



ЗБОРНИК РАДОВА



XXXII Симпозијум Друштва за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

**04-06. октобар 2023. године
Будва, Црна Гора**

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



ЗБОРНИК РАДОВА

XXXII СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ

**Будва, Црна Гора
04-06. октобар 2023. године**

**Београд
2023. године**

**RADIATION PROTECTION ASSOCIATION OF
SERBIA AND MONTENEGRO**



PROCEEDINGS

XXXII SYMPOSIUM RPASM

**Budva, Montenegro
4th-6th October 2023**

**Belgrade
2023**

ЗБОРНИК РАДОВА

XXXII СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ

04-06.10.2023.

Издавачи:

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

За извршног издавача:

Проф. Др Снежана Пајовић

Уредници:

Др Милица Рајачић
Др Ивана Вуканац

ISBN 978-86-7306-169-6

© Institut za nuklearne nauke „Vinča“

Техничка обрада:

Милош Ђалетић, Милица Рајачић

Електронско издање:

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

Година издања:

Октобар 2023.



Овај Зборник као и сви радови у њему подлежу лиценци:

Creative Commons Attribution-NonCommercial-NoDerivatives 4.0 International License, <https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>

Ова лиценца дозвољава само преузимање и дистрибуцију дела, ако/док се правилно назначавача име аутора, без икаквих промена дела и без права комерцијалног коришћења дела.

**XXXII СИМПОЗИЈУМ ДРУШТВА
ЗА ЗАШТИТУ ОД ЗРАЧЕЊА
СРБИЈЕ И ЦРНЕ ГОРЕ**

Будва, 04-06.10.2023. године

Организатори:

ДРУШТВО ЗА ЗАШТИТУ ОД ЗРАЧЕЊА СРБИЈЕ И ЦРНЕ ГОРЕ

Институт за нуклеарне науке „Винча“

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

Центар за екотоксиколошка испитивања Подгорица д.о.о, ЦЕТИ

Организациони одбор:

Председник:

Ивана Вуканац

Чланови:

Милица Рајачић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Александра Милатовић, ЦЕТИ, Подгорица, Црна Гора

Никола Свркота, ЦЕТИ, Подгорица, Црна Гора

Ранко Зекић, ЦЕТИ, Подгорица, Црна Гора

Гордана Пантелић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Милош Ђалетић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Никола Кржановић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Наташа Сарап, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Јелена Станковић Петровић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Ивана Коматина, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Јелена Влаховић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Зорица Обрадовић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Игор Челиковић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Јелена Крнета Николић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

Александра Самолов, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Београд

**XXXII СИМПОЗИЈУМ ДРУШТВА
ЗА ЗАШТИТУ ОД ЗРАЧЕЊА
СРБИЈЕ И ЦРНЕ ГОРЕ**

Будва, 04-06.10.2023. године

Научни одбор:

др Владимир Удовичић, Институт за физику, Земун, Универзитет у Београду

др Војислав Станић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Универзитет у Београду

др Душан Мрђа, Природно математички факултет, Универзитет у Новом Саду

др Ивана Вуканац, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Универзитет у Београду

др Игор Челиковић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Универзитет у Београду

др Јелена Крнета Николић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Универзитет у Београду

др Јелена Пајић, Институт за медицину рада Србије "Др Драгомир Карајовић",
Београд

др Јелица Грујић, Институт за медицинска истраживања, Универзитет у Београду

др Јована Николов, Природно математички факултет, Универзитет у Новом Саду

др Маја Еремић-Савковић, Директорат за радијациону и нуклеарну сигурност и
безбедност Србије

др Марија Јанковић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Универзитет у Београду

др Мирјана Ђурашевић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Универзитет у
Београду

др Мирјана Раденковић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Универзитет у
Београду

др Невена Здјеларевић, ЈП Нуклеарни објекти Србије, Београд

др Оливера Митровић Ајтић, Институт за медицинска истраживања, Универзитет у
Београду

др Софија Форкапић, Природно математички факултет, Универзитет у Новом Саду

др Србољуб Станковић, Институт за нуклеарне науке „Винча“, Универзитет у
Београду

Организацију су помогли:

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

Мике Петровића Аласа 12-14
11351 Винча, Београд, Србија

<https://www.vin.bg.ac.rs/>

Центар за екотоксиколошка испитивања Подгорица д.о.о, ЦЕТИ

Булевар Шарла де Гола бр. 2
81000 Подгорица, Црна Гора

<https://mne.ceti.me/>

МОЈ ЛАБ

ул. Московска бр. 26
81000 Подгорица, Црна Гора

<https://mojlab.me/>

ФАРМАЛАБ

Булевар Михаила Јалића бр. 8
81000 Подгорица, Црна Гора

<https://farmalab.me/>

ГЛОСАРИЈ ДОО

ул. Војисављевића бр. 76
81000 Подгорица, Црна Гора

<https://www.glosarij.me/me/pocetna>

Излагачи:

Canberra Packard Central Europe GmbH.

Wienersiedlung 6

2432 SCHWADORF, Austria

Phone: +43 (0)2230 3700-0

Fax: +43 (0)2230 3700-15

Web: <http://www.cpce.net/>

LKB Vertriebs doo Beograd-Palilula

Свијићева 115

11120 Beograd, Srbija

Tel: +381 (0)11 676 6711

Faks: +381 (0)11 675 9419

Web: www.lkb.eu

Овај Зборник је збирка радова саопштених на XXXII Симпозијуму Друштва за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе који је одржан у Будви, Црна Гора, 04-06.10.2023. године. Радови су према обрађеној проблематици груписани у једанаест секција. Сви радови у Зборнику су рецензирани од стране Научног одбора, а за све приказане резултате и тврдње одговорни су сами аутори.

*Југословенско друштво за заштиту од зрачења основано је 1963. године у Порторожу, а од 2005. носи име "Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе". На XXXII Симпозијуму, ове године обележавамо веома значајан јубилеј - **60 година организоване заштите од зрачења на нашим просторима.***

Од оснивања, Симпозијуми Друштва за заштиту од зрачења представљају прилику да се кроз стручни програм прикажу резултати истраживања у области заштите од зрачења, представе различите области примене извора и генератора зрачења, анализирају актуелна дешавања, размене искуства са колегама из региона, дефинишу проблеми и правци даљег унапређивања наше професионалне заједнице.

Поред тога, Симпозијуми друштва представљају и прилику да у мање формалном маниру сретнемо старе и упознамо нове пријатеље и колеге, обновимо старе и започнемо нове професионалне сарадње.

Ауторима и коауторима научних и стручних радова саопштених на XXXII Симпозијуму се захваљујемо на уложеном труду и настојању да квалитетним радовима заједно допринесемо остваривању циљева и задатака Друштва и наставимо традицију дугу импозантних 60 година.

Посебно се захваљујемо свима који су подржали одржавање овог Симпозијума.

Свим члановима Друштва, сарадницима и колегама честитамо овај значајан јубилеј!

Организациони одбор XXXII Симпозијума ДЗЗСЦГ

**ОПШТИ ПРОБЛЕМИ
ЗАШТИТЕ ОД ЗРАЧЕЊА**

**GENERAL PROBLEMS OF
RADIATION PROTECTION**

OPRAVDANOST, OPTIMIZACIJA I REFERENTNI NIVOI U SITUACIJAMA POSTOJEĆEG IZLAGANJA

Mirjana RADENKOVIĆ¹, Mirjana ČUJIĆ¹, Stefan RAFAJLOVIĆ²

- 1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča"- Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*
- 2) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Departman za fiziku, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*

Autor za korespondenciju: Mirjana RADENKOVIĆ, mirar@vinca.rs

SAŽETAK

U radu su razmatrani zahtevi za upravljanje situacijama postojećeg izlaganja a naročito primena principa opravdanosti i optimizacije zaštite, odnosno uvođenje referentnih nivoa za uspostavljanje kontrole nad ovim situacijama. Diskutovane su preporuke iz standarda MAAE i regulative Evropske unije, koje su zasnovane na nalazima Međunarodnog komiteta za zaštitu od zračenja, kao i relevantne odredbe propisa Republike Srbije. Istaknut je značaj donošenja dugoročne Strategije upravljanja situacijama postojećeg izlaganja, sa odgovarajućim akcionim planovima za implementaciju.

Uvod

Koncept situacija postojećeg, vanrednog i planiranog izlaganja je uveden tokom poslednje izmene osnovnih standarda sigurnosti Međunarodne agencije za atomsku energiju (MAAE), a zasnovan je na nalazima i preporukama Međunarodnog komiteta za zaštitu od zračenja (*International Commitee on Radiation Protection -ICRP*) [1]. Osnovne postavke i preporuke za situacije postojećeg izlaganja (*existing exposure situations*) su date u dokumentu MAAE: Zaštita od zračenja i sigurnost izvora zračenja: međunarodni osnovni standardi sigurnosti [2], gde su opisani koncept, opšti zahtevi i zahtevi vezani za izloženost radnika i stanovništva jonizujućem zračenju. Ovaj dokument, sa pratećim standardima MAAE je poslužio kao baza za izradu evropske regulative, pre svega Direktive EU/CD 2013/59/Euroatom [3], sa kojom se usaglašavanju nacionalni propisi zemalja članica i zemalja kandidata za prijem u Evropsku uniju.

Situacije postojećeg izlaganja se u navedenim dokumentima definišu kao situacije u kojima izlaganje, značajno sa aspekta zaštite od zračenja, već postoji u trenutku donošenja odluke o njegovoj kontroli, tako da nema potrebe hitnog delovanja. U ovim situacijama dolazi do izlaganja: usled zaostale radioaktivnosti iz prethodnih aktivnosti ili nakon vanrednih događaja; usled postojanja radionuklida u robi, hrani za ljude, hrani za životinje, vodi za piće, građevinskim materijalima. itd, nakon prethodnih aktivnosti ili vanrednih događaja; i iz prirodnih izvora zračenja.

Situacije izlaganja usled prethodnih aktivnosti odnose se na kontaminaciju, zaostalu iz radijacionih delatnosti koje su obavljane bez regulatorne kontrole ili u skladu sa zahtevima koji su različiti od važećih, i obuhvataju situacije nakon prestanka rada rudnika uranijuma, industrije mineralnih đubriva i proizvodnje fosforne kiseline, itd. Situacije nastale nakon okončanja vanrednih događaja (Černobilj, Fukušima, itd) kada nivoi radioaktivnosti robe, vode i hrane ostanu povišeni u odnosu na vrednosti pre događaja, takodje se smatraju situacijama postojećeg izlaganja. Izlaganja iz prirodnih izvora zračenja obuhvataju izloženost Rn-222, Rn-220 i potomcima, i to na radnim mestima gde nema planiranog izlaganja, kao i

izlaganja stanovništva zbog dužeg zadržavanja u određenim objektima. U ovu kategoriju spadaju i prirodni radionuklidi u hrani, hrani za životinje, vodi za piće i robi, kao i izlaganje materijalima u kojima je sadržaj radionuklida iz niza uranijuma ili torijuma ispod 1 Bq/g, a K-40 ispod 10 Bq/g. Izlaganja posada avio- i kosmičkih letelica kosmičkom zračenju takođe spadaju situacije postojećeg izlaganja iz prirodnih izvora.

U svim navedenim slučajevima, sistem zaštite od zračenja se primenjuje na kategorije stanovništva i radnika ali ima uticaja i na zaštitu životne sredine (Slika1).



Slika 1: Sistem zaštite od zračenja se uspostavlja za sve situacije izlaganja i za sve kategorije izloženosti.

Osim postavljanja regulatornog okvira, odgovornost regulatornih tela je i da obezbede identifikaciju situacija postojećeg izlaganja, imenuju zainteresovane strane (*stakeholders*) i utvrde odgovornosti. Pored toga, potrebno je ispitati opravdanost aktivnosti remedijacije ili sanacije i obezbediti optimizaciju zaštite, a na osnovu odgovarajućih procena izlaganja utvrditi i referentne nivoe za implementaciju. Veoma značajan aspekt upravljanja ovim situacijama je transparentnost, podizanje svesti, i pravovremeno obaveštavanje javnosti o planiranim aktivnostima u svim fazama.

Za inicijalno uređivanje ove oblasti, u Republici Srbiji je planirano donošenje Strategije upravljanja situacijama postojećeg izlaganja. Strategija će se odnositi na period od 7 godina, a njeni elementi su definisani članom 12. Zakona o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti [4]. Ovaj strateški dokument je u poslednjoj fazi pripreme, a nacrt je pripreman uz tehničku pomoć Centra za politiku i pravnu pomoć Evropske unije, radi usklađivanja sa zahtevima obavezujućim za zemlje članice.

Identifikacija situacija postojećeg izlaganja

Identifikacija situacija postojećeg izlaganja je obaveza regulatornog tela u oblasti radijacione i nuklearne sigurnosti i bezbednosti, koje priprema nacionalnu strategiju upravljanja situacijama postojećeg izlaganja i obezbeđuje sprovođenje politike u ovoj oblasti. Zakon [4] propisuje identifikaciju situacija postojećeg izlaganja na osnovu dokaza da postoji izlaganje usled:

- 1) zaostale kontaminacije nastale prethodnim delatnostima ili kao posledica vanrednog događaja koji ne mogu da se zanemare sa stanovišta zaštite od zračenja;
- 2) povećane radioaktivnosti koja je posledica prisustva prirodnih izvora zračenja;
- 3) korišćenja potrošačkog proizvoda koji sadrži prirodne izvore zračenja.

Regulatorno telo je u obavezi da bliže propiše mere zaštite izloženih radnika i pojedinaca od štetnog uticaja jonizujućeg zračenja u situacijama postojećeg izlaganja. Strategija bi trebalo da identifikuje ove situacije razmatrajući dostupne informacije, preliminarna merenja, procene i analize. Podaci mogu poticati iz nacionalnog monitoringa životne sredine, iz monitoringa određene industrije ili aktivnosti sa specifičnim zahtevima, iz izveštaja o izvršenim poslovima zaštite od zračenja, iz naučnih i stručnih projekata i publikacija, itd. Između ostalih, u okviru tehničke saradnje, naši predstavnici su učestvovali u nekoliko nacionalnih i regionalnih projekata МААЕ u vezi sa ovom temom [5]:

- Unapređenje nacionalnih kapaciteta i infrastrukture za sistematski pristup kontroli izloženosti stanovništva radonu;
- Bezbedno upravljanje otpadom, zatvoreni izvori, dekomisija i aktivnosti na sanaciji lokacije u Institutu Vinča;
- Uspostavljanje nacionalnog registra nuklearnih materijala, radioaktivnih izvora, otpada i izloženosti i jačanje drugih relevantnih funkcija regulatornog tela;
- Unapređenje regulatorne infrastrukture i zakonodavnog sistema;
- Jačanje regulatorne infrastrukture za radijacionu sigurnost;
- Unapređenje primene principa zaštite od zračenja za kontrolu izloženosti stanovništva;
- Unapređenje monitoringa i procene životne sredine za zaštitu od zračenja u regionu;
- Unapređenje regulatorne i metodološke infrastrukture potrebne da bi se obezbedila radijaciona sigurnost u industrijama koje rade sa prirodnim radioaktivnim materijalima.

Nakon evaluacije podataka i procene rizika, postavljaju se konačni ciljevi i način postizanja ciljeva sa realnim rokovima implementacije u datim uslovima, primenjujući gradirani pristup. Ovde je od neprocenjivog značaja postojanje ovlašćenih i kompetentnih stručnih organizacija kao i uključivanje zainteresovanih strana u sve aktivnosti. Zainteresovane strane mogu biti lokalne vlasti, državna uprava u oblasti zaštite zdravlja, zaštite životne sredine i primene energije, ovlašćeni tehnički servisi, kompanije iz relevantnih oblasti, stručnjaci za zaštitu od zračenja, itd.

Na osnovu velikog broja dostupnih podataka u Republici Srbiji, uzimajući u obzir i odredbe Zakona, koje daju nešto drugačiju definiciju situacija postojećeg izlaganja u odnosu na pomenute međunarodne standarde i preporuke, moguće je razmatrati sledeće situacije: napušteni rudnik uranijuma, , kontaminacija nakon bombardovanja osiromašenim uranijumom, otvorena jalovišta, napušteni izvori, radon u objektima i na radnim mestima, aktivne industrije proizvodnje mineralnih đubriva, građevinski materijali itd. Svaka od ovih situacija se ispituje sa aspekta procene rizika za sve kategorije izlaganja i na osnovu utvrđenih kriterijuma, identifikuju se situacije postojećeg izlaganja, koje zahtevaju određenu kontrolu i program aktivnosti.

Opravdanost i optimizacija zaštite, referentni nivoi

Sistem zaštite od zračenja podrazumeva primenu osnovnih principa: opravdanost, optimizaciju i ograničenje doza, za sve situacije izlaganja radnika, stanovništva i životne sredine. Procena opravdanosti i optimizacije nameravanih aktivnosti za uspostavljanje

kontrole nad situacijam postojećeg izlaganja je od najvećeg značaja, s obzirom na raznovrsnost i sveprisutnost situacija postojećeg izlaganja. Osnovni alat za procenu opravdanosti kontrole i primene sistema zaštite jeste radiološka karakterizacija potrebna za adekvatnu procenu rizika za izložene kategorije. Pored toga, pri odlučivanju je neophodno uzeti u obzir i ALARA princip, procenu izloženosti radnika koji bi morali biti uključeni u saniranje stanja, upravljanje radioaktivnim otpadom, namenu prostora i prostorno planiranje, zaštitu životne sredine, etičke, sociološke i ekonomske faktore, itd. Osnovi kriterijum za opravdanost i optimizaciju aktivnosti u okviru odabrane strategije zaštite jeste da u svakom konkretnom slučaju, uspostavljanje kontrole nad situacijom donosi više koristi nego štete (*cost-benefit analysis*) imajući u vidu navedene okolnosti i faktore. Postojanje više ovlašćenih tehničkih servisa, kompetentnih u ovoj oblasti, u Republici Srbiji, [6] ukazuje na značajne kapacitete za sprovođenje navednih procena i aktivnosti.

