su radjene i za potrebe aerodroma, jer se avioni koriste i za transport radioaktivnih materijala i izvora (takva je referenca [9], radjena kao deo studije šest velikih aerodroma u SAD).

Referenca [10], koja prikazuje rezultate eksperimenata vršenih u Japanu, kao i ukazivanje na neke pravce daljih istrarivanja dato u referenci [11], pokazuju da je ovo pitanje i dalje interesantno i za tehnološki razvijene zemlje u kojima je ovaj problem već istraživan.

Osnovni zaključak na osnovu do sada objavljenih rezultata bio bi da generalno ne postoji opasnost po putnike u savremenom avio saobraćaju. Sa izuzetkom nekih specifičnih zanimanja (diplomate, trgovački putnici, sportisti, estradni umetnici itd.) većina putnika provodi u avionu znatno manje vremena tokom godine nego profesionalno osoblje. Uobičajeni rasporedi letenja za profesionalno osoblje uglavnom zadovoljavaju i uslov izlaganja zračenju ispod propisanih nivoa. Ipak, za neke kategorije letačkog osoblja (česti interkontinentalni letovi) postoji mogućnost da godišnje doze budu sasvim uporedljive sa dozama kod nekih kategorija radnika sa izvorima zračenja, a nije sasvim isključena mogućnost prekoračenja propisanih nivoa.

3. VERTIKALNI PROFIL KOSMIČKOG ZRAČENJA U ATMOSFERI

Gornji slojevi zemljine atmosfere su izloženi kosmičkom zračenju, koje se sastoji od galaktičke komponente i radijacije koja potiče od sunca. Galaktička radijacija se sastoji uglavnom od visokoenergetskih protona, alfa čestica i redje težih čestica sa rednim brojem iznad Z=50, dok se solarna radijacija (emitovana u eksplozijama na

suncu) sastoji od protona i težih jezgara, koji dospevaju do zemlje u toku nekoliko sati ili dana, pri čemu dolazi i do uzajamne reakcije ova dva zračenja.

U kontaktu kosmičkog zračenja i zemljine atmosfere dolazi do niza nukleanih reakcija, prilikom kojih nastaju različite čestice i gama zračenje. Sve te reakcije, koje predstavljaju jonizaciju u atmosferi, mogu se svrstati u pet tipova:

$$p + vazduh \rightarrow p + n + \pi^{\pm} + \pi^{o} \quad (1)$$

$$n + vazduh \rightarrow p + n + \pi^{\pm} + \pi^{0} \quad (2)$$

$$\pi^{\pm} \rightarrow \mu + \nu \quad (3)$$

$$\pi^{0} \rightarrow 2\gamma \rightarrow elektromagnetsko\ zracenje \quad (4)$$

$$\mu \rightarrow e + 2\nu \rightarrow elektromagnetsko\ zracenje \quad (5)$$

Ovde su teži atomi iz kosmičkih zraka prikazani kao kombinacija protona i neutrona.

Na produkte navedenih reakcija utiče zemljino magnetno polje, koje skreće naelektrisane čestice (utoliko više ukoliko im je manja energija), tako da u gornjim slojevima atmosfere totalna jonizacija raste od ekvatora prema polovima. Ovaj porast je naročito izražen izmedju ekvatora i 45° severne i južne geomagnetske širine, a izmedju 54° severne i južne geomagnetske širine i magnetskih polova nivo zračenja je praktično konstantan. Severni geomagnetski pol se nalazi na koordinatama 78,5° severne geografske širine i 69° zapadne geografske dužine, tako da postoji nagib od 11,5° izmedju zemljine ose i geomagnetske ose.

Intenzitet solarnog zračenja varira u toku dužih vremenskih intervala, pa postoje periodi jače sunčeve aktivnosti i mirniji periodi. Ovi periodi se ciklično ponavljaju sa periodom od oko 11 godina (maksimumi su bili 1938., 1948., 1959., 1969.). Efekat solarne aktivnosti se ogleda u varijacijama interplanetarnog magnetskog polja, koje se superponira sa zemljinim magnetskim poljem, tako da se menja intenzitet zakrivljenja kosmičkog zračenja i produkata reakcija u atmosferi. U praktičnom smislu, to znači da se u periodu povišene aktivnosti sunca ("aktivno sunce") nivo radijacije u višim slojevima atmosfere smanjuje, a povišen je u periodu niske aktivnosti sunca ("mirno sunce").

Najveći deo doprinosa dozi potiče od gama zračenja i naelektrisanih čestica. Eksperimentalne provere, [3], pokazuju da je udeo neutrona u kosmičkom zračenju reda 1-4%.

Zbog pomenutih procesa, stepen izloženosti čoveka kosmičkom zračenju zavisi od nadmorske visine (preciznije rečeno, od debljine atmosferskog sloja iznad njega), od geografske širine i od sunčeve aktivnosti. Sa porastom nadmorske visine godišnja ekvivalentna doza približno eksponencijalno raste, tako da jačina ekvivalentne doze na visini vazdušnih koridora za komercijalni putnički avio saobraćaj iznosi 1-4 μSv/h, [7,8]. Dozvoljena godišnja doza za lica koja ne rade profesionalno sa izvorima jonizujućeg zračenja je 5 mSv, pa postoji mogućnost da je pilot (ili član osoblja) dostigne u slučaju nekoliko stotina sati letenja na većim visinama (12-13 km). To je

bio i osnovni motiv za analize radjene u velikim nacionalnim agencijama za istraživanje kosmosa i za razvoj supersoničnih letilica.

Vazdušni koridori za let savremenih komercijalnih putničkih aviona nalaze se na visinama od 9-13 km. Avioni lete sa brzinom krstarenja od oko 800-900 km/h, tako da u slučaju JAT-a domaći letovi traju manje od jednog sata, kontinentalni letovi 2 - 3 h, dok su interkontinentalni letovi višečasovni (6 - 10 h). Optimalna visina za komercijalne letove današnjih aviona iznosi 12-13 km, pa se koridori za dugolinijske letove uglavnom nalaze na ovim visinama, dok su koridori na nižim visinama definisani za potrebe kraćih letova i za let u fazama uključivanja u više koridore. Putanje i visine leta su definisane sigurnosnim zahtevima i konkretnom situacijom u avio saobraćaju.

4. MODELI I PODACI ZA PRORAČUNE

4.1. Izbor pilota-uzoraka

Analiziran je jednogodišnji period letova pilota JAT-a. Uzeti su podaci za 1989. godinu, jer se radi o godini koja je karakteristična za period normalnog poslovanja kompanije, kada je JAT sa svojih 30 aviona prevozio 3,5 miliona putnika godišnje i zauzimao 35. mesto na listi IATA, [12]. Noviji podaci bi uključivali i niz poremećaja u poslovanju usled krize u avio saobraćaju zbog rata u Persijskom zalivu, ekonomske krize u zemlji, rata i raspada SFR Jugoslavije i sankcija protiv SR Jugoslavije.

Za analizu je odabran uzorak od 17 pilota, svrstan u četiri grupe po 4 ili 5 pilota, gde svaka grupa odgovara jednom od tipova JAT-ovih aviona. Uzorci su odabrani nasumice iz grupe pilota koji su u prethodnoj godini imali uobičajeni fond sati letenja. Svi piloti su i tokom analizirane godine imali uobičajeni fond sati letenja i strukturu linija.

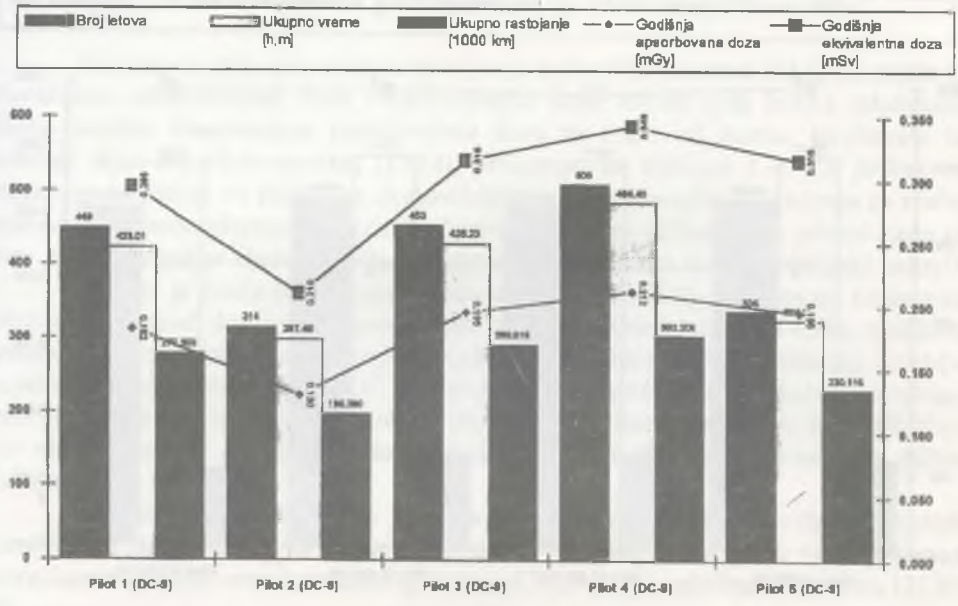
Korišćeni su oficijelni podaci o naletu za odabrane pilote, a piloti su tretirani "bezimeno" (na osnovu identifikacionih brojeva su im selektovani podaci, a u analizi su tretirani pod brojem pilota-uzorka). Ukupan broj letova odabranih pilota-uzoraka iznosio je tokom 1989. godine 5736. Sumirani podaci o naletu (ukupan broj letova, ukupno trajanje letova, ukupan predjeni put) za pilote-uzorke prikazani su na slikama 1. do 4.