Kada je utvrđena opravdanost odabrane strategije zaštite, potrebno je odabrati najefikasniji način implementacije, imajući u vidu i ostale prisutne hazarde, osim radiološkog. Dok se optimizacija radijacione sigurnosti i zaštite od zračenja u situacijama planiranog izlaganja vrši uvodjenjem tzv. ograničenja doze (*dose constraints*), za situacije vanrednog i postojećeg izlaganja se uvode tzv. referentni nivoi (*reference levels*). Standardi MAAE definišu referentni nivo kao nivo doze ili nivo rizika iznad koga se smatra neprikladnim planirati izlaganje, a ispod koga se i dalje primenjuju mere optimizacije radijacione sigurnosti i zaštite od zračenja [2].

Optimizovane strategije zaštite bi trebalo da obezbede da se očekivane doze uvek nalaze ispod referentnog nivoa. U slučaju odlučivanja o potrebi kontrole određene situacije postojećeg izlaganja, postojeći nivoi se porede sa referentnim, a optimizacija se primenjuje i u slučajevima kada su ti nivoi ispod referentnih vrednosti [7]. Referentne vrednosti su značajne i sa aspekta prioritizacije planiranih mera zaštite.

Vrednost izabrana za referentni nivo će zavistiti od preovladjujućih okolnosti za razmatranu situaciju postojećeg izlaganja i biće ograničavajuća za odabir opcija optimizacije. ICRP preporučuje opseg od dva reda veličine za granične doze uključujući i referentne nivoe. Referentni nivoi 1-20 mSv se preporučuju kada izlaganje koristi pojedincu, npr pojedincu iz stanovništva u slučaju situacija postojećeg izlaganja, dok se referentni nivo od 20-100 mSv mogu primenjivati izuzetno u slučaju izlaganja izvorima van regulatorne kontrole ili za izlaganja zaostaloj radioaktivnosti nakon okončanja vanrednog događaja. Referentni nivoi iznad 100 mSv za akutno ili izlaganje u periodu do godinu dana, smatraju se neprihvatljivim za situacije postojećeg izlaganja [1, 2].

Referentne nivoe bi trebalo postavljati što niže, imajući u vidu da bi svaka situacija postojećeg izlaganja vremenom trebalo da se približi normalnom stanju [8]. U slučaju situacija zaostale kontaminacije usled prethodnih aktivnosti, referentni nivoi se uspostavljaju u okviru odgovarajućih planova sanacije ili remedijacije, za svaki konkretan slučaj pojedinačno imajući u vidu njegove specifičnosti. Generalno, izbor referentnog nivoa zavisi od prirode izlaganja i praktičnosti smanjenja ili prevencije izlaganja, očekivane koristi za pojedince ili društvo, izbegavanja opcija koje mogu biti socijalno neprihvatljive i razmatranja međunarodnog iskustva i primera dobre prakse. Preporučljivo je uspostaviti odgovarajuću metodologiju za utvrđivanje referentnih nivoa, koje utvrđuje, prati i revidira kompetentno nacionalno regulatorno telo.

Razmatranje optimizacije i uvođenja referentnih nivoa odnosi se pre svega na zaštitu stanovništva u situacijama postojećeg izlaganja, zasnovanu na proceni izlaganja reprezentativnih pojedinaca iz različitih kategorija stanovništva, za sve puteve izlaganja. Izlaganje radnika usled prethodnih aktivnosti se odnosi na kategoriju radnika koji učestvuju u

aktivnostima sanacije ili remedijacije, a kod prirodnih izvora, odnosi se na rad sa materijalima u kojima je sadržaj radionuklida iz niza uranijuma ili torijuma iznad navedenih granica. Nakon odgovarajućih procena rizika, neke situacije se mogu tretirati kao situacije planiranog izlaganja, kada podležu regulativi za radijacione delatnosti.

Iako se sistem zaštite od zračenja u situacijama postojećeg izlaganja primarno odnosi na zaštitu stanovništva, ne može se izostaviti ni uticaj na životnu sredinu, koja obuhvata biljni i životinjski svet. S obzirom na rizike i promene do kojih može doći usled štetnih efekata jonizujućeg zračenja, implementacija određenih aktivnosti se mora posmatrati integralno i u kontekstu održivosti. Pri odabiru opcija za kontrolu nad situacijama postojećeg izlaganja, potrebno je uzeti u obzir i zahteve vezane za korišćenje prirodnih resursa, odlaganje materija u životnu sredinu, biodiverzitet, itd. Postojanje, nagomilavanje i transfer radioaktivnosti kroz životnu sredinu, se mora razmatrati na duži vremenski period, u kontekstu radioloških karakteristika prisutnih radionuklida. U toku je široka diskusija koju vode međunarodne organizacije predvođene ICRP, IAEA i Svetskom zdravstvenom organizacijom (World Health Organization - WHO) u vezi revizije postojećeg sistema zaštite od zračenja, te bi se mogla očekivati poboljšanja i po pitanju zaštite biljnog i životinjskog sveta.

Zaključak

Opravdanost i optimizacija zaštite, kao i uspostavljanje odgovarajućih referentnih nivoa koji se u nekim situacijama razmatraju za svaki slučaj pojedinačno, neophodni su za uspostavljanje kontrole nad situacijama postojećeg izlaganja. Za upravljanje ovim situacijama potreban je sveobuhvatni pristup koji uključuje odgovarajući zakonski okvir i strategiju, kao i postojanje tehničkih i drugih kapaciteta za implementaciju planiranih aktivnosti. Od najvećeg značaja je jasna raspodelu odgovornosti, transparentnost i uključivanje svih zainteresovanih strana u proces. Pored zaštite stanovništva i radnika, potrebno je imati u vidu da u situacijama postojećeg izlaganja, može biti ugrožena i životna sredina. Stalno unapređenje znanja i razmena iskustava u okviru nacionalnih i međunarodnih istraživačkih i stručnih projekata u velikoj meri doprinose napretku u ovoj oblasti.

Zahvalnica

Rad je podržan od strane Ministarstva nauke, tehnološkog razvoja i inovacija, Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/ 200017).

Literatura

- [1] International Commission on Radiological Protection (ICRP), The 2007 Recommendations of the ICRP, Publication 103, Pergamon Press, Oxford and New York, 2007.
- [2] International Atomic Energy Agency (IAEA), Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards, GSR Part 3, IAEA, Vienna, 2011
- [3] European Commission (EC), EU Council directive 2013/59/Euratom, Brussels, 2013.
- [4] Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti, Službeni glasnik RS, br. 95/2018 i 10/2019, Beograd, 2018.
- [5] <https://www.srbatom.gov.rs/srbatommm/program-tehnicke-pomoci-i-saradnje-maae/>
- [6] <https://www.srbatom.gov.rs/srbatommm/ovlascena-pravna-lica/>

- [7] D.A.Cool. Review of the ICRP system of protection: the approach to existing exposure situations, *Annals of the ICRP* 44(1S)179-187, 2015.
- [8] H. Ogino, N. Hamada and D. Sugiyama. Application of Reference Levels in the Existing Exposure Situations –Towards Stepwise Reduction of Radiation Dose Depending on Situations of Contamination, *Journal of the Atomic Energy Society of Japan* 55(2)106–110, 2013.

JUSTIFICATION, OPTIMIZATION AND REFERENCE LEVELS IN EXISTING EXPOSURE SITUATIONS

Mirjana RADENKOVIĆ¹, Mirjana ČUJIĆ¹, Stefan RAFAJLOVIĆ²

- 1) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*
- 2) *Faculty of Mathematics and Natural Sciences, University of Novi Sad, Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*

ABSTRACT

The requirements for managing situations of existing exposure, and especially the implementation of the principles of justification and optimization of protection, and introduction of reference levels for establishing control over these situations have been discussed in the paper. Recommendations given by the IAEA standards and EU regulations, which are based on the findings of the International Committee on Radiation Protection were considered as well as certain provisions of the regulations of the Republic of Serbia. The need and importance of adopting a long-term strategy for managing existing exposure situations, with appropriate action plans for implementation, was highlighted.

METROPOEM PROJEKAT – METROLOGIJA ZA HARMONIZACIJU MERENJA ZAGADJIVAČA ŽIVOTNE SREDINE U EVROPI

Ivana VUKANAC¹, Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹, Mirjana DJURAŠEVIĆ²,
Igor ČELIKOVIĆ², Milica RAJACIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za Zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*
- 2) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za Nuklearnu i Plazma Fiziku, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*

Autor za korespondenciju: Ivana VUKANAC, vukanac@vin.bg.ac.rs

SAŽETAK

MetroPOEM (Metrology for harmonization of measurements of environmental pollutant in Europe) je trogodišnji evropski projekat finansiran u okviru EMPIR programa. Globalna težnja ka što manjem zagađenju (European Green Deal's ambition for zero pollution) zahteva razvoj visoko osetljivih tehnika kojima se mogu detektovati niske koncentracije polutanata. Masena spektrometrija je najznačajnija tehnika za određivanje neradioaktivnih, ali i dugoživućih radioaktivnih polutanata. Glavni cilj ovog projekta je da uspostavi vezu između radiometrijskih i masenih tehnika merenja polutanata. Takođe, cilj projekta je i smanjenje mernih nesigurnosti, limita detekcije, ali i razvoj novih referentnih materijala kojima bi se obezbedila sledivost mernih procedura.

Uvod

MetroPOEM (21GRD09) je trogodišnji evropski projekat čija je realizacija otpočela u novembru 2022. u okviru programa EMPIR (*European Metrology Programme for Innovation and Research*). Koordinator projekta je PTB (*Physikalisch-Technische Bundesanstalt of Germany*), Nemačka, a konzorcijum čine 22 nacionalne metrološke institucije iz 13 zemalja, uključujući i Institut za nuklearne nauke "Vinča".

Evropska inicijativa, težnja ka što manjem zagađenju (*European Green Deal's ambition for zero pollution*) zahteva razvoj visoko osetljivih tehnika merenja veoma niskih koncentracija polutanata. Ova težnja će se realizovati kroz više evropskih strategija, a u skladu sa direktivama datim u *Basic Safety Standards* (BSS) [1, 2]. U ovim strategijama se navodi i potreba za unapređenjem kvaliteta monitoringa vazduha, vode i zemljišta, kao i nedostatak odgovarajućih lanaca sledivosti i adekvatne kontrole kvaliteta, što može dovesti u pitanje uporedivost i pouzdanost rezultata merenja.

Da bi se u životnoj sredini detektovali polutanti, bilo da su u pitanju radioaktivni ili stabilni izotopi, moraju se koristiti brze, osetljive i pristupačne analitičke procedure. Najčešće se za određivanje stabilnih polutanata koristi masena spektrometrija, ali je u ovoj oblasti uočeno da postoje izazovi pri validaciji ovih metoda usled nedostatka metrološki sledivih multi-elementalnih referentnih materijala, dok je dostupnost single-element sertifikovanih referentnih materijala veoma ograničena. Sa druge strane, za određivanje radioaktivnih polutanata različitim radiometrijskim metodama i tehnikama dostupnost sertifikovanih referentnih materijala je bolja, ali su limiti detekcije mnogo veći nego pri merenju masenom spektrometrijom.

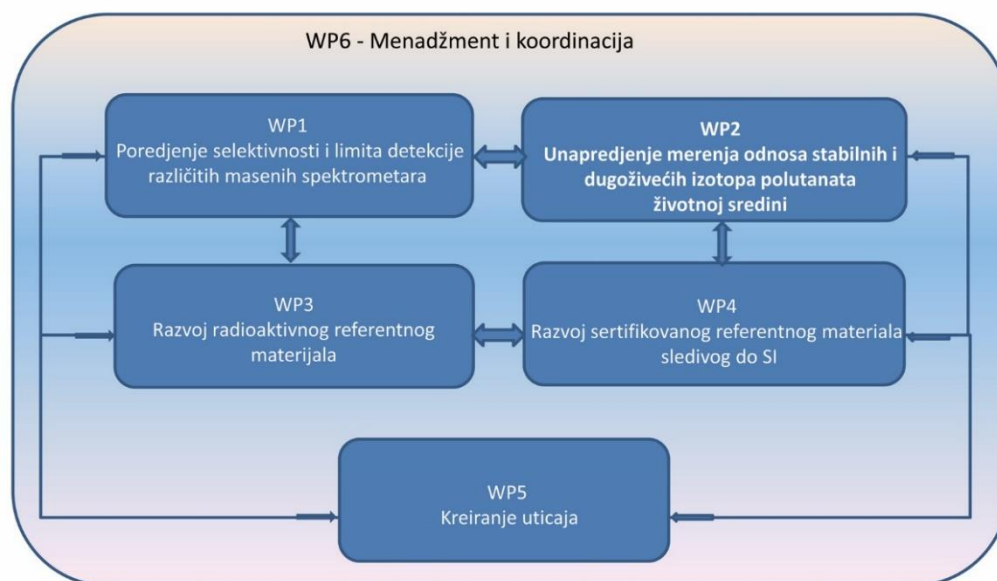
Ciljevi projekta

Glavni cilj MetroPOEM projekta upravo i jeste prevazilaženje razlika između radiometrijskih tehnika i masene spektrometrije, a sve u cilju karakterizacije i detekcije dugoživućih radionuklida i stabilnih elemenata u niskim koncentracijama, poređenjem i povezivanjem ove dve tehnike merenja, što će posleđično dovesti do značajnog poboljšanja mernih nesigurnosti i limita detekcije. Glavni cilj projekta biće postignut kroz realizaciju sledećih zadatah ciljeva:

- Utvrditi i uporediti selektivnost i limite detekcije različitih tipova masenih spektrometara za detekciju pojedinih radioaktivnih polutanata (npr. U, Np, Pu, Am) pomoću izotopskih referentnih materijala i/ili radioaktivnih standarda.
- Razviti metode za merenje izotopskog odnosa sledive do SI, koristeći multi-collector ICP-MS i, na osnovu kreiranih odgovarajućih procedura fokusiranih na stabilne izotope (na pr. Li, B, Cr, Cd, Ni, Sb, Pb, U), primeniti razvijeni metod na merne sisteme koji su češće u upotrebi (ICP-MS/MS, ICP-QMS). Dati preporuke za procesiranje i tretman uzoraka, formiranje budžeta merene nesigurnosti i, ako je moguće, kvantifikovati tzv. “*mass bias*”.
- Razviti dva radioaktivna referentna materijala (RM) sa polutantima (npr. U, Np, Pu, Am) za potrebe sprovođenja međulaboratorijskog poređenja u okviru prvog radnog paketa.
- Implementirati i validovati prethodno razvijene metode za merenje izotopskog odnosa korišćenjem napravljenog tečnog sertifikovanog referentnog materijala koji je sertifikovan za isti stabilni element polutant sa najmanjom mogućom nesigurnošću.
- Pospešiti usvajanje tehnologije i merne infrastrukture razvijene u okviru projekta učinivši ih dostupnima formiranjem veza između lanca nabavke (npr. akreditovanih laboratorija), organizacija koje razvijaju standarde, međunarodnih organizacija i krajnjih korisnika, kao što su npr. agencije koje sprovode kampanje monitoringa.

Radni paketi

Ciljevi i zadaci MetroPOEM projekta realizovaće se kroz četiri tehnička radna paketa (WP) i dva prateća u kojima su definisane aktivnosti rukovođenja projektom i različite vrste aktivnosti kojima će rezultati projekta postati vidljivi široj stručnoj zajednici, kao i drugim organizacijama i institucijama na čiji bi rad rezultati projekta mogli imati uticaja, kao što je prikazano na Slici 1.



Slika1: Radni paketi projekta

WP1 – Poređenje selektivnosti i limita detekcije različitih masenih spektrometara

Cilj ovog radnog paketa je da ustanovi mogućnosti različitih masenih spektrometara korišćenjem standarda - rastvora radionuklida. Posebna pažnja je posvećena merenjima u okolini limita detekcije, mogućnostima eliminisanja šuma, poređenju sa brojačkim tehnikama baziranim na radioaktivnom raspadu. WP1 će biti fokusiran na radioaktivne polutante (^{237}Np , 234 , 235 , 236 , ^{238}U , 239 , ^{240}Pu , ^{241}Am) za koje se zna da se mogu meriti masenom spektrometrijom u koncentracijama bliskim propisanim regulatornim limitima. Odabir radionuklida izvršen je uzimajući u obzir opsege perioda poluraspada, bliskost masenih brojeva - što zahteva fino razdvajanje u spektru u cilju što preciznijeg određivanja odnosa izotopa ($^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$, $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$), odnosno porekla detektovanog polutanta. Iako je korišćenje masene spektrometrije za određivanje koncentracije radionuklida sve prisutnije, za potrebe kalibracije instrumenta i validaciju metoda, mala je dostupnost standardizovanih rastvora koji bi se mogli koristiti u tu svrhu.

WP2 – Unapređenje merenja odnosa stabilnih i dugoživećih izotopa polutanata u životnoj sredini

Cilj ovog radnog paketa je razvojnovih i unapređenje postojećih metoda za merenje odnosa stabilnih i dugoživećih izotopa masenom spektrometrijom sa mernim nesigurnostima takvim da je omogućeno pouzdano razdvajanje izotopa bliskih masenih brojeva. Za proveru postavljenih i unapređenih metoda merenja koristiće se elementi bitni za određivanje u životnoj sredini kao što su Li, B, Cr, Cd, Ni, Sb, Pb, U.