4.2. Model za proračun i procenjene godišnje doze

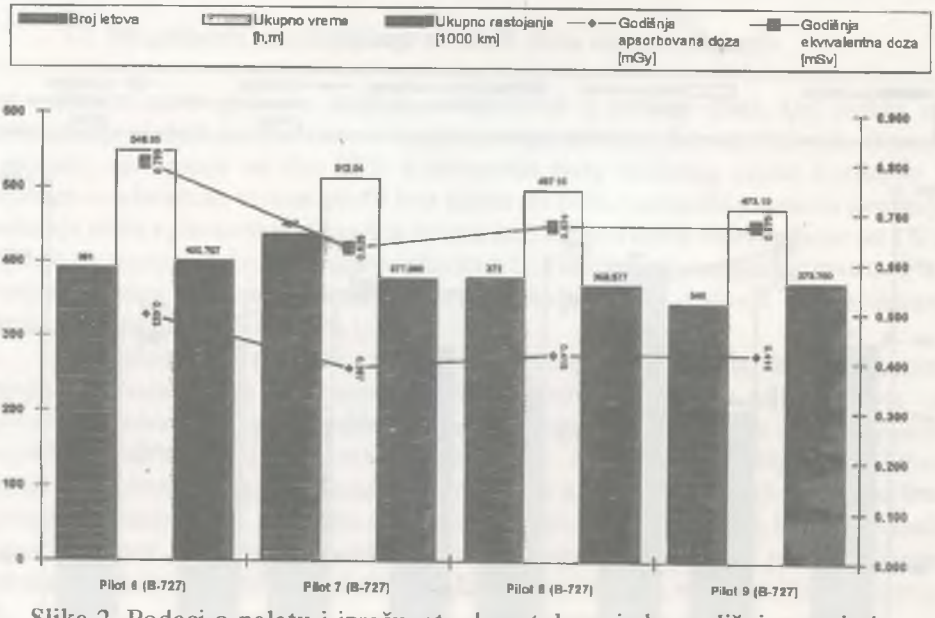
Za proračun apsorbovanih i ekvivalentnih doza korišćeni su podaci o dozimetrijskim profilima kosmičkog zračenja za različite nadmorske visine (do 15 km), za različite geografske širine, kao i za različite periode sunčeve aktivnosti [7].

Vreme penjanja i spuštanja aviona prilikom poletanja i sletanja i promena vazdušnih koridora, kao i visine krstarenja, procenjeni su na osnovu analiza jednog broja standardnih operativnih planova leta. Realni profili letova su aproksimirani profilima sa linearnim povećavanjem i smanjivanjem visine i konstantnom visinom krstarenja, pri čemu je formirano više grupa karakterističnih profila (kratki letovi na

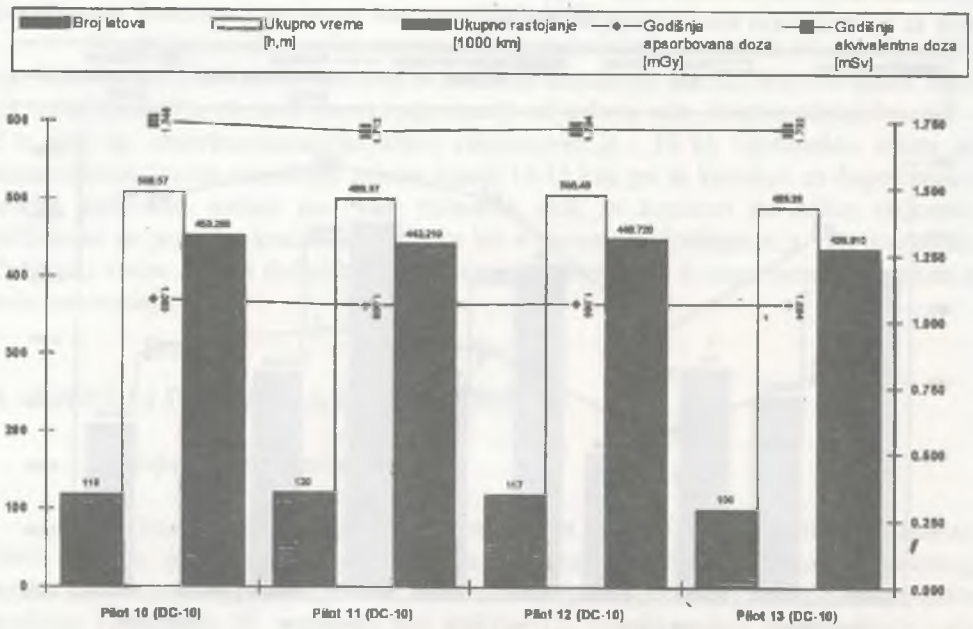
domaćim linijama, srednje dugi i dugi kontinentalni letovi, interkontinentalni letovi), koji su pridruživani konkretnim letovima.



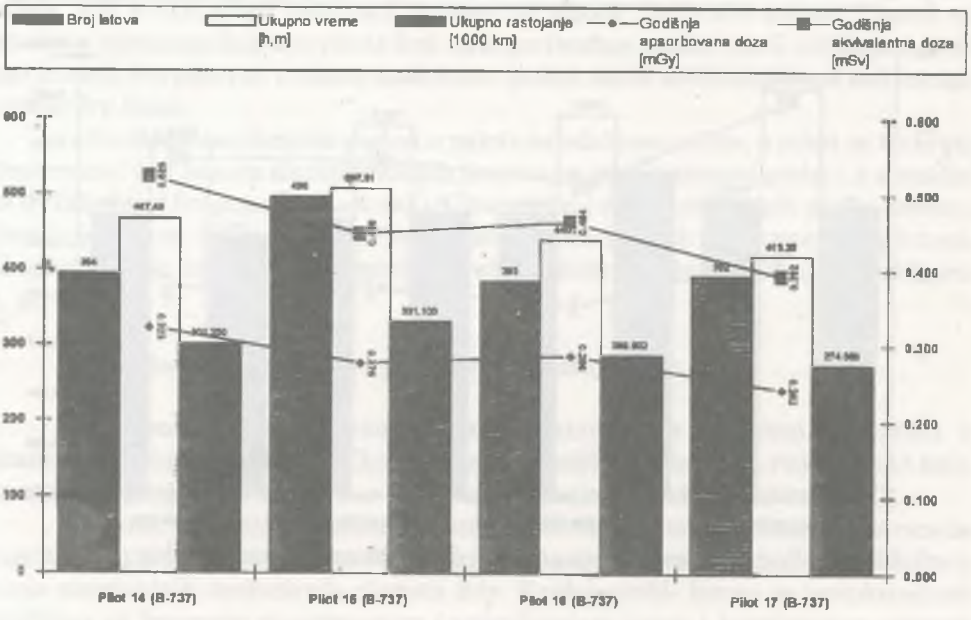
Slika 1. Podaci o naletu i izračunate doze tokom jednogodišnjeg perioda



Slika 2. Podaci o naletu i izračunate doze tokom jednogodišnjeg perioda



Slika 3. Podaci o naletu i izračunate doze tokom jednogodišnjeg naleta



Slika 4. Podaci o naletu i izračunate doze tokom jednogodišnjeg perioda

5. REZULTATI TEORIJSKIH ANALIZA

5.1. Rezultati proračuna godišnjih doza za odabrane pilote-uzorke

Na osnovu opisanog modela izradjen je numerički program PILOTI, kojim su proračunate ekspozicione doze i ekvivalentne doze tokom svih letova odabranih pilota-uzoraka. Sumiranjem pojedinačnih doza za svaki od letova, izračunate su godišnje doze za pilote-uzorke, [13,14], prikazane na slikama 1.-4. Za prikazane proračune korišćeni su podaci za dozimetrijske profile kosmičkog zračenja za slučaj minimuma solarne aktivnosti. Period minimuma solarne aktivnosti je period kada su doze najviše, a takav slučaj se bira kod sigurnosnih analiza (najnepovoljniji uslovi).