WP3 – Razvoj radioaktivnog referentnog materijala

U okviru ovog radnog paketa pripremiće se dva RM u tečnom i čvrstom stanju, koji će sadržati sledeće radionuklide: ^{237}Np , 224 , 235 , 236 , ^{238}U , 239 , ^{240}Pu , ^{241}Am , a moguće i ^{226}Ra i ^{90}Sr ako bude potrebe. Ovi RM će biti iskorišćeni u dva međulaboratorijska poređenja, pri čemu će merenja biti vršena na masenim spektrometrima opisanim u WP1. Analiza rezultata pružiće uvid u varijacije parametara u različitim laboratorijama učesnicama kao što su limit detekcije, procedura pripreme uzoraka, vreme potrebno za izdavanje rezultata, različite opise budžeta merne nesigurnosti.

Raspoloživost radioaktivnih RM ili sertifikovanih RM (SRM) za uzorke iz životne sredine koji se mogu meriti masenom spektrometrijom je veoma ograničena. Osim toga, karakteristike koji se najčešće navode za radioaktivne RM/SRM ne sadrže relevantne parametre, kao što su na primer odnosi izotopa. Ovaj podatak je u masenoj spektrometriji važan zbog određivanja uticaja matriksa materijala na rezultat merenja. WP3 će biti fokusiran na pripremanje dva RM koji bi se kasnije mogli koristiti i za QC merenja.

WP4 – Razvoj sertifikovanog referentnog material sledivog do SI

U okviru ovog radnog paketa proizvešće se SRM za neorganske polutante životne sredine, dizajniran u skladu sa potrebama krajnjih korisnika koji sprovode rutinska merenja u okviru kampanja analize i monitoringa životne sredine.

WP5 – Kreiranje uticaja

Aktivnosti u okviru ovog radnog paketa biće usmerene na komunikaciju sa svim zainteresovanim strukturama, diseminaciju rezultata projekta preko *Stakeholder Committee*, web stranice projekta <https://www.npl.co.uk/euramet/metropoem>, društvenim mrežama i sl. Osim toga, rezultati projekta će biti publikovani u radovima u peer-review časopisima, saopštavani na odgovarajućim konferencijama, radionicama i obukama.

Planirani rezultati

Ovaj projekat je osmišljen tako da ostvarenim planiranim rezultatima doprinese ispunjavanju zahteva definisanim u evropskim direktivama [1, 2] i drugim relevantnim dokumentima. Pre svega, MetroPOEM će doprineti harmonizaciji merenja radioaktivnih i stabilnih polutanata u životnoj sredini. Biće proizvedena dva nova referentna materijala za potrebe validacije mernih procedura, ali i mogućnosti smanjivanja mernih nesigurnosti rezultata. Planirana istraživanja će obezbediti validovane i sledive analitičke pristupe merenjima polutanata, odnosa izotopa, određivanju porekla polutanta. Na ovaj način će se kompletirati metrološka sledivost i harmonizacija metoda merenja.

MetroPOEM će unaprediti metrološki sistem i ustanoviće infrastrukturu koja će direktno podržavati EU direktive regulatorne okvire. Zajedno, sve će doprineti boljoj zaštiti životne sredine.

Rezultati ovog projekta moći će da se iskoriste u različitim poljima uključujući i rutinski monitoring u realnom vremenu, geološko datiranje, studije klimatskih promena, ali i u delatnostima kao što su nuklearna forenzika, dekomisija u nenuklearnim industrijama. Osim toga, saradnja evropskih laboratorija uspostavljena u okviru ovog projekta će se nastaviti i po završetku projekta.

Zaključak

Realizacijom zadatih ciljeva MetroPOEM projekt će umnogome doprineti proširivanju mogućnosti u oblasti monitoringa životne sredine, uvođenjem visoko osetljivih metodologija merenja, u isto vreme i time u budućnosti smanjiti troškove kontrole polutanata. Korišćenje masene spektrometrije u rutinskoj kontroli polutanata, omogućiće brzo određivanje više elemenata (i radioaktivnih i stabilnih) merenjem jednog uzorka. Razvoj validovanih i sledivih metoda, obezbediće veću pouzdanost rezultata u svim oblastima gde su oni od interesa.

U cilju povećanja vidljivosti projekta, kao i u cilju upoznavanja zainteresovanih institucija, regulatornih tela i sl. sa radom na projektu, postignutim rezultatima - aktuelni rezultati, status započetih aktivnosti i planirane aktivnosti na projektu MetroPOEM, relevantne informacije se

objavljaju na svakih šest meseci i dostupni su na web stranici projekta <https://www.npl.co.uk/euramet/metropoem>.

Zahvalnica

This project 19GRD09MetroPOEM has received funding from the EMPIR programme co-financed by the Participating States and from the European Union's Horizon 2020 research and innovation programme. 19GRD09MetroPOEM denotes the EMPIR project reference.

Istraživanje je finansijski podržano i od Ministarstva nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (br. 451-03-47/2023-01/200017

Literatura

- [1] European Council (EC). Council Directive 2013/51/Euratom of 22 October 2013 laying down requirements for the protection of the health of the general public with regard to radioactive substances in water intended for human consumption, Off. J. Eur. Union L296; 2013, 12-21.
- [2] European Council (EC). Council Directive 2013/59/Euratom of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation; Chapter VIII – Public Exposures, Off. J. Eur. Union L13; 57, 2014.
- [3] MetroPOEM Project website <https://www.npl.co.uk/euramet/metropoem>

METROPOEM – METROLOGY FOR THE HARMONISATION OF MEASUREMENTS OF ENVIRONMENTAL POLLUTANTS IN EUROPE

Ivana VUKANAC¹, Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹, Mirjana DJURAŠEVIĆ²,
Igor ČELIKOVIĆ², Milica RAJAČIĆ¹

- 1) *"Vinča Institute of Nuclear Sciences", Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Radiation and Environmental Protection Department, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade, Serbia*
- 2) *"Vinča Institute of Nuclear Sciences", Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Laboratory for Nuclear and Plasma Physics, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

The MetroPOEM project (Metrology for harmonization of measurements of environmental pollutants in Europe) is a three-year European project financed under the EMPIR program.

The global aspiration towards as little pollution as possible (European Green Deal's ambition for zero pollution) requires the development of highly sensitive techniques that can detect low concentrations of pollutants.

Mass spectrometry is the most important technique for determining non-radioactive, but also long-lived radioactive pollutants. The main goal of this project is to establish a link between radiometric and mass pollutant measurement techniques. Also, the goal of the project is the reduction of measurement uncertainties, detection limits, but also the development of new reference materials that would ensure the traceability of measurement procedures.

**РАДИОЕКОЛОГИЈА И ИЗЛАГАЊЕ
СТАНОВНИШТВА**

**RADIOECOLOGY AND POPULATION
EXPOSURE**

RADIOLOŠKA KARAKTERIZACIJA POLJOPRIVREDNOG ZEMLJIŠTA NA TERITORIJI VOJVODINE

Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹, Sofija FORKAPIĆ¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹,
Jan HANSMAN¹, Kristina DEMIRHAN¹, Dušan MRĐA¹, Predrag KUZMANOVIĆ^{1,2}

- 1) *Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet, Departman za fiziku, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad, Srbija*
- 2) *Akademija strukovnih studija Šabac, Odsek za medicinske i poslovno-tehnološke studije, Laboratorija za fiziku, Šabac, Srbija*

Autor za korespondenciju: Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ, jovana.knezevic@df.uns.ac.rs

SAŽETAK

Procena izloženosti stanovništva jonizujućem zračenju uključuje ispitivanje sadržaja radionuklida u zemljištu, usled izlaganja spoljašnjem zračenju i zbog činjenice da je zemljište medijum iz kog radionuklidi prelaze u biljke i ulaze u lance ishrane, doprinoseći unutrašnjoj dozi. Pored primordijalnih radionuklida koji su već prisutni u zemljinoj kori, koncentracije aktivnosti radionuklida mogu biti povećane usled korišćenja fosfatnih đubriva i depozicijom veštačkih radionuklida. U ovom radu je određena radioaktivnost 7 uzoraka poljoprivrednog zemljišta sa teritorije Vojvodine. Na lokacijama uzorkovanja merene su jačine ambijentalnog ekvivalenta doze, dok su koncentracije aktivnosti radionuklida u uzorcima merene gama-spektrometrijskom metodom pomoću HPGe detektora. Određene su godišnje efektivne doze od spoljašnje izloženosti i ingestije biljnih kultura gajenih na ispitivanim zemljištima. Takođe, merene su brzine ekshalacije radona aktivnim uređajem RAD7. Rezultati su upoređeni sa sličnim studijama u zemlji i svetu.

Uvod

Zemljište je značajan deo ekosistema svake države i osnov agrarne proizvodnje. Autonomna pokrajina Vojvodina se nalazi na severu Republike Srbije i predstavlja ostatke nekadašnjeg Panonskog mora. Na ovoj teritoriji su se u prirodnom procesu stvaranja zemljišta, odnosno pedogenozom, stvorila vrlo plodna zemljišta, od kojih je dominantan tip černozem, a zastupljeni su i rimska crnica, aluvijalna zemljišta, les, itd. Privreda Vojvodine je upravo zasnovana na poljoprivrednoj proizvodnji i preradi poljoprivrednih proizvoda. Što se tiče zemljišta na teritoriji Vojvodine, ona su nastala pretežno na sedimentnim stenama, dok su zemljišta na Fruškoj gori i Vršaćkim planinama pretežno nastala na metamorfnim stenama i jednim delom na magmatskim stenama. Pedogenetski faktori i različiti intenziteti njihovog delovanja doveli su do raznolikog zemljišnog pokrivača u Vojvodini, pa su u ovom regionu zastupljene ritske crnice, močvarnoglejna i halomorfna zemljišta, černozemi, areonosoli, itd [1].

Svako zemljište, bez obzira na tip i način korišćenja, sadrži određen udeo radionuklida, kako prirodnih, koji su dominantno primordijalnog porekla, tako i veštačkih, koji su u najvećoj meri dospeli na ovu teritoriju nakon Černobiljskog akcidenta (pretežno radionuklid Cs-137) [2]. Poznavanje koncentracije radionuklida u zemljištu je bitno kako sa aspekta monitoringa radioaktivnosti, transporta radionuklida u atmosferi, modelovanja njihove distribucije, tako i sa stanovišta procene radiološkog rizika za populaciju [3]. Radiološki rizik se može procenjivati u slučaju spoljašnjeg izlaganja, ali i u slučaju unutrašnjeg izlaganja usled ingestije biljnih kultura gajenih na ispitivanom zemljištu.

U ovom radu, ispitana je koncentracija aktivnosti radionuklida u 7 uzoraka poljoprivrednog zemljišta sa teritorije Vojvodine metodom gama spektrometrije. Na mestima uzorkovanja vršena su dozimetrijska merenja. Takođe, određena je ekshalacija radona merenja aktivnim uređajem RAD7. Na osnovu dobijenih vrednosti, procenjen je radiološki rizik koji potiče od spoljašnjeg izlaganja gama zračenju, kao i od ingestije biljnih kultura gajenih na analiziranim zemljištima.

Materijal i metode

Izbor mernih lokacija i uzorkovanje

Uzorkovanje je vršeno na sedam lokacija na teritoriji Vojvodine, koji pripadaju Bačkoj regiji. Lokacije sa kojih su uzeti uzorci su poljoprivredna zemljišta u mestima Bački Gračac, Veternik (Novi Sad), Kljajićevo, Bezdan, Doroslovo, Ratkovo i Bački Petrovac. U daljem tekstu uzorci su označeni rednim brojevima po navedenom redosledu.

Uzorkovanje je vršeno prema metodi IAEA TRS 295 [4], pri čemu je dubina sa koje su uzimani uzorci bila (0–5) cm (površinski sloj). Vremenski uslovi u trenutku uzorkovanja su bili takvi da u prethodnom periodu nije bilo padavina, dok je površina sa koje je uzorkovana bila ravna i prekrivena slabom vegetacijom. Sa svake lokacije je uzet pojedinačni uzorak.

Opis metoda

Koncentracije aktivnosti radionuklida merene su standardnom metodom gama spektrometrije IAEA TRS 295 [4], germanijumskim detektorom visoke čistoće (HPGe) i relativne efikasnosti 33 %. Po stizanju u laboratoriju, uzorci su sušeni na 105°C do konstantne mase, a potom su pakovani u cilindrične kutije dimenzija prečnika 6,7 cm i visine 6,6 cm. Masa uzoraka je bila od 200 g do 250 g. Uzorci su ostavljeni mesec dana, kako bi se postigla sekularna radioaktivna ravnoteža između Ra-226 i njegovih potomaka (Pb-214 i Bi-214). Vreme merenja uzoraka je iznosilo oko 20 sati. Određene su koncentracije aktivnosti prirodnih radionuklida Ra-226, Th-232, K-40, U-238 i veštačkog radionuklida Cs-137. Koncentracije aktivnosti drugih radionuklida su bile ispod granice detekcije. Vrednosti koncentracija aktivnosti pomenutih radionuklida su određene na osnovu pikova gama zračenja datih u radu [5].

Na svakoj lokaciji gde je vršeno uzorkovanje, urađena su i dozimetrijska merenja jačine ambijentalnog ekvivalenta doze, uređajem INSPECTOR+ [6] na visini 1 m od površine zemljišta. Ovaj uređaj je namenjen za detekciju niskih nivoa zračenja i može se koristiti za merenje alfa, beta i gama zračenja.

Pored gama spektrometrijskih i dozimetrijskih merenja, vršena su i merenja ekshalacije radona iz analiziranih uzoraka zemljišta. U te svrhe, korišćena je merna komora (eksikator) zapremine 6,20 l (ukupne efektivne zapremine 6,58 l), koja je spojena sa aktivnim radonskim uređajem RAD7, čineći zatvoren sistem. Zapremina komore je birana tako da zadovolji uslov da je zapremina uzorka manja od 10 % ukupne efektivne zapremine mernog sistema, kako bi se mogli zanemariti efekti povratne difuzije. Svaki uzorak je meren najmanje 96 sati, koliko je potrebno da se dostigne ravnotežna koncentracija radona u ovom sistemu. Detaljan postupak određivanja ravnotežne koncentracije radona na osnovu izmerenih vrednosti, kao i proračuna koeficijenta emanacije i masene ekshalacije dat je u referenci [7].

Procena radiološkog rizika

Jačina ambijentalnog ekvivalenta doze na rastojanju 1 m, koja potiče od gama zračenja, izražena u nGy/h, određena je korišćenjem relacije [8]:

$$(1) \quad D = 0,462 \cdot A_{Ra} + 0,604 \cdot A_{Th} + 0,471 \cdot A_K$$

gde su A_{Ra} , A_{Th} i A_K koncentracije aktivnosti Ra-226, Th-232 i K-40, respektivno, izražene u Bq/kg.

Godišnja efektivna doza (izražena u mSv) koja se procenjuje za pojedinca koji bi 20% vremena godišnje (1752 h od ukupno 8760 h godišnje) bio izložen dozi gama zračenja prema relaciji (1), određena je prema relaciji [8]:

$$(2) \quad E = 0,7 \cdot 0,2 \cdot 8760 \cdot D$$

gde je 0,7 Sv/Gy konverzioni faktor za transfer jačine ambijentalnog ekvivalenta doze u godišnju efektivnu dozu.

Pored spoljašnjeg izlaganja gama zračenju, razmatrana je i godišnja efektivna doza koja bi poticala od ingestije biljnih kultura gajenih na analiziranom zemljištu. S obzirom da je u pitanju poljoprivredno zemljište na teritoriji Bačke, odabrane biljne kulture su bile žitarice, korenasto i lisnato povrće. Korišćenjem transfer faktora datih u [9], izračunate su koncentracije aktivnosti koje usvaja biljka, a potom su godišnje efektivne doze određene prema relaciji:

$$(3) \quad E_{ing} = unos [Bq] \cdot dozni\ koeficijent [mSv/Bq]$$

pri čemu se unos računa tako što se godišnja potrošnja određene biljne kulture pomnoži sa koncentracijom aktivnosti za svaki radionuklid (koja je dobijena korišćenjem transfer faktora). Prosečne godišnje potrošnje odabranih biljnih kultura preuzete su iz Ankete o potrošnji domaćinstava Srbije za 2021. godinu [10]. Vrednosti doznih koeficijenata su preuzete iz dokumenta [8] i iznosile su 280 nSv/Bq za ^{226}Ra , 230 nSv/Bq za ^{232}Th , 6,2 nSv/Bq za ^{40}K , 13 nSv/Bq za ^{137}Cs i 45 nSv/Bq za ^{238}U .

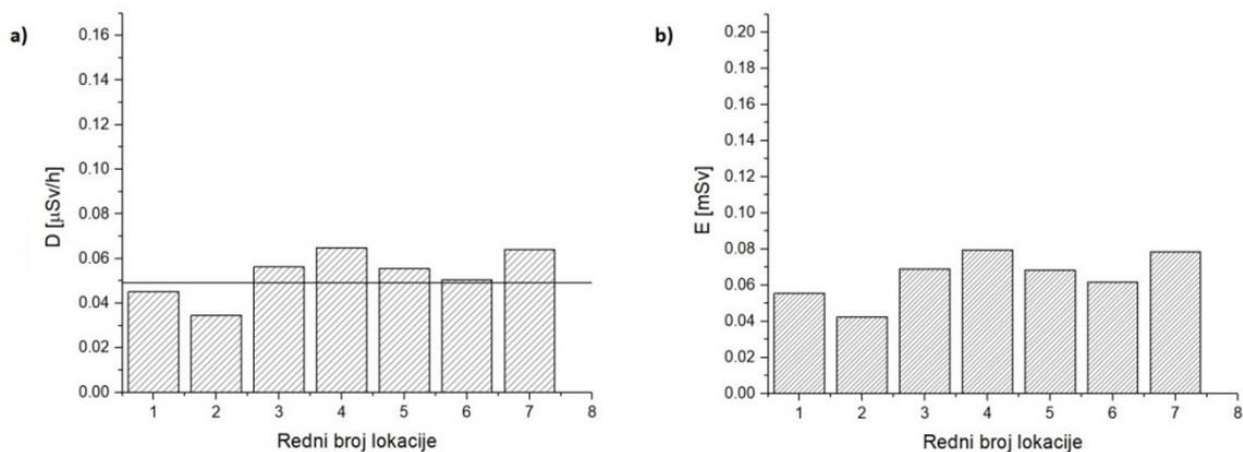
Rezultati

Izmerene koncentracije aktivnosti radionuklida Ra-226, Th-232, K-40, U-238 i Cs-137 date su u Tabeli 1, zajedno sa rezultatima dozimetrijskih merenja jačine ambijentalnog ekvivalenta doze H [$\mu\text{Sv/h}$] na lokacijama gde je vršeno uzorkovanje. Procenjene jačine ambijentalnog ekvivalenta doze (sa obeleženom prosečnom vrednošću od 49 nGy/h [8]) i godišnje efektivne doze (relacije 1 i 2) grafički su prikazane na Slici 1.