Uočljiv je dosta širok raspon doza u zavisnosti od tipa aviona na kojima su piloti leteli. Najveći doprinos dozama potiče od dugolinijskih letova na većim visinama krstarenja, gde su doze znatno povišene (eksponencijalni porast sa visinom). Osoblje na takvim letovima (avioni tipa DC-10) izloženo je 2-4 puta većem uticaju jonizujućeg zračenja od osoblja na kraćim letovima (domaći i kontinentalni), koje ima približno isto ukupno vreme letenja, ali su vazdušni koridori za ovakve letove na nižim visinama.

Kao ilustracija doprinosa dugolinijskih letova ukupnim može da posluži proračunata doza za let na relaciji Beograd - Beijing - Beograd, [15]. Ukupna proračunata apsorbovana doza za ovaj let iznosi 75,59 μGy, a akvivalentna doza 121,94 μSv.

5.2. Mogućnosti za odstupanje stvarnih doza od proračunatih

Preliminarne procene stepena nesigurnosti u proceni doza, koji potiče od aproksimacije realnih profila letova i varijacija u intenzitetu solarnog zračenja, ukazuju na moguća odstupanja od oko 20% (odstupanja zbog varijacija visine korišćene u proračunu u odnosu na stvarni profil leta iznosi do 10%, varijacije vremena penjanja i spuštanja utiču uglavnom kod kratkih letova do 5% (kod dužih letova manje od 1%), varijacije zbog geografske širine utiču uglavnom kod interkontinentalnih letova do 2%, a varijacije usled odstupanja stvarnog intenziteta solarnog zračenja od korišćenih podataka mogu da budu do 10%),.

Poredjenje proračunatih doza uz aproksimaciju profila leta linearnim penjanjem i krstarenjem na konstantnoj visini i uz računanje sa profilom leta na osnovu standardnog operativnog plana leta, radjeno je na primerima letova na relaciji Beograd -Frankfurt, [14], i na relaciji Beograd - Atina, [16]. Dobijeno je dobro slaganje aproksimativnog proračuna sa proračunom na osnovu operativnog plana leta (odstupanje manje od 1%), a slično slaganje se dobija kod svih tipičnih kontinentalnih i domaćih letova. Izuzetak od ovakvog dobrog slaganja čine letovi po izmenjenim maršrutama i u zonama velikog ukrštanja vazdušnih koridora, ali je broj takvih letova mali.

6. EKSPERIMENTALNA VERIFIKACIJA KORIŠĆENE METODOLOGIJE

6.1. Uslovi pod kojima je realizovan eksperiment

Da bi se teorijske analize, sprovedene na primerima letova odabranih pilota-uzoraka, upotpunile i potvrdila ispravnost korišćenog modela, realizovan je jedan dozimetrijski eksperiment tokom jednog od uobičajenih letova. Zbog medjunarodnih sankcija, na raspolaganju su stajali samo letovi na domaćim linijama.

Eksperiment je realizovan 24.2.1994. godine tokom leta aviona DC-9 (let JU 680) na planiranoj liniji Beograd - Tivat - Beograd i tokom povratnog leta. Zbog nepovoljnih meteoroloških uslova, avion je sleteo na aerodrom u Podgorici. Nepovoljni meteorološki uslovi su uslovili da snimanje dozimetrijskog profila tokom prvog leta (odlazak) bude sprovedeno samo u fazi podizanja i leta na maksimalnoj visini, a tokom povratnog leta merenje visine je vršeno tek posle dostizanja visine od 7000 m (ekvivalentna doza je snimana i u prvoj fazi leta sa putničkog sedišta). Merenja su vršena u pilotskoj kabini (centralna pozicija iza pilota i kopilota, rastojanje od oko 1m od stakla u kabini).

Prvi let je trajao 37 min (od 9,00 do 9,37), a drugi 31 min (od 12,30 do 13,01). Posadu (letački deo) su činili: instruktor kapetan Knežević, kapetan Dišljenković i kopilot Divić.

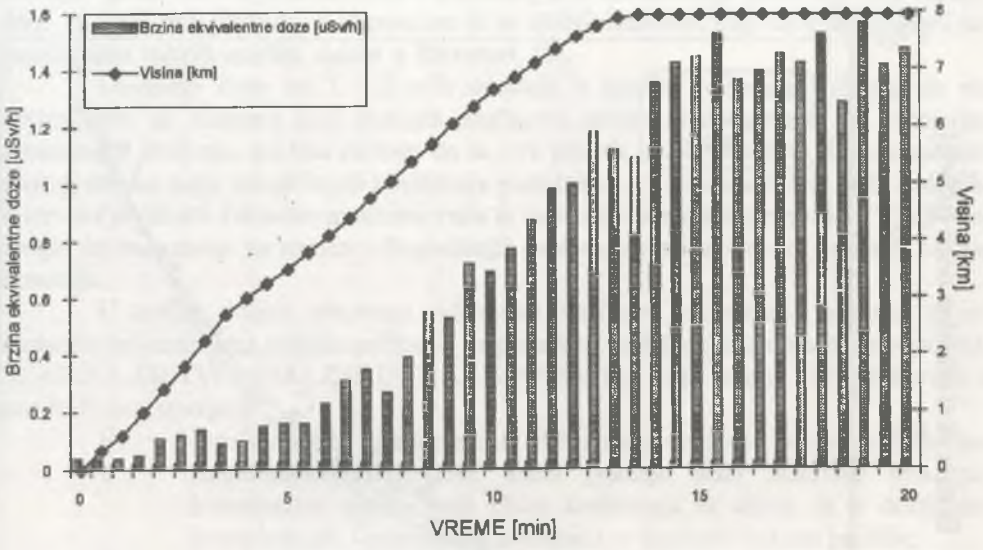
Za merenje je korišćen dozimetar 6150 AD 2 firme Automess GmbH (D-6802 Ladenburg), serijski broj S/N 57787. Dozimetar ima opseg merenja brzina ekvivalentnih doza od 0,1 μSv/h do 10 mSv/h i meri gama zračenje u energetskom opsegu od 60 keV do 3 MeV. Merenje se automatski ponavlja i rezultati pokazuju na displeju sa periodom od 2 s.

Vreme je mereno od trenutka poletanja (odlepljivanje sa piste) do trenutka sletanja (dodirivanje piste). Na svakih 30 s očitavano je pokazivanje visinomera u avionu i ekvivalentna doza na dozimetru. Merenje doze je ponavljano još po dva puta sa razmakom od 5 s.

6.2. Rezultati merenja i poredjenje sa podacima korišćenim kod proračuna

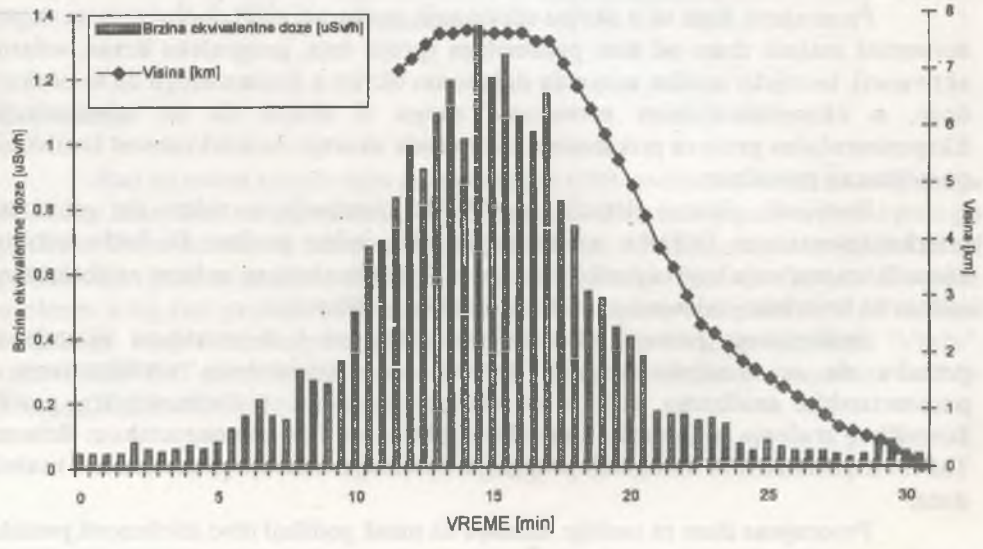
Rezultati merenja u odlasku (let 1) prikazani su grafički na slici 5., a rezultati merenja u povratku (let 2) na slici 6. Stubićima je prikazana brzina izmerene ekvivalentne doze. Ovakav prikaz je veoma ilustrativan, jer stubići ocrtavaju površinu koja predstavlja ukupnu ekvivalentnu dozu tokom merenog intervala. Na grafik su nanete prosečne vrednosti iz tri merenja brzine ekvivalentne doze na svakih 30 s.

Sve vrednosti izmerenih brzina ekvivalentnih doza tokom oba leta (po tri merenja na svakih 30 s) predstavljene su istovremeno na slici 7. i uporedjene sa teorijskim vrednostima iz reference [7], koje su korišćene kod proračuna. Date su fitovane krive za rezultate merenja u prvom i drugom letu pojedinačno. Dobijene krive su vrlo približne podacima iz reference [7], pa eksperiment potvrdjuje da korišćeni podaci u velikoj meri odgovaraju stvarnim vrednostima.

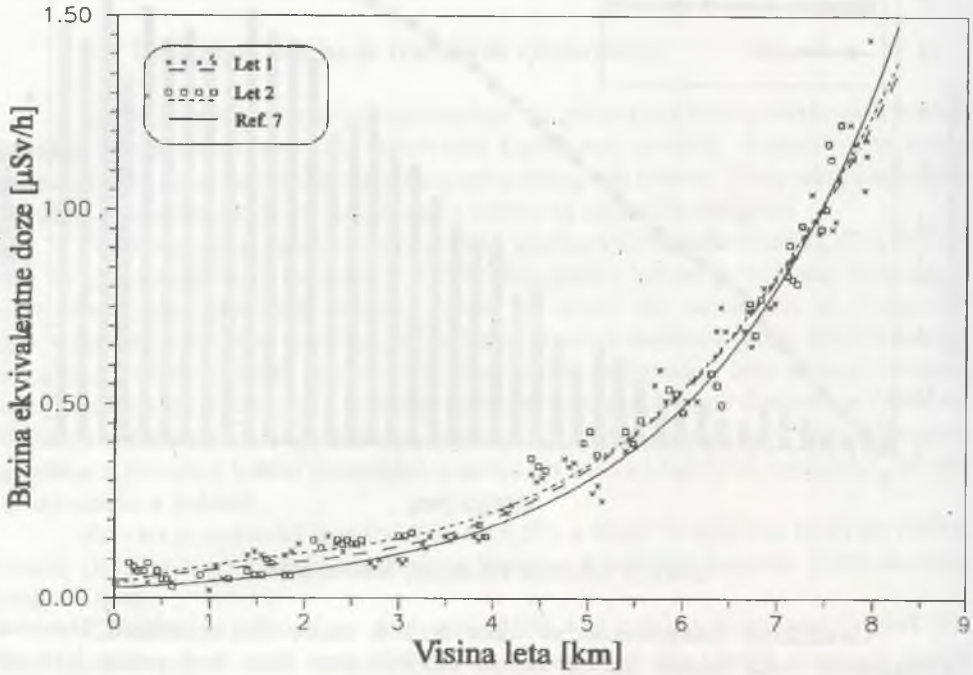


Slika 5. Merene vrednosti tokom leta 1

Grafičkom integracijom sa slika 5. i 6. može da se odredi izmerena ekvivalentna doza tokom letova. Jačina ekvivalentne doze kod prvog leta nije snimljena tokom čitavog puta, dok je kod drugog leta snimljena u celini. Ekvivalentna doza tokom drugog leta, odredjena na ovaj način, iznosi 0,396 μSv.



Slika 6. Merene vrednosti tokom leta 2



Slika 7. Uporedni prikaz izmerenih jačina ekvivalentne doze i teorijske krive korišćene kod proračuna

7. ZAKLJUČCI

Procenjene doze su u okviru očekivanih vrednosti, [7,8]. S obzirom na stepen zavisnosti realnih doza od niza parametara (profil leta, geografska širina, solarna aktivnost), teorijske analize mogu da daju samo okvire u kojima mogu da se očekuju doze, a eksperimentalnim proverama mogu ti opsezi da se minimiziraju. Eksperimentalna provera prikazana u ovom radu ukazuje na adekvatnost korišćenih podataka za proračune.

Postojeći planovi letenja u JAT-u obezbedjuju uslov da piloti na interkontinentalnim linijama ne mogu u toku jedne godine da budu izloženi kosmičkom zračenju koje bi prešlo nivo dozvoljen za lica koja se ne bave profesionalno radom sa izvorima jonizujućeg zračenja (5 mSv godišnje).

Preliminarna procena stepena neodredjenosti kod proračuna ukazuje na potrebu da se teorijske analize dopune eksperimentalnim verifikacijama i parametarskim analizama, koje bi se odnosile na promenu dozimetrijskog profila kosmičkog zračenja sa intenzitetom solarne aktivnosti i sa geomagnetskom širinom. Takvi eksperimenti bi omogućili potpuniju korelaciju izmedju procenjenih i realnih doza.

Procenjene doze za osoblje ukazuju na nizak godišnji nivo izloženosti putnika povišenoj radijaciji, jer samo u izuzetnim slučajevima poslovnih ljudi i diplomata može godišnji fond sati letenja da bude uporedljiv sa vremenom letenja profesionalnog

osoblja. Ipak, bilo bi interesantno i narednoj fazi istraživanja proceniti kolektivne doze za JAT-ove putnike, a verovatno bi se dobili rezultati koji su u saglasnosti sa rezultatima takvih analiza datim u literaturi, [3].

Godišnje doze od 1 - 2 mSv spadaju u sasvim prihvatljiv opseg, ali su uporedljive sa dozama kod mnogih slučajeva profesionalnog rada sa izvorima jonizujućeg zračenja, pa ima razloga da se ovo pitanje dalje razmatra. U tom smislu postoji široko polje mogućnosti korišćenja podataka JAT-ove medicine rada iz dužih intervala prošlosti. Iskustvo medicine rada iz Instituta za nuklearne nauke "Vinča" bi moglo da se prenese na analize višegodišnjih podataka o zdravstvenoj kontroli pilota i osoblja.

U nekim boljim uslovima delatnosti JAT-a u budućnosti, ukoliko bi se nastavilo sa analizama uticaja radijacije na putnike i osoblje aviona, nameću se NEKI MOGUĆI PRAVCI DALJIH ISTRAŽIVANJA (za koje mogu biti od koristi i rezultati ove studije):

1) Dozimetrijski eksperimenti slični eksperimentu iz ove studije na dugolinijskim letovima, kada postoje duži intervali leta na konstantnoj visini i veće visine krstarenja, sa ciljem da se dodje do kompletnijih i preciznijih podataka o dozimetrijskom profilu;
2) Slični eksperimenti kod letova na interkontinentalnim letovima (naročito u slučajevima kada se prelazi ekvator) sa ciljem da se upotpune podaci o promenama dozimetrijskog profila sa promenom geomagnetske širine;
3) Ponavljanje sličnih merenja u istim uslovima tokom dužih vremenskih perioda (tokom više godina), sa ciljem da se upotpune podaci o uticaju solarne aktivnosti na promene dozimetrijskog profila;
4) Složenija merenja (neutronski fluks, visokoenergetske čestice itd.) sa ciljem povećanja tačnosti i u cilju eventualnog povezivanja sa nekim naučnim programima.

Zahvalnost

Rad na ovom istraživanju je započet još 1989. godine, sa širim ambicijama, u skladu sa tadašnjim mogućnostima. U jednom periodu u radu je učestvovao i pokojni profesor Petar Marković (tako su nastale reference [13-15]), pa je ovo još jedna od prilika da se istakne izuzetan trag koji je ostavio iza sebe. Značajnu pomoć je svojim učešćem u toj fazi pružio i dipl. ing. Žika Petrović, generalni direktor JAT-a. Kod realizacije eksperimenta pomogli su mr Radojko Pavlović iz Instituta "Vinča", rukovodilac JAT-ove Letačke operative kap. Lazar Dević, kao i pomenuto osoblje aviona (Knežević, Dišljenković i Divić).

REFERENCE

[1] T.Foelshe: *"Radiation Exposure in Supersonic Transport"* Symp. on Supersonic Air Transport, Conf. 14/WP-SYMP-49. International Air Transport Association, Montreal, 1961. Washington, DC: NASA; NASA TN D-1383, 1961.

[2] T.Foelshe: *"Radiation Safety in High-Altitude Air Traffic"* J.Aircraft, v.14, pp. 1226- 1233, 1977.