Vrednosti ravnotežnih koncentracija radona, emanacionog koeficijenta i brzine masene ekshalacije radona su date u Tabeli 2.

Tabela 1: Rezultati gama spektrometrijskih i dozimetrijskih merenja

RB uzorka	A [Bq/kg]					H [μ Sv/h]
	K-40	Cs-137	Ra-226	Th-232	U-238	
1	429 \pm 10	3,23 \pm 0,20	25,7 \pm 0,8	25,5 \pm 1,0	35,0 \pm 2,1	0,130
2	342 \pm 15	2,08 \pm 0,14	17,2 \pm 0,6	20,4 \pm 0,8	17 \pm 3	0,122
3	451 \pm 8	3,56 \pm 0,16	34,6 \pm 0,9	35,5 \pm 1,8	34,5 \pm 2,2	0,131
4	558 \pm 13	2,39 \pm 0,18	37,6 \pm 1,0	40,0 \pm 1,5	38,3 \pm 2,6	0,125
5	504 \pm 22	3,93 \pm 0,18	28,0 \pm 0,5	35,8 \pm 1,5	28 \pm 4	0,173
6	448 \pm 11	2,06 \pm 0,18	31,0 \pm 0,7	28,8 \pm 1,8	49 \pm 3	0,185
7	509 \pm 9	3,69 \pm 0,16	40,3 \pm 1,6	40 \pm 2	29,8 \pm 2,9	0,131


Slika 1: Jačine ambijentalnog ekvivalenta doze (a) i godišnje efektivne doze (b).
Tabela 2: Vrednosti ravnotežne koncentracije radona C_{eq} , koeficijenta emanacije ϵ i brzine masene ekshalacije radona E_m

RB uzorka	C_{eq} [Bq/m ³]	ϵ [%]	E_m [10^{-5} Bq/kg/s]
1	634 \pm 30	62,8	3,41
2	495 \pm 10	82,2	2,98
3	178 \pm 33	14,6	1,06
4	247 \pm 10	16,5	1,31
5	854 \pm 43	77,0	4,55
6	209 \pm 12	17,6	1,15
7	25 \pm 2	1,67	0,14

Minimalne i maksimalne vrednosti godišnjih efektivnih doza od ingestije biljnih kultura (žitarice, korenasto i lisnato povrće) izračunate preko transfer faktora i relacije (3) su date u Tabeli 3.

Tabela 3: Opsezi procenjenih godišnjih efektivnih doza od ingestije biljnih kultura gajenih na ispitivanom zemljištu

Radionuklid	E_{ing} [mSv]				
	Žitarice		Korenasto povrće		Lisnato povrće
	Zrno	Stabljika	Koren	Stabljika	
K-40	0,145–0,237	0,216–0,352	-	-	0,080–0,131
Cs-137	$(0,718–1,37) \cdot 10^{-4}$	$(3,71–7,08) \cdot 10^{-4}$	$(0,498–0,951) \cdot 10^{-4}$		$(0,469–0,895) \cdot 10^{-4}$
Ra-226	0,008–0,018	0,016–0,038	0,015–0,035	0,015–0,035	0,013–0,030
Th-232	$(9,00–18) \cdot 10^{-4}$	$(2,60–5,20) \cdot 10^{-3}$	$(1,70–3,30) \cdot 10^{-3}$	$(1,81–3,55) \cdot 10^{-3}$	$(1,64–3,22) \cdot 10^{-4}$
U-238	$(0,438–1,260) \cdot 10^{-3}$	$(1,91–5,50) \cdot 10^{-3}$	$(2,85–8,21) \cdot 10^{-4}$		$(0,447–1,290) \cdot 10^{-4}$

Diskusija i zaključak

Na osnovu gama spektrometrijskih merenja sadržaja radionuklida u uzorcima zemljišta I poređenjem sa prosečnim koncentracijama aktivnosti analiziranih radionuklida u svetu (33 Bq/kg za U-238, 32 Bq/kg za Ra-226, 45 Bq/kg za Th-232 i 412 Bq/kg za K-40 [8]).

, može se zaključiti sledeće:

- koncentracije aktivnosti U-238 su iznad prosečnih vrednosti u svetu na lokacijama Bački Gračac, Kljajićevo, Bezdan i Ratkovo;
- koncentracije aktivnosti Ra-226 su iznad prosečnih vrednosti u svetu na lokacijama Kljajićevo, Bezdan i Bački Petrovac;
- koncentracije aktivnosti Th-232 su ispod prosečnih vrednosti u svetu na svim lokacijama;
- koncentracije aktivnosti K-40 su iznad prosečnih vrednosti u svetu na svim lokacijama sem na lokaciji Veternik (Novi Sad).

Dobijeni rezultati u ovoj studiji su uporedivi sa rezultatima ranijih ispitivanja na teritoriji Vojvodine [2, 3, 11], dok je koncentracija aktivnosti Cs-137 očekivano niža od vrednosti izmerenih 2001. i 2010. godine [2].

Izračunate jačine ambijentalnog ekvivalenta doze su iznad proseka u svetu na svim lokacijama sem na lokacijama Bački Gračac i Veternik (Novi Sad). Međutim, godišnje efektivne doze su ispod vrednosti od 1 mSv (granica za stanovništvo propisana zakonskom regulativom Republike Srbije [12]) na svim ispitivanim lokacijama i daleko ispod prosečne doze u svetu koja potiče od prirodnog zračenja (2,4 mSv [8]).

Vrednosti koeficijenta emanacije radona se nalaze u opsegu od 0,17 do 0,82, pri čemu su u tri uzorka (Bački Gračac, Veternik i Doroslovo) vrednosti koeficijenta emanacije nešto više od uobičajenih vrednosti za zemljište [13]. Razlika u vrednostima koeficijenta emanacije je verovatno posledica razlike u veličini zrna zemljišta, sadržaja gvožđa, kao i vlage [14]. Brzina masene ekshalacije radona je u opsegu (0,14–4,55) Bq/kgs, što je viša vrednost od vrednosti određenih u radu [15].

Procenjene godišnje efektivne doze od ingestije biljnih kultura za pojedinačne radionuklide su u najvećoj meri ispod prosečne vrednosti od 0,3 mSv [8]. Poređenja radi, godišnje efektivne doze usled ingestije uobičajenih namirnica koji se koriste u ishrani u regionu Vijetnama su u opsegu od 0,24 mSv do 0,42 mSv, u Indiji je prosečna vrednost 0,32 mSv, dok su u Šri Lanci u opsegu od 0,030 mSv do 0,051 mSv [16].

Nešto veće vrednosti su dobijene u slučaju procene doza za ingestiju stabljike žitarica za radionuklid K-40 na lokacijama Bački Gračac, Kljajićevo, Bezdan, Doroslovo, Ratkovo i Bački Petrovac. Prema dobijenim rezultatima, najviše radiouklida usvaja stabljika žitarice i to dominantno K-40, a potom i Ra-226.

Generalni zaključak je da izmerene koncentracije radionuklida u analiziranim uzorcima zemljišta ne predstavljaju opasnost za proizvodnju zdravstveno bezbedne hrane, kao ni za izlaganje stanovništva dejstvu spoljašnjeg jonizujućeg zračenja.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/ 200125).

Literatura

- [1] V. Hadžić, P. Sekulić, J. Vasin, Lj. Nešić. Geološka osnova zemljišnog pokrivača Vojvodine, *Ekonomika Poljoprivrede* 4, 2005, UDK: 631.434:550.8(497.113).
- [2] S. Forkapic, J. Vasin, I. Bikit, D. Mrdja, K. Bikit, S. Milic. Correlations between soil characteristics and radioactivity content of Vojvodina soil, *Journal of Environmental Radioactivity* 166, 2017, 104–111.
- [3] M. Janković, I. Jelić, M. Rajačić, J. Krneta Nikolić, I. Vukanac, S. Dimović, N. Sarap, M. Šljivić-Ivanović. Distribution of natural radionuclides and ¹³⁷Cs in urban soil samples from the City of Novi Sad, Serbia-Radiological risk Assessment, *Toxics* 11, 2023, 345.
- [4] Measurements of Radionuclides in Food and the Environment, A Guidebook, IAEA Technical Reports Series No. 295, Vienna, 1989.
- [5] P. Kuzmanović, J. Knežević Radić, D. Mrđa, J. Hansman, D. Velimirović, S. Forkapić. Radioactivity of fertilizers used in Serbia and dose assessments for workers in the industry, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 331, 2022, 5825–5834.
- [6] IMI, Inspector Alert, Manual, 2015, (https://medcom.com/wp-content/uploads/IMI-IA-Manual-6.29.2015_web.pdf)
- [7] P. Kuzmanović, B. Miljević, N. Todorović, S. Forkapić, I. Čeliković, L. Filipović Petrović, J. Knežević Radić. The influence of building material structure on radon emanation, *Journal of Radiological Protection* 42, 2022, 041508.

- [8] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and effects of ionizing radiation, UNSCEAR 2008, Report to the General Assembly with Scientific Annexes, United Nations, New York, 2010.
- [9] Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, IAEA Technical Reports Series No. 472, Vienna, 2010.
- [10] Anketa o potrošnji domaćinstava, 2021, Republički zavod za statistiku, Beograd, 2022.
- [11] I. Bikit, J. Slivka, Lj. Čonkić, M. Krmar, M. Vesković, N. Žikić-Todorović, E. Varga, S. Ćurčić, D. Mrdja. Radioactivity of the soil in Vojvodina (northern province of Serbia and Montenegro), *Journal of Environmental Radioactivity* 78, 2005, 11–19.
- [12] Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima, Službeni glasnik br. 86/2011 i 50/2018.
- [13] H. Nguyen Phong Thu, N. Van Thang, T. Thi Hong Loa, N. Van Dong, L. Cong Hao. Natural radioactivity and radon emanation coefficient in the soil of Ninh Son region, Vietnam. *Applied Geochemistry* 104, 2019, 176–183.
- [14] H. Nguyen Phong Thu, N. Van Thang, L. Cong Hao. The effects of some soil characteristics on radon emanation and diffusion, *Journal of Environmental Radioactivity* 216, 2020, 106189.
- [15] K. M. Thabayneh. Determination of radon exhalation rates in soil samples using sealed can technique and CR-39 detectors, *Journal of Environmental health Science and Engineering* 16, 2018, 121–128.
- [16] J. Knezevic Radic, J. Hansman, D. Mrdja, S. Forkapić, K. Bikit, P. Kuzmanovic, D. Velimirovic. Diatomaceous earth: radiological characterization and risk assessment, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2023.

RADIOLOGICAL CHARACTERIZATION OF AGRICULTURAL SOIL IN THE TERRITORY OF VOJVODINA

Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹, Sofija FORKAPIĆ¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹,
Jan HANSMAN¹, Kristina DEMIRHAN¹, Dušan MRĐA¹, Predrag KUZMANOVIĆ^{1,2}

- 1) *University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad, Serbia*
- 2) *Academy of Applied Studies, Department of Medical and business-technological Studies, Laboratory for Physics, Šabac, Serbia,*

ABSTRACT

Assessment of the population's exposure to ionizing radiation includes examining the content of radionuclides in the soil, due to exposure to external radiation and since the soil is a medium from which radionuclides transfer to plants and enter the food chain, contributing to the internal dose. In addition to primordial radionuclides that are already present in the earth's crust, concentrations of radionuclide activity can be increased due to the use of phosphate fertilizers and the deposition of artificial radionuclides. In this paper, the radioactivity of 7 samples of agricultural soil from the territory of Vojvodina was determined. Ambient dose equivalent rates were measured at the sampling locations, while radionuclide activity concentrations in the samples were measured by the gamma-spectrometric method using an HPGe detector. Annual effective doses from external exposure and ingestion of plant crops grown on the analyzed soils were determined. Also, radon exhalation rates were measured with the active device RAD7. The results were compared with similar studies in the country and the world.

MONITORING RADIOAKTIVNOSTI I PROCENA RADIJACIONOG RIZIKA U OKOLINI TERMoeLEKTRANA U REPUBLICI SRBIJI U 2021. I 2022. GODINIIrena TANASKOVIĆ¹, Jovana ĐUKIĆ¹, Vesna ARSIĆ¹, Suzana BOGOJEVIĆ¹1) *Institut za medicinu rada Srbije "Dr Dragomir Karajović", Deligradska 29, Beograd**Autor za korespondenciju: Irena TANASKOVIĆ, irena.tanaskovic@institutkarajovic.rs***SAŽETAK**

Laboratorija za merenje radioaktivnosti Instituta za medicinu rada Srbije "Dr Dragomir Karajović" vrši redovnu godišnju kontrolu radioaktivnosti u okolini termoelektrana "Nikola Tesla B" u Obrenovcu i "Morava" u Svilajncu. U radu su prikazani rezultati izmereni u periodu 2021.-2022. godine. Analizirani su uzorci uglja, šljake, pepela, zemljišta, biljne kulture, otpadnih voda i rečne vode. Prikazani su rezultati gamaspektrometrijske analize za sve navedene uzorke i ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti uzoraka voda. Na osnovu izmerenih koncentracija radionuklida Ra-226, Th-232 i K-40 u zemljištu izračunata je jačina apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu, godišnja efektivna doza i indeks radijacionog rizika usled spoljašnjeg izlaganja za stanovništvo. Dobijeni rezultati ukazuju da ne postoji značajan rizik kao posledica eksternog izlaganja jonizujućem zračenju za radnike i stanovništvo koje živi u okolini termoelektrana.

Uvod

Osnovni proces proizvodnje električne energije u termoelektranama stvara velike količine pepela, šljake koje su produkti sagorevanja različitih vrsta uglja. Prilikom sagorevanja uglja u pepelu se nekoliko puta povećava koncentracija prirodnih radionuklida. Pepelo i šljaka se odlažu na deponije, što može da predstavlja opasnost zagađenja životne sredine. Rad termoelektrana je glavni izvor tehnološki povećane radioaktivnosti, što može da utiče na izloženost jonizujućim zračenjima radnika i stanovništva koje živi u okolini termoelektrana. Ciljevi sistematske kontrole nivoa radioaktivnosti u radnoj i životnoj sredini termoelektrana je: procena povećanja prirodne radijacione aktivnosti iznad prirodnog fona u neposrednoj i bližoj okolini termoelektrana usled procesa sagorevanja uglja, procena uticaja tehnološki povećane prirodne radioaktivnosti na zdravlje radnika i stanovništva i provera prisustva i utvrđivanja porekla eventualnog lokalnog izvora veštačke radioaktivnosti. Tokom 2021. i 2022. godine u okviru redovnog monitoringa radioaktivnosti u termoelektranama "Nikola Tesla B" u Obrenovcu i "Morava" u Svilajncu analizirani su uzorci uglja, šljake, pepela, zemljišta, biljne kulture, otpadnih voda i rečne vode. Prikazani su rezultati gamaspektrometrijske analize za navedene uzorke i ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti uzoraka voda. Na osnovu izmerenih aktivnosti Ra-226 (A_{Ra}), Th-232 (A_{Th}) i K-40 (A_K) u zemljištu izračunata je jačina apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu D (nGy/h) prema jednačini (1):

$$(1) \quad D = 0,462A_{Ra} + 0,604A_{Th} + 0,0417A_K$$

godišnja efektivna doza E_{sp} (mSv/god) prema jednačini (2):

$$(2) \quad E_{sp} = D \text{ (Gyh}^{-1}) \times 24\text{h} \times 365\text{d} \times 0,7 \text{ SvGy}^{-1} \times 0,2 \times 10^{-6}$$

i indeks radijacionog rizika H_{eks} usled spoljašnjeg izlaganja za stanovništvo prema jednačini (3) [5]:

$$(3) \quad H_{\text{eks}} = A_{\text{Ra}}/370 + A_{\text{Th}}/259 + A_{\text{K}}/4810$$

Materijal i metode

Analizirani su uzorci: uglja, šljake, pepela, zemljišta, biljne kulture, otpadnih voda i rečnih vode. Uzorci zemljišta su očišćeni od biljnog materijala i kamenja, sušeni na 105 °C do konstantne mase, samleveni, prosejani i smešteni u marineli posude. Biljne kulture su očišćene od zemljišta, sušene na sobnoj temperaturi, spaljene ispod grejača do pepela, isitnjene u avanu i smeštene u cilindrične geometrije. Priprema uzoraka voda je obavljena po standardnim metodama, uparavanjem za gamaspektrometrijsku analizu i uparavanjem i žarenjem na 350 °C za određivanje ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti [1], [2], [3]. Sve posude sa pripremljenim uzorcima za gamaspektrometrijsku analizu su hermetički zatvorene i ostavljene 30 dana do uspostavljanja radioaktivne ravnoteže između U-238 i Th-232 i njihovih potomaka. Gamaspektrometrijska merenja vršena su na HPGe detektorima, rezolucije 1,95 keV, odnosno 1,85 keV, relativne efikasnosti 25 % odnosno 40 % na 1332 keV firme "ORTEC". Merenja ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti obavljena su na niskofonskom alfa-beta proporcionalnom gasnom brojaču PIC-WPC-9550 ефикасности 31% i 42%, respektivno, proizvođača Protean Instrument Corporation. Rezultati merenja dati su sa mernom nesigurnošću koja je izražena kao proširena merna nesigurnost za faktor k=1 koji za normalnu raspodelu odgovara nivou poverenja od 68 %.