[3] *"Radiobiological Aspects of the Supersonic Transport"* A report of the ICRP Task Group, Health Physics, v.12, pp. 209-226, 1966.

[4] H.W.Patterson et al.: *"The Flux and Spectrum of Cosmic-Ray Produced neutrons as a Function of Altitude"* Health Physics, v.2, pp. 69-72, 1959.

[5] M.Merker: *"The Contribution of Galactic Cosmic Rays to the Atmospheric Neutron Maximum Dose Equivalent as a Function of Neutron Energy and Altitude"* Health Physics, v.25, pp. 524-527, 1973.

[6] R.A.English, E.D.Liles: *"Iridium and Tantalium Foils for Spaceflight Neutron Dosimetry"* Health Physics, v.22, pp. 503-507, 1972.

[7] K.O'Brien, J.E.McLaughlin: *"The Radiation Dose to Man from Galactic Cosmic Rays"* Health Physics, v.22, pp. 225-232, 1972.

[8] J.E.Hewitt et al.: *"Ames Colaborative study of Cosmic Ray Neutrons: Mid-Latitude Flights"* Health Physics, v.34, pp. 375-384., 1978.

[9] K.Luszynski et al.: *"Radiation Exposure of Air Cargo Workers at the St.Louis International Airport"* Health Physics, v.35, pp. 523-527, 1978.

[10] T.Nakamura et al.: *"Altitude Variation of Cosmic-Ray Neutrons"* Health Physics, v.53, pp. 509-517, 1987.

[11] J.W.Wilson, L.W.Townsend: *"Radiation Safety in Commercial Air Traffic: A Need for Further Study"* Health Physics, v.55, pp. 1001-1003, 1988.

[12] Grupa autora: *"Priča o Jugoslovenskom Aerotransportu"*, Služba za informisanje i publikacije JAT-a, Beograd, 1987.

[13] D.Antić, P.Marković, Ž.Petrović: *"Procena doza kod osoblja putničkih aviona"* Zbornik XVII Jug. simp. za zaštitu od zračenja, s. 155-158, Beograd-Vinča, 1993.

[14] D.Antić, P.Marković, Ž.Petrović: *"Dozimetrija kosmičkog zračenja u putničkom avio saobraćaju JAT-a"*, Zbornik XXXVII Jug. konferencije ETAN-a, v.XI, s.177-182, Beograd, 1993.

[15] D.Antić, P.Marković, Ž.Petrović: *"Radiation Exposure of the Crew in Commercial Air Traffic"*, Proc. of Asia Congress on Radiation Protection (ACRP), Paper 170, pp. 1-4, Beijing, 1993.

[16] D.Antić, Ž.Petrović: *"Analysis of the Radiation Exposure of the Crews of Yugoslav Airlines"* Book of Abstracts of 1st Mediterranean Congress on Radiation Protection, p. 94, Athens, 1994.

ANALIZA I EKSPERIMENTALNA VERIFIKACIJA PRORAČUNATIH EKVIVALENTNIH DOZA KOD PILOTA

Dragoljub P. Antić

Rezime

Analizirani su letovi odabrane grupe od 17 pilota JAT-a tokom jedne kalendarske godine. Računate su pojedinačne doze za svaki let i ukupne godišnje doze za jednogodišnji period za svakog pilota. Radi verifikacije korišćenih podataka o dozimetrijskom profilu u atmosferi, prilikom jednog leta merena je zavisnost jačine doze od visine leta. Analizirana je i tačnost aproksimacije profila leta prilikom proračuna doze.

Ključne reči: Doza, dozimetrijski profil, kosmičko zračenje, put letenja, eksperimentalna verifikacija

ANALYSIS AND EXPERIMENTAL VERIFICATION OF THE CALCULATED DOSES FOR PILOTS

Dragoljub P. Antić

Abstract

The flights of selected pilots of Yugoslav Airlines (JAT) have been studied during one year. The flights of the 17 selected pilots from four groups (four JAT´s aircraft types: DC-9, DC-10, B-727, B-737) during one year have been studied. Data from 1989 are used. Calculations of the annual exposures and dose equivalents are based on the annual cosmic-ray dosimetric profile in the lower atmosphere for the solar minimum, taken from literature, [7]. The validity of the flight path aproximation in calculations is analysed.

A dosimetric experiment has been realized during a routine flight (the flight Belgrade - Podgorica - Belgrade). The results confirm the validity of the used model for calculations.

Key words: Dose, dosimetric profile, cosmic-ray, flight path, experimental verification

Glava VII

Informisanje i normativna delatnost

33.

IZLOŽENOST ZRAČENJU IZ PRIRODE-ZNAČAJ INFORMISANOSTI U FORMIRANJU SVESTI JAVNOG MNJENJA I SMANJENJU IZLAGANJA

Svetlana Milanović,
Institut za nuklearne nauke, VINČA
Centar za medicinsku zaštitu

Snežana Pavlović
Institut za nuklearne nauke, VINČA
Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine "ZAŠTITA"

Izvori jonizujućih zračenja iz prirodesu najznačajniji, mada ne privlače pažnju javnog mnenja u skladu sa značajem koji imaju za prirodu i čovekov život. Proizvedeni izvori zračenja su agresivnije prisutni u čovekovoj svakodnevnici, čovekovo su delo, najznačajnija su tekovina savremene civilizacije, tako da zauzimaju pijedestal svih čovekovih stremljenja i strahovanja u ovom trenutku.

Izvori jonizujućih zračenja iz prirode sve više privlače pažnju našeg naučnog stvaralaštva. Eksperimentalna istraživanja u tom domenu traže saradnju običnog čoveka, jer ulaze u njegov životni prostor. Tada se suočavamo sa istinama o kojima se ne vodi računa, koje imaju mariginalni značaj: običan čovek, tj. prosečan stanovnik, o jonizujućem zračenju iz prirode ne zna mnogo, a stav mu je idinferentan - do negativan. Indiferentnost i nezainteresovanost su opšte stanje "normalnog" odnosa prema jonizujućem zračenju iz prirode, a manifestacija negativnog stava je način reagovanja na iniciranu komunikaciju (npr. prilikom postavljanja trag detektora u porodičnim kućama).

Problem nastaje ako se isti ljudi koji se bave nuklearnom energijom bave jonizujućim zračenjima iz prirode, a zatim komuniciraju sa javnošću. Neminovna je negativna asocijativna povezanost.

Kako običnom čoveku govoriti o potencicjalnim opasnostima od jonizujućeg zračenja iz prirode, ako se pre toga insistiralo na bezopasnoj nuklearnoj energiji? Problemi se uslovnjavaju od samog početka - od potrebe objašnjenja zašto je nešto što je prirodno - štetno ili opasno (prefiks "potencijalno" gubi značaj ili se previdi). Da li tako dalekosežne posledice koje sa sobom nosi jonizujuće zračenje iz prirode mogu stvarno da se izbegnu postupcima koji se predlažu?

Moramo naglasiti da su ti potencijalni (ili precipirani) problemi, problemi našeg prostora, koji važe za našu zemlju, jer su Zapadne zemlje u potpunosti približile svom stanovništvu potrebu merenja prirodnog zračenja u čovekovom životnom prostoru, kao jedan od prvih koraka pri kupovini kuća.

Informisanje javnog mnenja o jonizujućem zračenju iz prirode i preuzimanje koraka za njegovo smanjenje, kao samostalnu akciju svakog stanovnika, bi trebalo da bude potreba našeg društva u narednom dugoročnom periodu. Stručnjaci iz tih oblasti u svoj profesionalni odnos moraju postepeno uključivati i potrebu da kod prezentiranja rezultata imaju na umu način prezentacije i za običnog-prosečnog stanovnika. Iz naučnih Izveštaja rezultati se moraju preseliti u svakom dostupne članke u dnevnim novinama, obogaćene ilustracijama i poredjenjima svakom znana. Neophodno je da se računa na čovekovu inertnost u prihvatanju novina, prvenstveno onih koje ne daju brze i direktno vidljive rezultate, kao što se mora imati na umu da proces sazrevanja traži permanentno angazovanje i potkrepljivanje.

Nedostatak znanja stvara i jedno posebno psihičko raspoloženje koje se manifstuje kroz isključivost i nefleksibilnost. Nprimer odbijanje mogućnosti da se izvesnim jednostavnim postupcima mogu smanjiti nivoi zračenja u životnoj sredini, i da je to od značaja za čovekovo zdravlje. To inicira potrebu stvaranja longitudinalnih naučnih programa u kojima će biti razradjeni postupci informisanja u dužem vremenskom periodu, a zatim evaluacije, kroz parametre: znanje, stavove, ponašanje, interesovanja i procene.