Rezultati

Rezultati ispitivanja radioaktivnosti u uzorcima uglja, pepela, šljake, otpadnih i rečnih voda, biljnih kultura i zemljišta prikazani su u Tabelama od 1 do 4. U Tabeli 5 su prikazane vrednosti jačine apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu, godišnje efektivne doze i indeksi radijacionog rizika usledi spoljašnjeg izlaganja za uzorke zemljišta. Rezultati se odnose na uzorke iz termoelektrana "Nikola Tesla B" u Obrenovcu i "Morava" u Svilajncu, koji su uzorkovani u periodu 2021.-2022. godine.

Tabela 1: Aktivnost prirodnih i veštačkih radionuklida u uglju, pepelu i šljaci u TENT „B“ i TE „Morava“ u 2021. i 2022. godini

Termoelektra.	Uzorci	Aktivnost (Bq/kg) u 2021. godini					
		Ra-226	Th-232	K-40	U-238	U-235	Cs-137
TENT „B“	ugalj	33,8±1,7	24,7±1,6	135±5	42±6	1,8±0,2	<0,2
	šljaka	83,4±2,4	59,2±2,7	276±9	123±18	4,0±0,2	<0,3
	pepeo	153±4	103±4	498±14	217±41	8,0±0,9	<0,4
TE „Morava“	ugalj	45,1±1,5	31,5±1,9	216±9	96±20	1,7±0,4	<0,2
	šljaka	56,0±1,8	35,8±2,1	286±10	173±35	3,5±0,5	<0,2
	pepeo	89,8±2,3	59,3±2,6	435±11	133±20	3,8±0,4	<0,4
Termoelektra.	Uzorci	Aktivnost (Bq/kg) u 2022. godini					
		Ra-226	Th-232	K-40	U-238	U-235	Cs-137
TENT „B“	ugalj	153±4	38,8±2,2	244±9	170±26	4,8±0,6	<0,2
	šljaka	77,7±2,1	49,2±2,2	341±9	103±16	4,2±0,4	<0,5
	pepeo	148±4	88,4±3,4	493±13	171±13	5,8±0,6	<0,3
TE „Morava“	ugalj	81,1±2,5	37,0±2,5	187±9	136±18	4,8±0,7	<0,3
	šljaka	119±3	36,5±2,1	236±9	116±33	6,3±0,3	<0,2
	pepeo	126±3	59,1±3,5	308±10	155±40	7,4±1,0	<0,6

Tabela 2: Aktivnost prirodnih i veštačkih radionuklida u rečnoj vodi nizvodno i uzvodno od TE, prelivnoj i drenažnoj vodi u TENT „B“ i TE „Morava“ u 2021. i 2022. godini

Termoele.	Uzorci	Aktivnost (Bq/kg) u 2021. godini					
		Ra-226	Th-232	K-40	U-238	U-235	Cs-137
TENT „B“	Sava uzvodno	<0,01	<0,03	<0,05	<0,20	<0,01	<0,004
	Prelivna voda	<0,04	<0,05	0,21±0,03	<0,10	<0,01	<0,002
	Drenažna voda	<0,01	<0,02	0,40±0,02	<0,10	<0,01	<0,002
	Sava nizvodno	<0,01	<0,04	<0,05	<0,10	<0,01	<0,002
TE „Morava“	Velika Morava uzvodno	<0,03	<0,01	0,18±0,06	<0,10	<0,01	<0,002
	Prelivna voda	<0,03	<0,04	0,32±0,06	<0,26	<0,01	<0,002
	Drenažna voda	<0,02	<0,08	0,33±0,06	<0,08	<0,01	<0,002
	Velika Morava nizvodno	<0,01	<0,02	<0,03	<0,10	<0,01	<0,001
Termoele.	Uzorci	Aktivnost (Bq/kg) u 2022. godini					
		Ra-226	Th-232	K-40	U-238	U-235	Cs-137
TENT „B“	Sava uzvodno	<0,01	<0,01	<0,05	<0,11	<0,01	<0,002
	Prelivna voda	<0,01	<0,01	0,26±0,03	<0,31	<0,01	<0,004
	Drenažna voda	<0,01	<0,01	0,56±0,06	<0,10	<0,01	<0,003
	Sava nizvodno	<0,01	<0,01	<0,05	<0,15	<0,01	<0,002
TE „Morava“	Velika Morava uzvodno	<0,02	<0,01	0,08±0,01	<0,29	<0,01	<0,002
	Prelivna voda	<0,02	<0,02	0,21±0,06	<0,32	<0,01	<0,002
	Drenažna voda	<0,03	<0,01	0,21±0,05	<0,10	<0,01	<0,002
	Velika Morava nizvodno	<0,02	<0,01	0,11±0,01	<0,10	<0,01	<0,002

Tabela 3: Ukupna alfa i ukupna beta aktivnost uzoraka voda u TENT „B“ i TE „Morava“ u 2021. i 2022. godini

Termoele.	Uzorci	Ukupna alfa aktivnost 2021./2022. god. (Bq/kg)	Ukupna beta aktivnost 2021./2022. god. (Bq/kg)
TENT „B“	Sava uzvodno od TE	<0,01/<0,02	<0,02/<0,02
	Prelivna voda	<0,04/<0,05	0,21±0,03/0,36±0,04
	Drenažna voda	<0,06/<0,07	0,29±0,04/0,26±0,04
	Sava nizvodno od TE	<0,01/<0,02	0,03±0,01/0,03±0,01
TE „Morava“	Velika Morava uzvodno od TE	<0,02/<0,01	0,08±0,01/0,04±0,01
	Prelivna voda	<0,04/<0,03	0,20±0,03/0,21±0,02
	Drenažna voda	<0,05/<0,04	0,24±0,03/0,22±0,03
	Velika Morava nizvodno od TE	<0,02/<0,02	0,07±0,01/0,05±0,01

Tabela 4: Aktivnost prirodnih i veštačkih radionuklida u zemljištu i biljnoj kulturi u TENT „B“ i TE „Morava“ u 2021. i 2022. godini

Termoele.	Uzorci	Maksimalna aktivnost (Bq/kg)				
		Ra-226	Th-232	K-40	U-238	Cs-137
TENT „B“	Zemljište iz 2021.	57,7±1,8	68,2±2,8	826±26	89±13	35,0±0,9
	Biljna ku. iz 2021.	<0,8	<1,0	184±7	<2,0	<0,1
	Zemljište iz 2022.	49,8±1,4	63,5±2,8	767±16	99±17	42,9±0,9
	Biljna ku. iz 2022.	<3,6	<3,3	458±7	<5,2	<0,3
TE „Morava“	Zemljište iz 2021.	49,1±1,6	58,9±2,9	822±18	94±12	22,0±0,2
	Biljna ku. iz 2021.	1,6±0,3	1,5±0,3	242±8	<8,0	<0,3
	Zemljište iz 2022.	50,4±1,5	56,5±2,2	854±17	82±14	25,6±0,6
	Biljna ku. iz 2022.	1,6±0,3	1,6±0,6	221±8	<3,1	<0,1

Tabela 5: Jačine apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu, godišnje efektivne doze i indeksi radijacionog rizika usled spoljašnjeg izlaganja za uzorke zemljišta iz termoelektrane TENT „B“ i TE „Morava“ u 2021. i 2022. godini (prikazane min-max vrednosti)

Termoelektrana	D (nGy/h)	E _{sp} (mSv/god)	H _{eks}
TENT „B“ za 2021. god.	54-99	0,07-0,12	0,3-0,6
TENT „B“ za 2022. god.	55-89	0,07-0,11	0,3-0,5
TE „Morava“ za 2021. god.	56-88	0,07-0,11	0,3-0,5
TE „Morava“ za 2022. god.	59-93	0,07-0,11	0,3-0,5

Diskusija i zaključak

Rezultati gamaspektrometrijske analize prirodnih i veštačkih radionuklida u uzorcima uglja, šljake i pepela prikazani u Tabeli 1, pokazuju obogaćenost šljake i pepela prirodnim radionuklidima, što je posledica sagorevanja uglja u procesu rada termoelektrana. Ova tehnološki povećana radioaktivnost može da utiče na zagađenje životne sredine, sobzirom da se pepeo čuva na odgovarajućim deponijama u blizini termoelektrana. Zbog toga su u cilju zaštite životne sredine obavljena merenja u dodatnim uzorcima iz okoline termoelektrana. Rezultati gamaspektrometrijske analize prirodnih i veštačkih radionuklida i ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u rečnim i otpadnim vodama u okolini obe termoelektrane, Tabela 2 i 3, su na nivou dozvoljenih nivoa za vode za piće [4]. Nema povećane radioaktivnosti u otpadnim i rečnim tokovima uzvodno i nizvodno od termoelektrana. Vrednosti specifične aktivnosti radionuklida u zemljištu i biljnim kulturama u okolini termoelektrana, tabela 4, su na nivou prosečnih vrednosti koje su karakteristične za područje Republike Srbije, koje Laboratorija već više decenija prata u sklopu monitoringa radioaktivnosti u životnoj sredini. U zemljištu su izmerene specifične aktivnosti veštačkog radionuklida Cs-137, koje potiču od černobiljskog akcidenta iz 1986. godine. U Tabeli 5 prikazane su vrednosti, pri spoljašnjem izlaganju za uzorke zemljišta, jačine apsorbovane doze gama-zračenja u vazduhu koje su se kretale od 54 nGyh⁻¹ do 99 nGyh⁻¹, godišnje efektivne doze u interval od 0,07 mSv/god do 0,12 mSv/god i indeksa radijacionog rizika u intervalu od 0,3 do 0,6. U normalnim uslovima jačina apsorbovane doze u vazduhu iznosi 57 nGyh⁻¹, a prosečna vrednost godišnje efektivne doze za eksterno izlaganje iznosi 0,07 mSv. Vrednost indeksa radijacionog rizika manji od 1 ukazuju da u okolini ne postoji značajni radijacioni rizik za stanovništvo usled spoljašnjeg terestrijalnog izlaganja [5].

Na osnovu izvršenih ispitivanja može se zaključiti sledeće. Rezultati merenja radioaktivnosti uzoraka iz radne i životne sredine u okolini termoelektrana "Nikola Tesla B" u Obrenovcu i "Morava" u Svilajncu u 2021. i 2022. godini pokazuju da preduzete mere zaštite funkcionišu u sprečavanju povećane kontaminacije prirodnim radionuklidima poreklom od rada termoelektrana. Veštački radionuklidi kratkog i srednjeg vremena poluraspada nisu

detektovani ni u jednom uzorku iz procesa rada termoelektrana, što znači da nije bilo veštačkog izvora radioaktivnosti. Povećana prirodna radioaktivnost na deponijama pri sadašnjim uslovima ne predstavlja zdravstveni rizik za radnike i stanovništvo koje živi u okolini termoelektrana. Ispunjeni su ciljevi monitoringa kontrole radioaktivnosti u navedenim termoelektranama u 2021. i 2022. godini.

Literatura

- [1] Technical Report Series No.295, IAEA, Vienna, 1989.
- [2] ISO 9696 Water quality-Measurement of gross alpha activity in non-saline water Thich source method, 1992.
- [3] ISO 9697 Water quality-Measurement of gross beta activity in non-saline water, 1992.
- [4] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet, Sl. Gl. RS. 36/18 (član 6).
- [5] J. Ilić, M. Eremić Savković, V. Arsić, Lj. Javorina, I. Tanasković, Sadržaj prirodnih radionuklida i procena radijacionog rizika u okolini termoelektrana u Srbiji, XXVII Simozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Vrnjačka Banja, 2013, 83-97.

RADIOACTIVITY MONITORING AND RADIATION RISK ASSESSMENT IN THE SURROUNDINGS OF THERMAL POWER PLANTS IN THE REPUBLIC OF SERBIA IN 2021 AND 2022

Irena TANASKOVIĆ¹, Jovana ĐUKIĆ¹, Vesna ARSIĆ¹, Suzana BOGOJEVIĆ¹

1) *Institute of Occupational Health of Serbia "Dr Dragomir Karajović", Deligradska 29, Belgrade*

ABSTRACT

Laboratory for Radioactivity Measurements of the Serbian Institute of Occupational Health "Dr. Dragomir Karajović" carries out regular annual control of radioactivity in the vicinity of thermal power plants "Nikola Tesla B" in Obrenovac and "Morava" in Svilajnac. The paper presents the results measured in the period of 2021.-2022. years. Samples of coal, slag, ash, soil, plant, waste-water and river water, were analyzed. The results of the gamma spectrometric analysis for all the mentioned samples and the total alpha and total beta activity concentrations in the water samples are presented. Based on the values of the measured activity concentrations of radionuclides Ra-226, Th-232 i K-40 in soil - the absorbed gamma dose rate in air, the annual effective gamma dose rate and the radiation risk index due to external exposure for the population, were calculated. The obtained results indicate that there is no significant risk as a result of external exposure to ionizing radiation for the thermal power plant workers and the population living in the vicinity.

GRAMON BAZA PODATAKA: DESETOGODIŠNJA MERENJA SPECIFIČNE AKTIVNOSTI BERILIJUMA-7 U VAZDUHU

Jelena AJTIĆ¹, Milica RAJAČIĆ², Jelena KRNETA NIKOLIĆ², Ivana VUKANAC², Zorana ILIĆ³, Alfred VIDIĆ³, Irma DIDOVIĆ³, Jovan JANUSHESKI⁴, Jordanka ANUSHEVA⁴, Snezana DIMOVSKA⁴, Dejan DANILOVSKI⁴, Tomislav ANĐELIĆ⁵, Ranko ZEKIĆ⁵, Nikola SVRKOTA⁵, Slavko RADONJIĆ^{6,7}, Branko VODENIK⁸, Benjamin ZORKO⁸

- 1) *Fakultet veterinarske medicine, Univerzitet u Beogradu, Bulevar oslobođenja 18, Beograd, Srbija*
- 2) *Institut za nuklearne nauke Vinča, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Srbija*
- 3) *Zavod za javno zdravstvo Federacije Bosne i Hercegovine, Maršala Tita 9, Sarajevo, Bosna i Hercegovina*
- 4) *Institut za javno zdravlje Republike Severne Makedonije, 50-ta Divizija 6, Skoplje, Severna Makedonija*
- 5) *D.O.O. Centar za ekotoksikološka ispitivanja Podgorica, Bulevar Šarla De Gola 2, Podgorica, Crna Gora*
- 6) *Agencija za zaštitu životne sredine Crne Gore, Odjeljenje za radiološku i nuklearnu sigurnost i bezbjednost i zaštitu od jonizujućeg i nejonizujućeg zračenja, IV Proleterske 19, Podgorica, Crna Gora*
- 7) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Kragujevcu, Radoja Domanovića 12, Kragujevac, Srbija*
- 8) *Institut Jožef Štefan, Jamova cesta 39, Ljubljana, Slovenija*

Autor za korespondenciju: Jelena AJTIĆ, jelena.ajtic@vet.bg.ac.rs

SAŽETAK

U radu je predstavljena novoformirana baza podataka GRAMON (Ground Air Radioactivity Monitoring) koja sadrži rezultate merenja radioaktivnosti u vazduhu na sedam lokacija: Beograd (Srbija), Ljubljana i Krško (Slovenija), Sarajevo (Bosna i Hercegovina), Podgorica (Crna Gora), Skoplje i Bitola (Severna Makedonija). Iz baze su za sve lokacije preuzete mesečne vrednosti specifične aktivnosti prirodnog radionuklida berilijuma-7 i potom analizirani deskriptivni statistički parametri od januara 2010. do decembra 2019. godine.

Srednje vrednosti specifične aktivnosti berilijuma-7 tokom ovog perioda kreću se od 3,32 mBq/m³ u Sarajevu do 5,93 mBq/m³ u Beogradu. Koeficijent varijacije najmanji je za Krško (37,7%) i Sarajevo (38,6%), a najveći za Beograd (54,8%) i Bitolu (72,4%). Ipak, 3σ-opsezi svih sedam vremenskih serija se preklapaju. U daljoj statističkoj analizi biće ispitano da li među ovim vremenskim serijama postoje značajne razlike.

Uvod

Berilijum-7 (Be-7; period poluraspada 53,22 dana), prirodni radionuklid koji se stvara u višim slojevima atmosfere i spušta do površine zemlje zakačen na aerosole [1], jedan je od gama emitera uključenih u standardne monitoring programe radioaktivnosti u vazduhu [2]. Specifična aktivnost Be-7 u prizemnom sloju vazduha može ukazati na brojne procese u

atmosferi, kao što su razmena između stratosfere i troposfere, brzina vertikalnog transporta i količina padavina, te se koristi kao obeleživač istorije vazдушnih masa [3].

U ovom radu analizirane su specifične aktivnosti Be-7 iz Ground Air Radioactivity Monitoring (GRAMON) baze podataka koja sadrži merenja iz Srbije, Slovenije, Bosne i Hercegovine, Crne Gore i Severne Makedonije. Ovaj deo jugoistočne Evrope uglavnom nije uključen u regionalne studije radioaktivnosti u vazduhu [2,4], i jedan deo rezultata iz baze predstavljen je ovde po prvi put.

Materijal i metode

Bazu podataka GRAMON sačinjavaju merenja radioaktivnosti u vazduhu dobijena iz standardnih monitoring programa sledećih zemalja (Sl. 1):

- Srbije, merno mesto Beograd (44,88 °N; 20,58 °E; 95 m.n.v.),
- Slovenije, merna mesta Ljubljana (46,04 °N; 14,49 °E; 292 m.n.v.) i Krško (45,95 °N; 15,51 °E; 204 m.n.v.),
- Bosne i Hercegovine, merno mesto Sarajevo (43,87 °N; 18,42 °E; 594 m.n.v.),
- Crne Gore, merno mesto Podgorica (42,42 °N; 19,27 °E; 52 m.n.v.) i
- Severne Makedonije, merna mesta Skoplje (42,00 °N; 21,43 °E; 245 m.n.v.) i Bitola (41,03 °N; 21,34 °E; 576 m.n.v.).



Slika 1: Lokacije uzorkovanja iz GRAMON baze podataka.

Podaci za Srbiju i Sloveniju datiraju od 1991. godine, za Crnu Goru i Severnu Makedoniju od 2008, a za Bosnu i Hercegovinu od 2010. godine.

Pored podataka za specifičnu aktivnost berilijuma-7, u bazi su i podaci za olovo-210, cezijum-137 i kalijum-40.

Kako programi monitoringa u ovim zemljama nisu harmonizovani, ni sama baza podataka nije homogena. Ipak, procedure sakupljanja i pripreme uzoraka, kao i merenja, u velikoj meri su slične. Ukratko, uzorkovanje se vrši pomoću filtera u pumpama za vazduh, a sadržaj radionuklida određuje se standardnom gama spektrometrijom. Za sve lokacije, date su vrednosti srednjih mesečnih specifičnih aktivnosti [5,6].

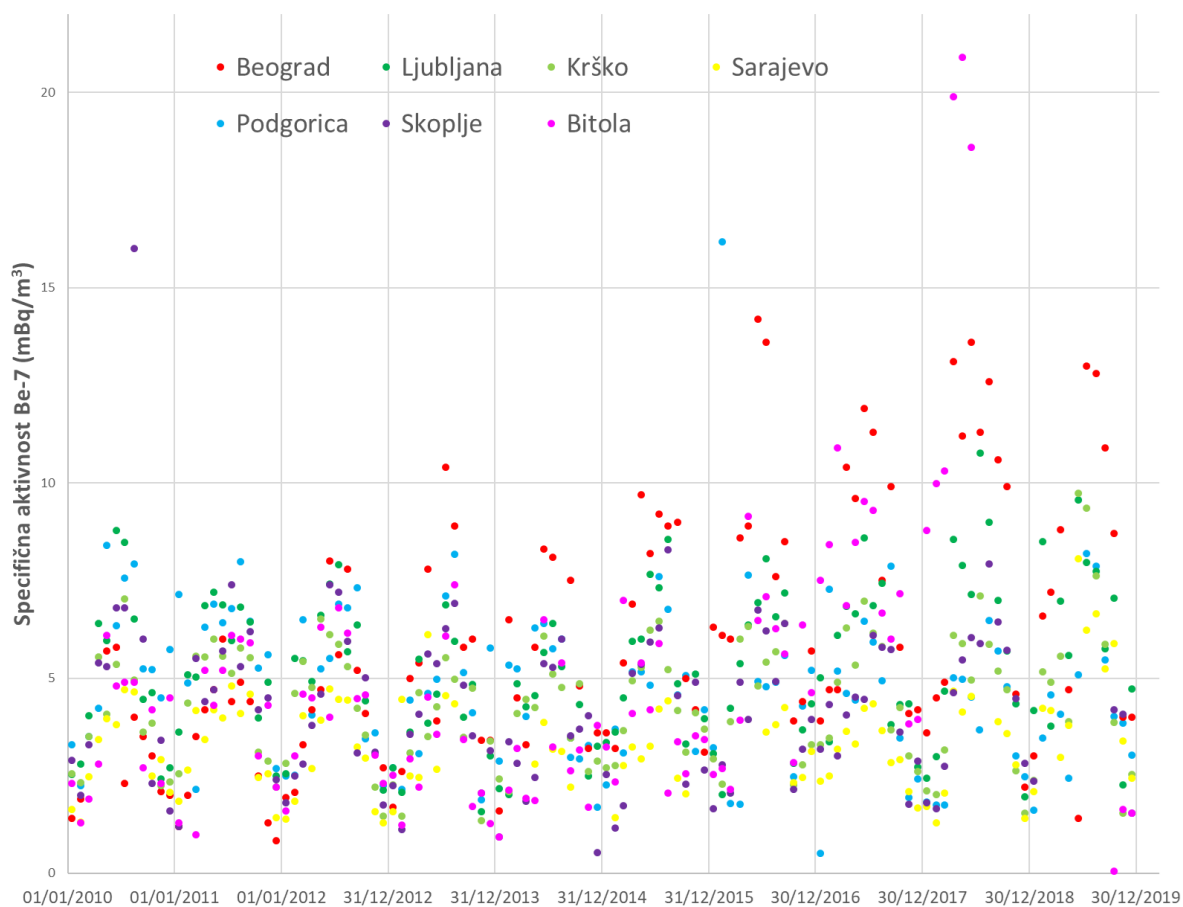
U ovom radu iz GRAMON baze izabrana su merenja specifične aktivnosti Be-7 tokom „zajedničkih“ deset godina, od januara 2010. do decembra 2019. godine, kada broj podataka za Ljubljanu, Krško i Podgoricu iznosi 120 (kompletan niz), za Beograd 116, Skoplje 111 (sporadični podaci u 2019), Bitolu 104 (sporadični podaci u 2018. i 2019) i Sarajevo 97 (sporadični podaci 2013–2016).

Za ove vremenske serije, određeni su sledeći deskriptivni statistički parametri: srednja vrednost i medijana, kao mere centralne tendencije; i standardna devijacija i koeficijent varijacije, kao mere rasipanja oko centralne tendencije.

Rezultati

Desetogodišnji nizovi specifične aktivnosti Be-7 pokazuju slično ponašanje na svim lokacijama (Sl. 2). Jednogodišnji karakteristični interval, sa minimumom u zimskom i maksimumom u letnjem periodu, jasno je vidljiv u svim vremenskim serijama.

Letnji maksimumi posebno su izraženi u Beogradu, a posle 2015. godine primetne su veće varijacije unutar svih vremenskih serija. U ovom kasnijem periodu, Beograd, a sporadično i Bitola, beleže maksimume sa više od 10 mBq/m³.



Slika 2: Desetogodišnji nizovi specifične aktivnosti Be-7 na sedam lokacija tokom 2010–2019.

Između 2010. i 2019. godine, srednja vrednost specifične aktivnosti Be-7 najveću vrednost ima u Beogradu, a najnižu u Sarajevu (Tab. 1). Kao posledica izraženih maksimuma posle 2015. godine (Sl. 2), standardne devijacije i koeficijenti varijacije najveći su za merenja u Beogradu i Bitoli. Na ove dve lokacije, najveći je i raspon između srednje vrednosti i medijane, što ukazuje na asimetričnost distribucije specifične aktivnosti Be-7.

Uprkos ovim razlikama, 3 σ -opsezi svih sedam vremenskih serija se preklapaju (Tab. 1).

Tabela 1: Srednja vrednost, standardna devijacija, medijana i koeficijent varijacije za specifičnu aktivnost Be-7 tokom 2010–2019.

Lokacija	Sr.vr. \pm st.dev (mBq/m ³)	Medijana (mBq/m ³)	Koeficijent varijacije (%)
Beograd	5,93 \pm 3,25	4,95	54,8
Ljubljana	5,18 \pm 1,99	4,96	38,4
Krško	4,32 \pm 1,63	4,26	37,7
Sarajevo	3,32 \pm 1,28	3,23	38,6
Podgorica	4,74 \pm 2,10	4,80	44,3
Skoplje	4,21 \pm 2,10	4,08	49,9
Bitola	4,82 \pm 3,49	4,15	72,4

Diskusija i zaključak

Rezultati programa monitoringa za Be-7 u Podgorici, Skoplju i Bitoli, između 2010. i 2019. godine, objavljeni su ovde po prvi put. Desetogodišnji nizovi specifične aktivnosti Be-7 na ovim lokacijama slažu se, u okviru 3σ -opsega, sa nizovima zabeleženim u Beogradu, Ljubljani, Krškom i Sarajevu.

Sa druge strane, srednje vrednosti u Beogradu i Ljubljani tokom 2010–2019. više su nego tokom 1991–2019. [4], što možda ukazuje na pozitivan trend specifične aktivnosti Be-7 kao što je detektovano na severu Evrope [7].

Ponašanje specifične aktivnosti Be-7, i drugih radionuklida u GRAMON bazi podataka, moglo bi detaljnije biti ispitano u narednim analizama sa fokusom na dekonvoluciji vremenskih serija, u kom slučaju bi se dobila i informacija o vremenskom trendu. Dodatno, postojanje eventualnih razlika među lokacijama moglo bi biti razmotreno zajedno sa lokalnim meteorološkim parametrima koji bitno utiču na specifičnu aktivnost Be-7 u vazduhu [8].

U ovom radu predstavljen je samo jedan deo merenja koja obuhvata nedavno oformljena GRAMON baza. Očekujemo da će baza, kao kolekcija višegodišnjih merenja specifičnih aktivnosti nekoliko radionuklida, doprineti boljem razumevanju radioaktivnosti u vazduhu na prostoru jugoistočne Evrope.

Zahvalnica

Rad je podržan sredstvima Ministarstva nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ugovori broj 451-03-47/2023-01/200143 i 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] A. Ioannidou, C. Papastefanou. Precipitation scavenging of ^7Be and ^{137}Cs radionuclides in air, *Journal of Environmental Radioactivity* Vol.85 No.1, 2006, 121–136, ISSN:0265-931X
- [2] L. Terzi, M. Kalinowski. World-wide seasonal variation of ^7Be related to large-scale atmospheric circulation dynamics, *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol.178–179, 2017, 1–15, ISSN:0265-931X
- [3] M. K. Pham, M. Betti, H. Nies, P. P. Povinec. Temporal changes of ^7Be , ^{137}Cs and ^{210}Pb activity concentrations in surface air at Monaco and their correlation with meteorological parameters, *Journal of Environmental Radioactivity* Vol.102 No.11, 2011, 1045–1054, ISSN:0265-931X
- [4] M. A. Hernandez Ceballos, E. Brattich, J. Ajtić. Airflow and teleconnection patterns driving the spatial and temporal variability of ^7Be events in Europe, *Chemosphere* Vol.303 No.3, 2022, 135194, ISSN:0045-6535
- [5] J. Ajtić, B. Zorko, M. Nečemer, D. Sarvan, M. Rajačić, J. Krneta Nikolić, D. Todorović, V. Djurdjevic, B. Vodenik, D. Glavič Cindro, J. Kožar Logar. Characteristics of radioactivity in the surface air along the 45 °C zonal belt in south-eastern Europe, *International Journal of Environmental Science and Technology* Vol.19 No.10, 2022, 9719–9730, ISSN:1735-2630
- [6] Z. Ilic, A. Vidic, D. Deljkic, I. Kadic. Radioactivity of Atmospheric Aerosols in Sarajevo, *Proceedings of 10th Symposium of the Croatian Radiation Protection Association*, 15–17 April 2015, Šibenik, Croatia, 429.
- [7] S. Bianchi, W. Plastino, E. Brattich, V. Djurdjevic, A. Longo, M. A. Hernández-Ceballos, D. Sarvan, J. Ajtić. Analysis of trends, periodicities, and correlations in the beryllium-7 time series in Northern Europe, *Applied Radiation and Isotopes* Vol.148, 2019, 160–167, ISSN:0969-8043
- [8] J. Ajtić, E. Brattich, D. Sarvan, V. Djurdjevic, M. Á. Hernández-Ceballos. Factors affecting the ^7Be surface concentration and its extremely high occurrences over the Scandinavian Peninsula during autumn and winter, *Chemosphere* Vol.199, 2018, 278–285, ISSN:0045-6535

GRAMON DATABASE: TEN YEARS OF BERYLLIUM-7 SPECIFIC ACTIVITY MEASUREMENTS

Jelena AJTIĆ¹, Milica RAJAČIĆ², Jelena KRNETA NIKOLIĆ², Ivana VUKANAC²,
Zorana ILIĆ³, Alfred VIDIĆ³, Irma DIDOVIĆ³, Jovan JANUSHESKI⁴,
Jordanka ANUSHEVA⁴, Snezana DIMOVSKA⁴, Dejan DANILOVSKI⁴,
Tomislav ANĐELIĆ⁵, Ranko ZEKIĆ⁵, Nikola SVRKOTA⁵, Slavko RADONJIĆ^{6,7},
Branko VODENIK⁸, Benjamin ZORKO⁸

- 1) *Faculty of Veterinary Medicine, University of Belgrade, Bulevar oslobođenja 18, Belgrade, Serbia*
- 2) *Vinča Institute of Nuclear Sciences – National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade, Serbia*
- 3) *Institute for Public Health of the Federation of Bosnia and Herzegovina, Maršala Tita 9, Sarajevo, Bosnia and Herzegovina*
- 4) *Institute of Public Health of the Republic of North Macedonia, 50-ta Divizija 6, Skopje, North Macedonia*
- 5) *LLC Center for Ecotoxicological Research Podgorica, Bulevar Šarla De Gola 2, Podgorica, Montenegro*
- 6) *Environment Protection Agency of Montenegro, Department for Ionizing and Non-ionizing Radiation Protection and Nuclear Security, IV Proleterske 19, Podgorica, Montenegro*
- 7) *Faculty of Science, University of Kragujevac, Radoja Domanovića 12, Kragujevac, Serbia*
- 8) *Jožef Stefan Institute, Jamova cesta 39, Ljubljana, Slovenia*

ABSTRACT

This paper presents a recently established Ground Air Radioactivity Monitoring (GRAMON) database that contains the results of radioactivity measurements in the air at seven locations: Belgrade (Serbia), Ljubljana and Krško (Slovenia), Sarajevo (Bosnia and Herzegovina), Podgorica (Montenegro), Skopje and Bitola (North Macedonia). Monthly values of specific activity of the natural radionuclide beryllium-7 were selected from the database and descriptive statistical parameters were analyzed for each location from January 2010 to December 2019.

The mean values of the specific activity of beryllium-7 over this period range from 3.32 mBq/m³ in Sarajevo to 5.93 mBq/m³ in Belgrade. The coefficient of variation is the least for Krško (37.7%) and Sarajevo (38.6%), and the largest for Belgrade (54.8%) and Bitola (72.4%). Still, the 3 σ -intervals of all seven time series overlap. Further statistical analysis will investigate whether there are any significant differences among these time series.

ISPITIVANJE SADRŽAJA RADIONUKLIDA U VODI I SEDIMENTU, REKA SAVA

Branislava M. MITROVIĆ¹, Dragana OSTOJIĆ¹, Danijela LJUBISAVLJEVIĆ²,
Gordana PANTELIĆ¹

- 1) *Fakultet veterinarske medicine, Univerzitet u Beogradu, Bulevar oslobođenja 18, Beograd, Srbija,*
- 2) *Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu, Studentski trg 12-16, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Branislava M. MITROVIĆ, slavatab@vet.bg.ac.rs

SAŽETAK

Cilj ovog istraživanja je da se gama spektrometrijskom metodom odredi sadržaj prirodnih radionuklida (^{40}K , ^{238}U , ^{226}Ra i ^{232}Th) i proizvedenog radionuklida ^{137}Cs u vodi i sedimentu reke Save. Uzorci su prikupljeni u jesen 2022. godine na području Beograda, Sremske Mitrovice i Kupinova. Rezultati ispitivanja ukazuju da je na ispitivanim lokacijama u sedimentu reke Save najzastupljeniji radionuklid ^{40}K (423 Bq/kg), dok je prosečan sadržaj ^{238}U (31 Bq/kg), ^{226}Ra (31 Bq/kg) i ^{232}Th (32 Bq/kg) bio znatno niži. Sadržaj antropogenog radionuklida ^{137}Cs u sedimentu je bio u opsegu od 2,1 Bq/kg do 6,1 Bq/kg. U svim ispitivanim uzorcima rečne vode sadržaj radionuklida bio je nizak.

Uvod

Radioaktivni elementi prisutni u rečnim vodama mogu biti prirodnog i proizvedenog porekla. Potencijalni zagađivači reka radionuklidima su nuklearne elektrane, nuklearne probe, nagomilavanje prirodnih radionuklida usled primene fosfatnih đubriva u poljoprivredi, ili neka havarija na mestima gde se primenjuju izvori zračenja (radioaktivni gromobrani, radioaktivni javljači požara, medicinski radioizotopi).

Prisustvo radionuklidia u vodi dovodi do kontaminacije ljudi, direktno ingestijom (vode i ribe) ili indirektno (korišćenje vode za napajanje životinja, navodnjavanje useva) [1]. Vodenim tokom radionuklidi se mogu prenositi na velike udaljenosti, što može dovesti do preraspodele njihovog sadržaja unutar vodenog ekosistema. Od prirodnih radionuklidi prisutnih u vodama najznačajniji su potomci radoaktivnog raspada ^{238}U i ^{232}Th , kao i ^{40}K , najzastupljeniji prirodni radioaktivni element koji u najvećoj meri doprinosi ozračivanju živih bića [2-4]. Antropogeni radionuklid ^{137}Cs koji je u životnu sredinu dospelo kao posledica testiranja nuklearnog oružja i nuklearnih katastrofa i danas je prisutan obično u malim, ali merljivim količinama [5-6].