Stručnjaci iz ovog domena bi trebalo do kraja da ispoštuju svoju ulogu i pokazu zrelost u pristupu, vodeći računa da svojim stavom ne predimenzioniraju značaj problematike, (sa stanovišta običnog-prosečnog čoveka) u vremenu, u kojem su ugroženi osnovna čovekova egzistencija i vitalno zdravlje.

Literatura:

1. ICRP (1993), *Protection Against Radon-222 at Home and Work,* ICRP Publication 65. *Annals of the ICRP* 23(2), 1993.
2. UNSCEAR (1988), *Sources and Effects of Ionizing Radiation,* UNSCEAR 1988 Report to the General Assembly, with Annexes, United Nations, New York, 1988.
3. UNSCEAR (1993), *Sources and Effects of Ionizing Radiation,* UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, United Nations, New York, 1993.
4. Rot.N. (1973), *Osnovi socijalne psihologije*, Zavod za udžbenike SRS, Beograd, 1973.
5. Tomić V. (1992), *Evaluacija zdravstveno vaspitne škole* , Doktorska disertacija, Medicinski fakultet, Beograd 1992.

34.

RAZVOJ KONCEPCIJE SMANJENJA IZLAGANJA PRIRODNOM ZRAČENJU I NOVI MEĐUNARODNI STANDARDI U ZAŠTITI OĐ RADONA

Radojko Pavlović, Snežana Pavlović
Institut za nuklearne nauke, VINČA, PF 522,11001 Beograd
Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine "ZAŠTITA"

1. UVOD

Još u 16-tom veku je zapažena pojava visoke smrtnosti rudara u centralnoj Evropi, da bi tek krajem 19-tog veka bilo zaključeno da je rak pluća glavni uzrok ove pojave, za koji je tek 1924. godine prvi put predloženo da se pripiše dejstvu radona. Ova hipoteza je potkrepljena preciznim merenjima koncentracije radona u rudnicima Schneeberg-a, početkom 30-tih i rudnicima Jachymov-a, početkom 40-tih godina. Merene srednje vrednosti koncentracije radona u većini rudnika Schneeberg-a su bile u intervalu 70 - 120 kBq m^{-3}.

U poređenju sa situacijom u rudnicima, mogući uticaj radona na pojavu raka pluća u populaciji otkriven je mnogo kasnije. Prva merenja koncentracije radona za analizu mogućnog uticaja radona na celu populaciju vezana su za merenje koncentracija radona u vazduhu u spoljnoj sredini. Merenja koncentracije radona u vazduhu u zatvorenom prostoru u zgradama za stanovanje, izvršena su prvi put u 225 kuća za stanovanje u Švedskoj. Rezultati ovih merenja su publikovani 1956 godine. Ova studija, koju je inicirao Rolf Sivert, je pokazala da je u nekoliko kuća, građenih od poroznog betona bogatog ^{226}Ra, koncentracija radona bila mnogo veća nego u ostalim kućama. Rezultatima ove studije, međutim, nije posvećena značajna pažnja na internacionalnom nivou, jer se smatralo da je to lokalni švedski problem. Tek dvadesetak godina kasnije počinje intenzivnije merenje koncentracije radona u zatvorenom prostoru. Rezultati ovih merenja sumirani su u UNSCEAR izveštajima [1,2]. Poslednjih godina je interes za ovakva merenja u stalnom porastu.

Mnogobrojna merenja koncentracije radona u zatvorenom prostoru, kućama za stanovanje i radnim prostorijama, pokazala su vrlo velike varijacije koncentracije radona, od nekoliko Bq/m^{-3}, pa do 100 kBq/m^{-3} [3]. Ove ekstremno visoke koncentracije radona u kućama za stanovanje, koje su poredive sa koncentracijama radona u podzemnim rudnicima urana sa početaka vađenja rude urana, navode na zaključak da glavni doprinos radonu u vazduhu ne potiče od građevinskog materijala, već iz minerala tla na kojem su kuće sagrađene, što je vrlo bitno za planiranje efikasnih mera intervencije.

2. KARAKTERISTIKE RADONA

Za aspekt ozračivanja populacije značajna su dva izotopa radona, koja se nalaze u lancu raspada radionuklida iz prirode, ^{222}Rn - neposredni potomak ^{226}Ra, u lancu raspada ^{238}U, i ^{220}Rn - neposredni potomak ^{224}Ra, u lancu raspada ^{232}Th, kojeg, zbog svog porekla, obično nazivaju toron. Radon je plemenit gas, a oba ova njegova izotopa raspadom stvaraju izotope koji su u čvrstom stanju i čiji atomi predstavljaju jezgra kondenzacije ili čestice prašine u vazduhu.

Problem koji sa aspekta ukupnog ozračivanja populacije predstavlja ^{220}Rn (toron) mnogo je manje značajan, osim u nekim specijalnim slučajevima, npr. u predelima ekstremno bogatim ^{232}Th. Srednja godišnja efektivna doza od inhalacije torona i njegovih potomaka procenjena je na 70 μSv, a za inhalaciju ^{222}Rn (radona) i njegovih potomaka, na oko 1,2 mSv [2].

2.1. Veličine i jedinice

Biološki procesi značajni za procenu uticaja radona i njegovih potomaka na povećanje rizika pojave kancera pluća su vrlo kompleksni. Za definisanje relativno jednostavne relacije koja povezuje izlaganje radonu i rizik definisane su posebne veličine i njihove jedinice. Ove veličine se koriste uglavnom za uspostavljanje relativno jednostavne relacije između koncentracije kratkoživućih radonovih potomaka u vazduhu i odgovarajućeg rizika zbog njihove inhalacije.

Ukupna energija emitovanih α čestica za jedan atom u lancu raspada radona *(Potential alpha energy)*, ε_p, je ukupna energija svih α čestica emitovanih u procesu raspada tog atoma do stabilnog ^{210}Pb. U Tabeli 1. date su vrednosti ukupne energije emitovanih α čestica po jednom atomu, ε_p, i po jediničnoj aktivnosti, ε_p/λ_r, potomaka ^{222}Rn.

Tabela 1. [3]

Radionuklid	$T_{1/2}$	Ukupna energija emitovanih α čestica po atomu (MeV)	po atomu (10^{-12}J)	po 1 Bq (MeV)	po 1 Bq (10^{-10}J)
Potomci radona, ^{222}Rn					
^{210}Po	3,05 min	13,69	2,19	3615	5,79
^{214}Pb	26,8 min	7,69	1,23	17840	28,6
^{214}Bi	19,9 min	7,69	1,23	13250	21,2
^{214}Po	164 μs	7,69	1,23	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-6}$
Ukupno po Bq radona u ravnoteži				34710	55,6

Koncentracija ukupne energije emitovanih α čestica (*potential alpha energy concentration*), c_p, za bilo koju smešu kratkoživećih potomaka ^{222}Rn u vazduhu je suma energija emitovanih α čestica pri raspadu atoma kratkoživećih potomaka ^{222}Rn, po jedinici zapremine vazduha, odnosno

$$c_p = \sum_i c_i (e_{p,i} / \lambda_{r,i}), \qquad (1)$$

gde je c_i - zapreminska aktivnost i -tog kratkoživećeg radionuklida u lancu raspada ^{222}Rn. Jedinica za ovu veličinu je J m^{-3} ili MeV m^{-3}.

Koncentracija ukupne energije emitovanih α čestica bilo koje smeše potomaka ^{222}Rn u vazduhu može se izračunati preko **ravnotežne ekvivalentne koncentracije**, c_{eq} (*equilibrium equivalent concetration*) ^{222}Rn. Ravnotežna ekvivalentna koncentracija, koja odgovara neravnotežnoj smeši radonovih potomaka u vazduhu je specifična aktivnost radona u radioaktivnoj ravnoteži sa kratkoživećim potomcima čija je koncentracija ukupne energije emitovanih α čestica, c_p, jednaka kao za odgovarajuću ravnotežnu smešu. Jedinica za ravnotežnu ekvivalentnu koncentraciju je Bq m^{-3}. Faktor ravnoteže, F, se definiše kao količnik ravnotežne ekvivalentne koncentracije i koncentracije ^{222}Rn u vazduhu. Ovaj faktor je karakteristika neravnotežne smeše radona i njegovih potomaka u pogledu ukupne energije emitovanih α čestica.