Sediment je „esencijalna, dinamička komponenta svih vodenih sistema koja zbog snažno izražene tendencije vezivanja predstavlja rezervoar toksičnih i perzistentnih jedinjenja antropogenog porekla“ [7]. Sadržaj toksičnih elemenata u sedimentu može biti nekoliko puta veći nego u vodi, zbog čega sedimenti postaju odlagalište za toksične materije i kao takvi mogu predstavljati direktnu opasnost kako za vodene, tako i za kopnene žive organizme. Radionuklidi prisutni u sedimentu mogu biti izvor kontaminacije riba i rakova koji se koriste u ishrani ljudi, i tako doprineti povećanom ozračivanju ljudi.

Materijal i metode rada

Reka Sava nastaje spajanjem slovenačkih reka, Save Bohinjke i Save Dolinke. Predstavlja najveću pritoku reke Dunav u koji se uliva u Beogradu. Dužina toka reke Save iznosi 926 km, od čega je dužina toka reke u Srbiji 207 km [8].

Zadatak ovog istraživanja je bio da se gamaspektrometrijskom metodom odredi sadržaj prirodnih (^{40}K , ^{238}U , ^{226}Ra i ^{232}Th) i proizvedenog (^{137}Cs) radionuklida u vodi i sedimentu reke Save, uzorkovanih u jesen 2022. godine na području Beograda, Sremske Mitrovice i Kupinova.

Uzorci vode i sedimenta prikupljeni su u jesen 2022. godine na području Beograda, Sremske Mitrovice i Kupinova (tabela 1). Na svakoj lokaciji uzimano je po 10 litara vode, i po tri uzorka sedimenta u količini od po 1 kg. Ukupno je prikupljeno 12 uzoraka za gama spektrometrijsko ispitivanje sadržaja radionuklida.

Tabela 1. Lokacije na kojima je uzorkovana voda i sediment, reka Sava

Lokalitet	Vrsta uzorka	Koordinate
Beograd, ušće Save	Voda	44°49'51.2"N 20°27'24.8"E
	Sediment 1	44°49'51.2"N 20°27'24.8"E
	Sediment 2	44°49'51.5"N 20°27'12.9"E
	Sediment 3	44°49'34.5"N 20°26'43.2"E
Sremska Mitrovic	Voda	44°57'26.5"N 19°37'00.3"E
	Sediment 1	44°57'26.5"N 19°37'00.3"E
	Sediment 2	44°57'29.9"N 19°36'41.0"E
	Sediment 3	44°57'40.5"N 19°36'46.7"E
Kupinovo	Voda	44°41'06.1"N 20°02'24.0"E
	Sediment 1	44°41'06.1"N 20°02'24.0"E
	Sediment 2	44°41'04.2"N 20°02'14.6"E
	Sediment 3	44°41'06.1"N 20°03'04.5"E

Po dopremanju u laboratoriju uzorci vode su uparavani do 1 litra i pakovani u standardnu Marineli posudu od 1 kg. Uzorci sedimenta su sušeni na 105°C, prosejavani i pakovani u standardne Marineli posude od 500 g. Svi uzorci su hermetički zatvarani i čuvani najmanje 40 dana radi uspostavljanja radioaktivne ravnoteže između ^{226}Ra i potomaka radioaktivnog raspada. Gama spektrometrijske analize su urađene na HPGe detektoru firme „ORTEC“, efikasnosti 33%. Vreme merenja uzoraka fona i vode je bilo 235000 s i 60000 s za sediment.

Za energetska kalibracija, kao i kalibracija efikasnosti detektora, korišćeni su sertifikovani standardi firme „RADEK“ (Marineli 1 kg) i „CMI“ (Marineli 500 g). Sadržaj ^{238}U je određivan na osnovu gama linija za ^{234}Th (63,2 i 92,8 keV) i $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (1001 keV); ^{226}Ra na osnovu gama linija za ^{226}Ra (186,1 keV), ^{232}Th (^{228}Ra) na osnovu gama linija za ^{228}Ac (338 keV, 911,2 keV i 969 keV); ^{40}K na osnovu 1460,8 keV linije; i ^{137}Cs pomoću 661,66 keV gama linije.

Rezultati i diskusija

U tabeli 2 prikazani su rezultati određivanja sadržaja radionuklida u vodi i sedimentu reke Save na području Beograda, Sremske Mitrovice i Kupinova. Prosečan sadržaj radionuklida u ispitivanim uzorcima vode je bio u skladu sa rezultatima monitoringa radioaktivnosti sprovedenog 2021. godine [9]. Najzastupljeniji prirodni radionuklidi u vodi su ^{40}K (prosečno 0,19 Bq/l) i ^{238}U (prosečno 0,13 Bq/l). Antropogeni radionuklid ^{137}Cs je prisutan u veoma malom sadržaju i ne predstavlja rizik po živa bića. Sadržaj svih ispitivanih radionuklida u vodi reke Save je bio ispod vrednosti izvedenih koncentracija za pojedinačnih radionuklida u vodi za piće [10], što ukazuje da se voda po potrebi može koristiti za napajanje životinja.

Na osnovu podataka iz 2022. godine o ispitivanju sadržaja ^{137}Cs i ^{40}K u vodi reke Sava na području Hrvatske [14] može se uočiti postojanje varijacija u sadržaju radionuklida u zavisnosti od lokaliteta na kome se uzorkuje voda i/ili godišnjeg doba. Tako na primer,

najmanja specifična aktivnost ^{137}Cs (0,0005 Bq/l) je detektovana na području Županje u decembru mesecu, dok je najveća specifična aktivnost ^{137}Cs (0,009 Bq/l) zabeležena u maju mesecu na lokalitetu Harmica. Sadržaj ^{40}K je varirao od 0,006 Bq/l (lokalitet Sisak, maj mesec) do 0,566 Bq/l (lokalitet Sisak, decembar mesec). Detektovane vrednosti sadržaja ^{137}Cs i ^{40}K u vodi reke Save na području Hrvatske su slične rezultatima dobijenim u našoj studiji (tabela 2)

Rečni sediment predstavlja mešavinu materijala organskog i neorganskog porekla, koji se vodom ili ledom može prenositi na veće udaljenosti [11]. Štetne materije prisutne u vodi mogu se akumulirati u sedimentu i tako sedimenti mogu biti dugogodišnji sekundarni izvor ovih polutanata koji se erozijom mogu transportovati nizvodno u rečnom slivu [12].

Tabela 2. Aktivnost prirodnih radionuklida (^{40}K , ^{238}U , ^{226}Ra i ^{232}Th) i proizvedenog radionuklida ^{137}Cs u vodi (Bq/l) i sedimentu (Bq/kg) reke Save

Lokalitet	<i>Uzorak</i>	^{40}K	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{137}Cs
Beograd, ušće Save	Voda	0,44±0,03	0,19 ±0,04	0,06±0,01	0,021±0,002	< 0,004
	Sediment 1	336±17	23±2	24±2	23±1	2,1±0,1
	Sediment 2	412±21	35±4	35±3	36±2	4,8±0,2
	Sediment 3	339±20	21±2	23±3	22±1	2,8±0,2
Sremska Mitrovic	Voda	0,09±0,02	0,17±0,02	0,03±0,01	<0,018	0,010±0,002
	Sediment 1	446±23	37±5	33±3	33±2	4,0±0,3
	Sediment 2	409±21	27±4	25±3	30±2	2,8±0,2
	Sediment 3	457±19	33±4	35±3	35±2	4,6±0,3
Kupinovo	Voda	0,04±0,01	0,04±0,01	0,06±0,01	0,004±0,001	0,003±0,001
	Sediment 1	460±23	34±3	33±2	37±2	6,1±0,3
	Sediment 2	451±19	31±3	33±3	32±2	4,5±0,2
	Sediment 3	497±26	34±4	35±4	37±2	5,8±0,3

U sedimentu reke Save ^{40}K bio je najzastupljeniji radionuklid (423 Bq/kg), dok je prosečan sadržaj ^{238}U (31 Bq/kg), ^{226}Ra (31 Bq/kg) i ^{232}Th (32 Bq/kg) bio znatno manji. Prema rezultatima nacionalnog monitoringa radioaktivnost iz 2021. godine [9] prosečan sadržaj radionuklida ^{40}K (372 Bq/kg), ^{238}U (25 Bq/kg), ^{226}Ra (22 Bq/kg) i ^{232}Th (22 Bq/kg) u sedimentu reke Dunav je bio malo niži u odnosu na sadržaj ovih radionuklida u sedimentu reke Save (tabela 2). Pored toga uočene su i varijacije u sadržaju radionuklida u zavisnosti od lokaliteta i godišnjeg doba uzorkovanja.

U periodu od 2005-2008. godine Eremić-Savković i sar. [13] su ispitivali sadržaj radionuklida u sedimentu reke Save (Beograd) i utvrdili da se dobijene vrednosti nalaze u granicama prosečnih vrednosti za regione u Srbiji, što je u skladu sa našim podacima. Za razliku od prirodnih radionuklida sadržaj antropogenog radionuklida ^{137}Cs je u našoj studiji

bio oko pet puta manji (prosečno 4,2 Bq/kg) u poređenju sa rezultatima iz 2005. godine, kada je u sedimentu prosečan sadržaj ^{137}Cs bio veći od 25 Bq/kg [13]. Smanjenje specifične aktivnosti radiocezijuma-137 u sedimentu reke Save je posledica njegovog radioaktivnog raspada, s obzirom da je od tada prošlo sedamnaest godina. Prema podacima nacionalnog monitoringa iz 2021. godine [9] prosečan sadržaj ^{137}Cs (6,2 Bq/kg) u sedimentu reke Save, lokaliteti Sremska Mitrovica i Beograd je bio malo viši u odnosu na naše rezultate (4,2 Bq/kg). Prosečan sadržaj ^{137}Cs u sedimentu reke Dunav (4,8 Bq/kg) bio je u skladu sa rezultatima naših ispitivanja sedimenta reke Sava. U sedimentu reke Dunav uočene su značajne varijacije sadržaja ^{137}Cs (<0,5-14,3 Bq/kg) u zavisnosti od lokaliteta uzorkovanja što nije uočeno u sedimentu reke Save.

Zaključak

Dobijeni rezultati ukazuju da je ^{40}K bio najzastupljeniji radioaktivni element u sedimentu (prosečno 423 Bq/kg). Najmanji sadržaj ^{40}K detektovan je na lokalitetu Beograd (336 Bq/kg), a najveći u Kupinovu (497 Bq/kg). U sedimentu reke Save, lokalitet Beograda, prosečan sadržaj ^{238}U (26 Bq/kg), ^{226}Ra (27 Bq/kg) i ^{232}Th (27 Bq/kg) je bio malo niži u odnosu na Sremsku Mitrovicu (32 Bq/kg ^{238}U , 31 Bq/kg ^{226}Ra i 33 Bq/kg ^{232}Th) i Kupinovo (33 Bq/kg ^{238}U , 34 Bq/kg ^{226}Ra i 35 Bq/kg ^{232}Th), gde je u sedimentu ustanovljen najveći sadržaj prirodnih radionuklida.

Na osnovu rezultata merenja prirodne radioaktivnosti u uzorcima vode i sedimenta reke Sava sa navedenih lokacija može se zaključiti da se dobijene vrednosti nalaze u granicama prosečnih vrednosti dobijenih merenjem uzoraka iz drugih reka u Srbiji. Aktivnosti radionuklida ^{137}Cs u rečnom sedimentu i vodi su značajno niske i poreklom su od Černobiljskog akcidenta.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/200143 i 451-03-9/2021-14/ 200125).

Literatura

- [1] G. Cinelli, M. De Cort, T. Tollefsen. European Atlas of Natural Radiation, Publication Office of the European Union, Luxembourg, 2019.
- [2] B. Skoko, D. Babić, Z. Franić, T. Bituh, B. Petrinc. Distribution and transfer of naturally occurring radionuclides and ^{137}Cs in the freshwater system of the Plitvice Lakes, Croatia, and related dose assessment to wildlife by ERICA Tool. Environmental Science and Pollution Research Vol.28 No.18, 2021, 23547–23564, <https://doi.org/10.1007/s11356-021-12415-w>
- [3] C. S. Kaliprasad, Y. Narayana. Distribution of natural radionuclides and radon concentration in the riverine environs of Cauvery, South India. Journal of Water and Health Vol.16 No.3, 2018, 476–486, <https://doi.org/10.2166/wh.2018.242>
- [4] A. Hosseini, N. A. Beresford, J. E. Brown, D. G. Jones, M. Phaneuf, H. Thørring, T. Yankovich. Background dose-rates to reference animals and plants arising from exposure to naturally occurring radionuclides in aquatic environments. Journal of Radiological Protection Vol.30 No.2, 2010, 235–264, <https://doi.org/10.1088/0952-4746/30/2/S03>
- [5] Ž. Vuković, M. Radenković, S. J. Stanković, D. Vuković. Distribution and accumulation of heavy metals in the water and sediments of the River Sava. Journal of

- the Serbian Chemical Society, Vol.76 No.5, 2011, 795–803.
<https://doi.org/10.2298/JSC100420067V>
- [6] Direktorat za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost Srbije. Izveštaj o izlaganju stanovništva jonizujućem zračenju u 2021 godinu.
<https://www.srbatom.gov.rs/srbatommm/monitoring-radioaktivnosti>
- [7] US EPA, Methods for Collection, Storage and Manipulation of Sediment for Chemical and Toxicological Analysis: Technical Manual. EPA 823-B-01-002. U.S. Environmental Protection Agency, Office of Water, Washington, DC, 2001.
- [8] <https://savaparks.eu/reka-sava-6727>
- [9] Izveštaj o izlaganju stanovništva jonizujućem zračenju u 2021. godini. Direktorat za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost Srbije.
<https://www.srbatom.gov.rs/srbatommm/wp-content/uploads/2022/08/Izvestaj-Monitoring-2021.pdf>
- [10] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet, Sl. gl. RS 36/18, 2018.
- [11] Agencija za zaštitu životne sredine. Kvalitet sedimenta reka i akumulacija Srbije. Ministarstvo zaštite životne sredine, Beograd, 2019.
<https://www.sepa.gov.rs/download/VodeSrbije/KvalitetSedimentaRekaIakumulacijaSrbije.pdf>
- [12] J. Brils, Sediment monitoring and the European Water Framework Directive. *Annali dell'Istituto superiore di sanità* Vol. 44 No. 3, 2008, 218-23.
- [13] M. Eremic-Savkovic, G. Pantelic, V. Vuletic, I. Tanaskovic, Lj. Javorina. Kontrola radioaktivnosti sedimenta reka u Srbiji, Zbornik radova XXV simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, 30.09.-2. Oktobar 2009, Kopaonik, 108-113.
- [14] I. Tanasković, G. Pantelić, V. Vuletić, Lj. Javorina, M. Eremić-Savković, D. Jovičić. Radioaktivnost sedimenta reke Dunav na različitim lokacijama. Zbornik radova XXII simpozijuma jugoslovenskog društva za zaštitu od zračenja, 29.09.-01. Oktobar 2003, Petrovac, 189-191
- [15] Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada. Praćenje stanja radioaktivnosti u okolišu u Republici Hrvatskoj. Izveštaj za 2022. godinu.
https://civilna-zastita.gov.hr/UserDocsImages/CIVILNA%20ZA%C5%A0TITA/PDF_ZA%20WEB/Izvjestaj%20MUP%202022.pdf

RADIONUCLIDES IN WATER AND SEDIMENT, SAVA RIVER

Branislava M. MITROVIĆ¹, Dragana OSTOJIĆ¹, Danijela LJUBISAVLJEVIĆ²,
Gordana PANTELIĆ¹

- 1) *Faculty of Veterinary Medicine, University of Belgrade, Bulevar oslobođenja 18, Belgrade, Serbia,*
- 2) *Faculty of Physical Chemistry, University of Belgrade, Studentski trg 12-16, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

The aim of this research is to determine the content of natural radionuclides (^{40}K , ^{238}U , ^{226}Ra and ^{232}Th) and artificial radionuclide ^{137}Cs in the water and sediment of the Sava River, by the gamma spectrometric method. The samples were collected during the fall of 2022 in the areas of Belgrade, Sremska Mitrovica and Kupinovo. The obtained results show that the most abundant radionuclide in the sediment of the Sava River is ^{40}K (423 Bq/kg), while the average content of ^{238}U (31 Bq/kg), ^{226}Ra (31 Bq/kg), and ^{232}Th (32 Bq/kg) is significantly lower. The content of anthropogenic radionuclide ^{137}Cs in the sediment ranged from 2.1 Bq/kg to 6.1 Bq/kg. In all examined river water samples, the content of radionuclides was low.

RADIOLOŠKA ANALIZA NEKIH VRSTA LEKOVITOG BILJA SA PODRUČJA GUČEVA I PROCENA GODIŠNJE EFEKTIVNE DOZE USLED INGESTIJE

Mirjana ĐURAŠEVIĆ¹, Igor ČELIKOVIĆ², Aleksandra SAMOLOV²,
Tamara MILANOVIĆ², Zorica OBRADOVIĆ¹, Irina KANDIĆ³,
Aleksandar KANDIĆ²

- 1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Centar za permanentno obrazovanje, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Srbija*
- 2) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za nuklearnu i plazma fiziku, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Srbija*
- 3) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za materijale, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Mirjana ĐURAŠEVIĆ, mirad@vin.bg.ac.rs

SAŽETAK

U bogatoj flori Srbije uspeva veliki broj vrsta lekovitog bilja čiji se sastojci koriste u farmaceutskoj industriji i medicini, kako zvaničnoj tako i narodnoj. Pored toga lekovito bilje se u velikoj meri koristi u svakodnevnoj upotrebi kao neka vrsta napitka. Prirodni radionuklidi (radionuklidi uranovog i torijumovog niza kao i K-40) sastavni su deo naše životne sredine, a kao posledicu nuklearnih akcidenata imamo i prisustvo antropogenih radionuklida, pre svega Cs-137. Masovna upotreba lekovitog bilja predstavlja radijaciono opterećenje za široku populaciju, pa je zbog toga neophodan redovan monitoring.