Izlaganje (*exposure*), P, pojedinaca zbog inhalacije ^{222}Rn definiše se kao integral po vremenu koncentracije ukupne energije emitovanih α čestica u vazduhu, c_p, (*potential α energy exposure*, $P_p(T)$) ili ravnotežne ekvivalentne koncentracije, c_{eq} (*equilibrium equivalent exposure*, $P_{eq}(T)$), za ukupni period izlaganja, T, npr. za jednu godinu:

$P_p(T)$ se, još uvek, često izražava u istorijski prvoj uvedenoj jedinici *Working*

$$P_p(T) = \int_0^T c_p(t)\,dt, \quad [J\ h\ m^{-3}] \tag{2}$$

$$P_{eq}(T) = \int_0^T c_{eq}(t)\,dt, \quad [Bq\ h\ m^{-3}] \tag{3}$$

Level Month (WLM). U SAD je 1957. godine, kao uprošćen koncept za potrebe monitoringa i procene izlaganja rudara potomcima radona, razvijen koncept koncentracije ukupne energije radonovim potomcima emitovanih α čestica, tzv "*Working Level Concept*". 1 WL (*Working Level, WL*) je tada definisan kao koncentracija ukupne energije emitovanih α čestica radonovim potomcima u ravnoteži sa 3,7 kBq m^{-3} radona, što je oko $1{,}3 \cdot 10^8$ MeV m^{-3}. Pošto je veličina uvedena za specificiranje profesionalnog izlaganja, 1 mesec je računat kao 170 sati, pa je:

$$1\ WLM = 3{,}54\ mJ\ h\ m^{-3}\ ,\ odnosno\ 1\ mJ\ h\ m^{-3} = 0{,}282\ WLM \tag{4}$$

Procena godišnjeg izlaganja na osnovu koncentracije radona u zgradama za stanovanje i radnim prostorijama može se dobiti korišćenjem konverzionih faktora datih u Tabeli 2. [3]. Za najčešće korišćenu vrednost faktora ravnoteže od oko 0,4 i prosečno vreme provedeno na poslu (u zatvorenom prostoru) od oko 2000 sati godišnje, odnosno oko 7000 sati ukupno godišnje provedenih u zatvorenom prostoru [1,2], procenjena prosečna vrednost godišnjeg izlaganja, po jediničnoj koncentraciji radona (1 Bq m^{-3}) je $1{,}56 \cdot 10^{-3}$ mJ h m^{-3} ($1{,}26 \cdot 10^{-3}$ WLM).

Tabela 2. [3]

	Konverzioni koeficijenti
c_p / c_{eq}	$5{,}56 \cdot 10^{-9}$ (J m^{-3}) / (Bq m^{-3})
c_{eq} / c_p	$1{,}80 \cdot 10^{8}$ (Bq m^{-3}) / (J m^{-3})
P_p / P_{eq}	$5{,}56 \cdot 10^{-9}$ (J h m^{-3}) / (Bq h m^{-3}) $1{,}57 \cdot 10^{-6}$ WLM / (Bq h m^{-3})
P_{eq} / P_p	$1{,}80 \cdot 10^{8}$ (Bq h m^{-3}) / (J h m^{-3}) $6{,}37 \cdot 10^{5}$ (Bq h m^{-3}) / WLM

Za procenu štete izlaganja radonu i njegovim potomcima, iz mnogo razloga, korisno je definisati konverzione koeficijente za prelaz od izlaganja radonu na efektivnu dozu. Kako ICRP nije koristila dozimetrijski prilaz za radon, konverzioni koeficijenti su određeni direktnim poređenjem štetnih efekata od jedinične efektivne doze i štetnih efekata od jedinične ekspozicije radonu. šteta od jedinične efektivne doze

za profesionalno izložena lica procenjena je na oko $5,6 \cdot 10^{-2}$ Sv^{-1}, a za populaciju, oko $7,3 \cdot 10^{-2}$ Sv^{-1} [4]. Ova razlika je uglavnom posledica različitih funkcija raspodele radne i ukupne populacije u odnosu na uzrast. šteta od jedinične ekspozicije potomcima radona i za radnu i za ukupnu populaciju je oko $8,0 \cdot 10^{-2}$ $(J\ h\ m^{-3})^{-1}$. Prema ovako definisanoj konverzionoj konvenciji, zasnovanoj na jednakosti štetnih efekata, sledi da je izlaganje (ekspozicija) potomcima radona od 1 J h m^{-3} ekvivalentno efektivnoj dozi od 1,43 mSv za radnu populaciju, odnosno efektivnoj dozi od 1,10 mSv, za populaciju.

3. PRAKTIČNI ASPEKTI ZAŠTITE U KUĆAMA ZA STANOVANJE

Raspodela koncentracije radona, kako u kućama za stanovanje, tako i u radnim prostorijama je približno lognormalna, sa uočenom tendencijom da su gustine raspodele viših koncentracija nešto ispod vrednosti koje raspodela predvida. Ovakvu raspodelu definiše geometrijska srednja vrednost (*geometric mean, GM*) i geometrijska standardna devijacija (*geometric standard deviation, GSD*). Aritmetička srednja vrednost (AM) se, međutim, koristi za procenu srednje verovatnoće pojave štetnih efekata.

Naučni komitet Ujedinjenih nacija za efekte atomskog zračenja, na osnovu mnoštva podataka o meremim koncentracijama radona u zatvorenom prostoru je procenio da je na globalnom nivou, populaciono ponderisana aritmetička srednja vrednost koncentracije radona u zatvorenim prostorijama 40 Bq/m^{-3}, kao i da je prosečna vrednost faktora ravnoteže oko 0,4. Koncentracija radona u zatvorenom prostoru, međutim, zavisno od geoloških i klimatskih parametara, tehnologije gradnje, vrste građevinskog materijala i kulture stanovanja, jako se menja. U hiljadama kuća za stanovanje u Finskoj i švedskoj merene su vrednosti koncentracije radona i do nekoliko hiljada Bq/m^{-3}, dok su npr. najčešće vrednosti koncentracije radona u kućama za stanovanje u zemljama Evropske Ekonomske Zajednice u intervalu 20 - 50 Bq/m^{-3} [5]. Sistematska ispitivanja radnih prostorija, u kojima izlaganje nije definisano kao profesionalno, su i dalje vrlo retka, izuzimajući određene kategorije javnih objekata, kao što su škole i obdaništa.

Na problem radona u zatvorenim prostorima, kućama za stanovanje i radnim prostorijama, kao značajan i vredan pažnje, zbog visoke kolektivne doze, ali i mogućnih relativno visokih individualnih doza, ukazano je i u poslednjim Preporukama ICRP [4]. Ovaj problem Međunarodna komisija za zaštitu od zračenja je razmatrala uglavnom sa aspekta primene interventnih mera za smanjivanje izlaganja radonu. Naglašeno je da interventne mere treba da uključuju modifikaciju na kućama za stanovanje i radnim prostorijama ili izmenu načina ponašanja stanara. Komisija predlaže korišćenje akcionih - interventnih nivoa za donošenje odluke o preduzimanju interventnih mera.

Baveći se problemom na ovaj način, Komisija predlaže da se interventne mere sprovode za smanjivanje izlaganja radonovim potomcima najugroženijih članova populacije, ali ne i mere za smanjenje izlaganja cele populacije. Bilo koja akcija koja bi se morala sprovesti na najvećem delu ili celokupnom fondu stambenih zgrada ili radnih prostora jedne zemlje bila bi izuzetno skupa. Interventne mere moraju biti

optimizirane, kako bi smanjenje kolektivne doze imalo pozitivnu neto korist. Međutim, jasno je da se u nekim stambenim objektima ili radnim prostorijama mogu pojaviti i pojavljuju situacije sa povišenom koncentracijom radona, koje se uz relativno mala ulaganja i sasvim jednostavne mere mogu značajno smanjiti, pa takve intervencije treba uvek sprovesti. Ovo ukazuje da je osnovni problem definisanje interventnih nivoa, pri kojima intervencije za smanjivanje koncentracije radona i njegovih potomaka mogu ili moraju biti sprovedene.

Praktični aspekti monitoringa, pri čemu se uglavnom jedino meri koncentracija radona u zatvorenim prostorima, nalažu da se akcioni nivoi definišu upravo u odnosu na nivo koncentracije radona u vazduhu. U najnovijim preporukama ICRP za zaštitu od radona [3], Komisija, za razliku od prethodnih preporuka [6] i Preporuka Komisije Evropske Ekonomske Zajednice [5], predlaže da se pri definisanju interventnih nivoa ne pravi razlika između postojećih objekata za stanovanje i radnih prostora i objekata koji se grade ili planiraju. Treba naglasiti da se postavljeni akcioni nivoi za preduzimanje interventnih mera za zaštitu od radona i njegovih potomaka odnose na srednje godišnje koncentracije radona. Mere koje se preduzimaju moraju dovesti do značajnog smanjivanja izlaganja radonu. Nije dovoljno sprovesti samo male, marginalne intervencije za smanjivanje koncentracije radona neposredno ispod interventnog nivoa. Međutim, interventne mere, njihov obim i ozbiljnost, takođe, moraju biti optimizirane. Sasvim je sigurno da su interventne mere uvek opravdane, ako je koncentracija radona tolika da je prosečna godišnja efektivna doza od izlaganja radonu i njegovim potomcima veća od 10 mSv. Ako je dovoljno sprovesti jednostavne intervencije, akcioni nivoi se mogu postaviti i na niže vrednosti srednjih graničnih koncentracija radona. Komisija predlaže da nadležni organi ili institucije svake zemlje mogu postaviti akcione nivoe srednjih godišnjih koncentracija radona u zatvorenim prostorijama u opsegu 200 - 600 Bq/m^{-3}, pri kojima bi, za prosečno vreme provedeno u zatvorenim prostorijama od 7000 sati godišnje i srednjem faktoru ravnoteže od 0,4, srednja godišnja efektivna doza bila u intervalu 3 - 10 mSv, Tabela 3.

Tabela 3. [3]

Akcioni nivo (godišnja efektivna doza)	3 (mSv)	10 (mSv)
Akcioni nivo (koncentracija radona)	200 (Bq/m^{-3})	600 (Bq/m^{-3})
Godišnje izlaganje radonu	1,4 (MBq h m^{-3})	4,2 (MBq h m^{-3})
Godišnje izlaganje radonovim potomcima	3,11 (mJ h m^{-3})	9,33 (mJ h m^{-3})
	0,88 WLM	2,63 WLM

Komisija smatra da je za svaku zamlju korisno da definiše "radonom opterećene" oblasti u kojima koncentracija radona u zgradama veća od prosečnih

vrednosti koncentracija radona u zgradama za tu zemlju. Ovo omogućuje da se pažnja za zaštitu od radona usredsredi na ona mesta na kojima je izloženost populacije radonu i njegovim potomcima najveća i gde preduzete mere mogu dati najbolje rezultate. Jedan od mogućnih načina definisanja radonom opterećenih oblasti je da se za takve proglase one oblasti u kojima oko 1% zatvorenih prostora ima koncentracije radona 10 i više puta veće od prosečnih vrednosti koncentracije radona u zatvorenim prostorima te zemlje. Optimalan način definisanja radonom opterećenih oblasti za svaku pojedinačnu zemlju definisan je distribucijom koncentracije radona, kao i usvojenim akcionim nivoima.

Mada je poznavanje geoloških parametara za određivanje mogućnih radonom opterećenih oblasti značajno, naročito u početnim fazama realizacije nacionalnih programa za zaštitu od radona, jer je, obično, doprinos koncentracije radona od građevinskih materijala u odnosu na emanaciju radona iz tla vrlo mali [5], najpouzdaniji način njihovog preciznog definisanja je merenje koncentracije radona u reprezentativnom uzorku postojećih zgrada. Međutim, na mnogo praktičnih primera uočena korelacija izmedu geoloških parametara pojedinih oblasti i nivoa koncentracije radona u zatvorenim prostorima u toj oblasti, može biti od koristi, kako za precizno definisanje programa monitoringa radona i njegovih potomaka, tako i za donošenje odluka o prioritetima sprovođenja interventnih mera za zaštitu od radona. Takođe, poznavanje geoloških parametara i definisanje mogućnih radonom opterećenih oblasti može biti vrlo značajno pri definisanju urbanističkih programa svake zemlje ili regije, i to kako zbog izbegavanja, ukoliko je to moguće, gradnje stambenih i poslovnih zgrada u granicama radonom opterećenih oblasti, tako i zbog adekvatnog projektovanja i gradnje, ukoliko je ona neophodna u tim oblastima.

LITERATURA

[1] UNSCEAR (1988), *Sources and Effects of Ionizing Radiation,* UNSCEAR 1988 Report to the General Assembly, with Annexes, United Nations, New York, 1988.

[2] UNSCEAR (1993), *Sources and Effects of Ionizing Radiation,* UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, United Nations, New York, 1993.

[3] ICRP (1993), *Protection Against Radon-222 at Home and Work,* ICRP Publication 65. *Annals of the ICRP* 23(2), 1993.

[4] ICRP (1991), *1990 Recommendation of the International Commission on Radiological Protection,* ICRP Publication 60. *Annals of the ICRP* 21 (13).

[5] CEC (1992), Commission of the European Communities, Community Radiation Protection Legislation, *Commission Recommendation of 21 February 1990 on the Protection of the Public Against Indoor Exposure to Radon, (90/134 Euroatom),* DOC.XI-3539/92-EN, August 1992.

[6] ICRP (1983) *Principles for Limiting Exposure of the Public to Natural Sources of Radiation,* ICRP Publication 39, *Annals of the ICRP* 14(1), 1983.

RAZVOJ KONCEPCIJE SMANJENJA IZLAGANJA PRIRODNOM ZRAČENJU I NOVI MEĐUNARODNI STANDARDI U ZAŠTITI OD RADONA

Radojko Pavlović, Snežana Pavlović

Rezime

Nova naučna saznanja o dejstvu zračenja na biološki materijal, odnosno na tkiva, organe i ljudski organizam, u poslednjoj dekadi, dovela su do značajnih promena u standardima zaštite od jonizujućeg zračenja. Posebno značajan momenat u novim Preporukama Međunarodne komisije za zaštitu od zračenja (ICRP) i Standardima Međunarodne agencije za atomsku energiju (IAEA) je mnogo detaljnija analiza koncepta ograničavanja izlaganja jonizujućem zračenju iz prirode. U ovom radu su prikazane nove preporuke i standardi za ograničavanje izlaganju radonu (^{222}Ra) i njegovim potomcima u prostorima za stanovanje i radnoj sredini.

Ključne reči: radon, granice izlaganja

EVOLUTION OF THE CONCEPT OF REDUCTION THE EXPOSURE LEVELS TO NATURAL RADIATION AND THE NEW INTERNATIONAL STANDARDS IN PROTECTION OF RADON

Radojko Pavlović, Snežana Pavlović

Abstract

The new scientific information in last decade have caused significant changes in radiation protection standards. The subject of reduction the exposure to natural radiation is now regulated in more details. Some new aspects in protection against Rn exposure at home and work are disscussed.

Keywords: radiation protection standards, radon, exposure limits

AUTORI

Feriz Adrović (195)
Dragan Antić (123)
Dragoljub Antić (395)
Ivana Avramović (191)
M. Baucal (291)
Đorđe Bek Uzarov (205, 231)
Radoman Benderać (113, 205,221)
Ištvan Bikit (263, 291)
Fedor Boreli (299)
Ljiljana Čonkić (263, 291)
Olivera Čuknić (231)
Jelena Dangić (57)
Adam Dangić (41, 57, 321)
Stanko Dapčević (257,299)
Ivana Đujić (373)
Mara Đukanović (387)
Gordana Đurić (249)
Suzana Erić (67)
Dragutin Fortuna (201)
Vojin Gordanić (57, 83)
Ivan Gržetić (3)
B. Jakupi (195)
Rade Jelenković (3)
Slobodan Jovanović (299)
Ranko Kljajić (95)
Dragana Kostić (213, 231)
Milojko Kovačević (191)
Miodrag Krmar (263)
Dragana Krstić (205, 231)
Ljiljana Mijatović (119)
Svetlana Milanović (411)
D. Milić (195)
Milan Milojević (321)
Sava Milovanović (123)
Radosav Mitrović (95)
Dragoslav Nikezić (145, 205, 213, 231,335, 361)
Milan Orlić (201)
Gordana Pantelić (221, 315)
B. Pavlić (291)
Radojko Pavlović (135, 413)
Snežana Pavlović (335, 411, 413)
Aleksandar Perić (135)
Ilija Plećaš (135)
Dragana Popović (249)
Mirjana Radenković (95, 305)
Vukašin Radmilović (241)
D. Ristić (221)
Jaroslav Slivka (263, 291)
Slobodanka Stanković (113)
Ana Stanković (113)
Srboljub Stanković (191)
Boško Telenta (123)
Sladjan Timotijević (83)
Dragana Todorović (249)
Ivan Trajić (119)
P. Vasić (195)
Draginja Veličković (191)
M. Vesković (291)
Dušica Vučić (361)
Dragan Vujasinović (201)
Perko Vukotić (257, 299)
Dubravka Vuković (305)
Biljana Zrnić (67)
Vojislava Šipka (95, 305)
Marina Šokčić-Kostić (123)
Zora Žunić (191)