U ovom radu analizirano je 9 vrsta lekovitog bilja sa područja Gučeva (Zapadna Srbija). Specifične aktivnosti prirodnih radionuklida Pb-210 i K-40, kao i Cs-137 određene su merenjem svih uzoraka na poluprovodničkom HPGe spektrometru. Izračunate su godišnje efektivne doze usled ingestije za svaki izmereni radionuklid, i za dve starosne kategorije (uzrast od jedne godine i odrasla osoba). Svi proračuni su zasnovani na pretpostavci da se dnevno pije 200 ml čaja pripremljenog korišćenjem određene lekovite biljake. Dobijene vrednosti za efektivnu dozu ingestije upućuju na zaključak da svakodnevna upotreba čajeva od lekovitih biljaka sa analiziranog područja ne predstavlja značajan radiološki rizik po zdravlje odrasle osobe, ali je neophodan oprez i obazrivost kada su u pitanju deca.

Uvod

Prirodni radionuklidi (izotopi uranovog i torijumovog niza kao i K-40) prisutni su u našoj životnoj sredini, pa samim tim i u biljnom i životinjskom svetu. Putem hrane oni se unose u ljudski organizam. Primarni izvor veštačkog radionuklida Cs-137 pronađenog u životnoj sredini Srbije je nuklearni akcident u Černobilju (1986). Radionuklide prisutne u životnoj sredini biljke preuzimaju prvenstveno preko korena, a njihova koncentracija u različitim delovima biljke varira kao posledica njihove translokacije. Sadržaj prirodnih i veštačkih radionuklida u zemljištu, kao i fizičko-hemijske karakteristike zemljišta i fiziološka i morfološka svojstva biljaka utiču na sadržaj radionuklida u biljkama [1].

Lekovite biljke imaju masovnu primenu bilo u medicinske svrhe ili u pripremi čajeva za svakodnevnu upotrebu. Na nivou Evropske unije (European Medicines Agency) postoje preporuke za koji uzrast u kojoj količini i koliko se određena lekovita biljka može koristiti [2]. Sa druge strane svakodnevna upotreba biljnih čajeva je nešto što je potpuno van regulatorne kontrole i oslanja se samo na preporuke stručnjaka. Pored radionuklida, biljni čajevi mogu biti štetni i zbog prisustva drugih zagađivača kao što su pesticidi, mikotoksini, mikroorganizmi i teški metali [3, 4]. Zbog toga je neophodan redovan monitoring životne sredine i praćenje koncentracije štetnih elemenata u lekovitim biljkama radi poboljšanja uslova životne sredine i zdravlja ljudi.

Cilj ovo grada je radiološka analiza pojedinih uzoraka lekovitog bilja sa područja zapadne Srbije (obronci planine Gučevo u blizini Loznice). Ona podrazumeva određivanje specifične aktivnosti uočenih radionuklida i vrednosti godišnje efektivne doze ingestijom, na osnovu koje se vrši procena radiološkog rizika koji može nastati dugoročnom upotrebom čajeva. U okviru te procene obuhvaćene su dve starosne grupe – deca uzrasta jedne godine i odrasle osobe. Analizirano je 9 vrsta lekovitog bilja (Tabela 1.). Podaci iz literature o preporučenoj količini lekovitog biljaka za pripremanje čaja se razlikuju od izvora do izvora u zavisnosti od vrste biljke [4, 5, 6, 7].

Materijal i metode

Analizirani uzorci lekovitog bilja potiču sa područja zapadne Srbije (obronci planine Gučevo i okolina grada Loznica). Planina Gučevo (kordinate 44°29'21" N, 19°10'48" E) se nalazi u zapadnoj Srbiji i predstavlja najzapadniju planinu podrinjsko-valjevskih planina. Najviša tačka ove planine je Crni vrh i nalazi se na 779 metara nadmorske visine.

Uzorci 9 vrsta lekovitih biljaka (Tabela 1) prikupljeni su tokom 2022. godine. Svi uzorci su na odgovarajući način pripremljeni, što podrazumeva sušenje i mrvljenje datih uzoraka, kao i pakovanje u odgovarajuću geometriju (cilindrične PVC kutijice zapremine 125 ml). Merenja i gamaspektrometrijska analiza uzoraka obavljena su u Laboratoriji za nuklearnu i plazma fiziku Instituta za nuklearne nauke Vinča. Za potrebe analize kao radni standard korišćen je matriks trave u istoj geometriji, dobijen spajkovanjem sa rastvorom odgovarajućih radionuklida (Am-241, Cd-109, Ce-139, Co-57, Co-60, Cs-137, Ba-133, Sr-85, Y-88, Cr-51 i Pb-210) koji je nabavljen od CMI (Czech metrology institute) [8].

Tabela 1: Preporučena količina lekovitih biljaka za pripremu 200 ml čaja

Naziv lekovite biljke u narodu (Engleski naziv)	Latinski naziv	Familija	Deo biljke koji se koristi	Preporučena količina [g]
Hajdučka trava (Yarrow)	<i>Achillea millefolium</i> L.	Asteraceae	list i cvet	2.0
Nana (Peppermint)	<i>Mentha piperita</i> L.	Lamiaceae	list	2.0
Matičnjak (Lemon balm)	<i>Melissa officinalis</i> L.	Lamiaceae	list	2.5
Rastavić (Horsetail)	<i>Equisetum arvense</i> L.	Equisetaceae	list	2.0
Zova (Elder)	<i>Sambucus nigra</i> L.	Caprifoliaceae	cvet	2.5
Lipa (Linden)	<i>Tilia</i> L.	Malvaceae	cvet	3.0
Kantarion (St John's wort)	<i>Hypericum perforatum</i> L.	Asteraceae	list icvet	2.0
Majčina dušica (Thyme)	<i>Thymus serpyllum</i> L.	Lamiaceae	list icvet	3.0
Neven (Marigold)	<i>Calendula officinalis</i> L.	Asteraceae	cvet	3.0

Svi ispitivani biljni uzorci mereni su u kontakt geometriji pomoću dva koaksijalna HPGe spektrometra: AMETEK-ORTEC GEM 30–70, sa 37 % relativne efikasnosti i 1.7 keV rezolucijom za Co-60 na 1332.5 keV, i Canberra GKS5019, sa 55 % relativne efikasnosti i rezolucijom od 1.96 keV. Dobijeni spektri analizirani su korišćenjem programskog paketa Genie2000 (Canberra) [9]. Da bi se postigla prihvatljiva merna nesigurnost, merenja su trajala i do 330000 s.

Specifične aktivnosti Cs-137, Pb-210 i K-40 određene su na osnovu površine ispod pikova na energijama 661.66 keV, 46.54 keV i 1460.82 keV, respektivno, pri čemu je urađena korekcija na fon. Kod analize K-40 površina ispod pika je korigovana za doprinos linije Ac-228 na energiji 1459.13 keV. Ostali radionuklidi nisu analizirani jer je masa merenih uzoraka relativno mala, pa je njihova koncentracija bila ispod granica detekcije.

Merne nesigurnosti određene su na osnovu opšteg zakona propagacije merne nesigurnosti, pri čemu najveći doprinos potiče od statističke merne nesigurnosti površine ispod pikova (do 20 % za Pb-210) i nesigurnosti određivanja krive efikasnosti (5 %).

Godišnja efektivna doza za ingestiju u slučaju svakodnevne konzumacije 200 ml čaja pripremljenog od lekovitog bilja izračunata je na osnovu dobijenih vrednosti zaspecificiranih aktivnosti radionuklida Cs-137, Pb-210 i K-40, korišćenjem sledeće formule [10]:

$$(1) \quad E_{ing} = A_s H C_d D F_{ing}$$

gde je:

- E_{ing} - godišnja efektivna doza za ingestiju (Sv),
- A_s -specifična aktivnost određenog radionuklida u uzorku (Bq/kg),
- H -količina lekovitog bilja koja se konzumira godišnje (kg),
- C_d -koeficijent rastvorljivosti radionuklida pri pripremanju čaja (0.6 za Cs-137 [11], 0.5 za Pb-210 [12] i 0.9 za K-40 [13]),
- $D F_{ing}$ - koeficijent efektivne doze za ingestiju (Sv/Bq).

Koeficijenti efektivne doze koji su korišćeni u proračunima su:

- $1.2 \cdot 10^{-8}$ Sv/Bq za Cs-137, $42 \cdot 10^{-9}$ Sv/Bq za K-40 i $36 \cdot 10^{-7}$ Sv/Bq za Pb-210 – uzrast jedne godine
- $1.3 \cdot 10^{-8}$ Sv/Bq za Cs-137, $6.2 \cdot 10^{-9}$ Sv/Bq za K-40 i $6.9 \cdot 10^{-7}$ Sv/Bq za Pb-210 – odrasla osoba. [14].

Rezultati i diskusija

Dobijeni rezultati specifičnih aktivnosti radionuklida Cs-137, Pb-210 i K-40, kao i vrednosti godišnjih efektivnih doza usled ingestije prikazani su u Tabeli 2. Svi rezultati dati su sa mernim nesigurnostima na nivou poverenja 1σ . Dobijeni rezultati u skladu su sa podacima datim u dostupnoj literatur, pri čemu treba napomenuti da je malo dostupnih rezultata za Pb-210 [6, 7, 8, 15, 16, 17].

Godišnje efektivne doze ingestije za Cs-137, Pb-210 i K-40, pri čemu se svakodnevno pije 200 ml čaja pripremljenog od lekovitih biljaka ispitivanih u ovom radu za odraslu osobu ne predstavljaju značajno radijaciono opterećenje. To je zato što su i pojenične i ukupne vrednosti daleko ispod preporučene granice u okviru naše domaće legislative od $100 \mu\text{Sv}$ [18]. Kada je u pitanju uzrast od jedne godine, a može se reći i dečija populacija u opšte, dobijene vrednosti ne prelaze definisanu granicu, ali joj se kod nekih lekovitih biljaka

značajno približavaju. Takav je slučaj kod zove, majčine dušice i nevena gde su ukupne godišnje efektivne doze usled ingestije 78.5 μSv , 85.7 μSv i 72.2 μSv respektivno. Najveći doprinos ovim vrednostima predstavlja koncentracija Pb-210 u merenim uzorcima, pa bi stoga trebalo dodatno obratiti pažnju na lokalitete gde su koncentracije olova veće od uobičajenih.

Tabela 2. Specifične aktivnosti radionuklida Cs-137, Pb-210 i K-40 kaoi vrednosti godišnjih efektivnih doza usled ingestije za uzrast jedne godine i odraslu osobu

Naziv lekovite biljke	Specifična aktivnost [Bq/kg]			Individualna godišnja efektivna doza					
				Uzrast jedne godine			Odrasla osoba		
	Cs-137	Pb-210	K-40	Cs-137 [nSv]	Pb-210 [μSv]	K-40 [μSv]	Cs-137 [nSv]	Pb-210 [μSv]	K-40 [μSv]
Hajdučka trava	< 0.6	27.6 \pm 3.7	504 \pm 27	< 3.2	36.3 \pm 4.9	13.9 \pm 0.7	< 3.4	7.0 \pm 0.9	2.1 \pm 0.1
Nana	< 0.5	24.0 \pm 2.9	630 \pm 30	< 3.3	39.4 \pm 4.8	21.7 \pm 1.0	< 3.6	7.6 \pm 0.9	3.2 \pm 0.2
Matičnjak	< 0.7	13.2 \pm 2.2	700 \pm 37	< 4.6	21.7 \pm 3.6	24.2 \pm 1.3	< 5.0	4.2 \pm 0.7	3.6 \pm 0.2
Rastavić	< 0.6	31.5 \pm 4.9	530 \pm 30	< 3.2	41.4 \pm 6.4	14.6 \pm 0.8	< 3.4	7.9 \pm 1.2	2.2 \pm 0.1
Zova	< 0.7	33.9 \pm 5.5	660 \pm 35	< 4.6	55.7 \pm 9.0	22.8 \pm 1.2	< 5.0	10.7 \pm 1.7	3.4 \pm 0.2
Lipa	< 0.6	16.2 \pm 2.5	350 \pm 20	< 4.7	32.0 \pm 4.9	14.5 \pm 0.8	< 5.1	6.1 \pm 0.9	2.1 \pm 0.1
Kantarion	< 0.4	31.9 \pm 3.8	320 \pm 20	< 2.1	41.9 \pm 5.0	8.8 \pm 0.6	< 2.3	8.0 \pm 1.0	1.3 \pm 0.1
Majčina dušica	< 0.8	33.8 \pm 4.4	460 \pm 25	< 6.3	66.7 \pm 8.7	19.1 \pm 1.0	< 6.8	12.8 \pm 1.7	2.8 \pm 0.2
Neven	< 0.8	21.9 \pm 4.2	700 \pm 40	< 6.3	43.2 \pm 8.3	29.0 \pm 1.7	< 6.8	8.3 \pm 1.6	4.3 \pm 0.2

Zaključak

Devet vrsta lekovitih biljaka sa područja zapadne Srbije, obronci planine Gučevo mereni su na poluprovodničkom HPGe spektrometru. Određene su specifične aktivnosti Cs-137, Pb-210 i K-40 i izračunate godišnje efektivne doze za ingestiju u slučaju svakodnevnog unošenja 200 ml čaja pripremljenog korišćenjem ovih lekovitih biljaka za dve starosne grupe (uzrast jedne godine i odrasla osoba). Dobijene vrednosti ukazuju da svakodnevna upotreba čajeva od istraživanih lekovitih biljaka sa datog područja ne predstavlja značajan radiološki rizik za odrasle osobe, dok su se u slučaju uzrasta jedne godine vrednosti ukupne godišnje efektivne doze značajno približile granicnoj vrednosti od 100 μSv .

Zahvalnica

Istraživanje je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] M. Greger. Uptake of nuclides by plants, Report to SKB TR-04-14, 70 pp, Stockholm University, Stockholm, Sweden, 2004.
- [2] https://www.ema.europa.eu/en/medicines/field_ema_web_categories%253Aname_field/Herbal/field_ema_herb_outcome/european-union-herbal-monograph-254
- [3] A. M. Abd El-Aty, J.-H. Choi, M. M. Rahman, S.-W. Kim, A. Tosun, J.-H. Shim, Residues and contaminants in tea and tea infusions: a review, Food Additives & Contaminants Part A Vol.31 No.11 2014, 1794 – 1804.
- [4] I. Kosalec, J. Cvek, S. Tomiš, Contaminants of medicinal herbs and herbal products, Arhiv za higijenu rada i toksikologiju 60(4), 2009, 485-500.
- [5] I. Kandić, A. Kandić, I. Čeliković, M. Gavrilović, P. Janačković, Activity concentrations of ^{137}Cs , ^{40}K , and ^{210}Pb radionuclides in selected medicinal herbs from Central Serbia and their effective dose due to ingestion, Science of Total Environment Vol.701, 2020, 134554.
- [6] M. Jevremović, N. Lazarević, S. Pavlović, M. Orlić, Radionuclide concentrations in samples of medicinal herbs and effective dose from ingestion of ^{137}Cs and natural radionuclides in herbal tea products from Serbian market, Isotopes in Environmental and Health Studies 47(1), 2011, 87-92.
- [7] B. Mitrović, J. Ajtić, M. Lazić, N. Krstić, B. Vranješ, M. Vićentijević, Natural and anthropogenic radioactivity in the environment of Kopaonik mountain, Serbia. Environmental Pollution 215, 2016, 273-279.
- [8] CMI, Radioactive Standard, ER X, Cert. No 1035-SE-40507-22, Czech Metrology Institute, Prague, 2022.
- [9] Genie 2000, Version 3.3 software manual.
- [10] United Nations. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources effects and risks of ionizing radiation: Report to the General Assembly with Scientific Annexes, United Nations Publications, New York, 2016, ISBN 978-92-1-142316-7.
- [11] M. Balonov, C. L. Barnett, M. Belli, et al. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environment, IAEA, Vienna, 2010, ISBN: 9789201130099.
- [12] K. Kametani, H. Ikebuchi, T. Matsumura, H. Kawakami. Ra-226 and Pb-210 concentrations in foodstuffs, Radioisotopes 30(12), 1981, 681-683.
- [13] W. Samolińska, B. Kiczorowska, M. Kwiecień, E. Rusinek-Prystupa, Determination of Minerals in Herbal Infusions Promoting Weight Loss, Biol. Trace. Elem. Res 175(2), 2017, 495-502.
- [14] K. Eckerman, J. Harrison, H. G. Menzel, C. H. Clement, ICRP publication 119: Compendium of dose coefficients based on ICRP publication 60 41(1), 2012.
- [15] B. M. Mitrović, S. N. Grdović, G. S. Vitorović, D. P. Vitorović, G. K. Pantelić, G. A. Grubiš, ^{137}Cs and ^{40}K in some traditional herbal teas collected in the mountain regions of Serbia. Isot. Environ. Health Stud. 50(4), 2014, 538-545.

- [16] Ö. Kiliç, M. Belivermiş, S. Topcuoğlu, Y. Çotuk, ^{232}Th , ^{238}U , ^{40}K , ^{137}Cs , radioactivity concentrations and ^{137}Cs dose rate in Turkish market tea, *Radiat. Eff. Defects S.* 164(2), 2009, 138–143.
- [17] L. A. Najam, N. F. Tafiq, F. H. Kitah, Estimation of Natural Radioactivity of Some Medicinal or Herbal Plants Used in Iraq, *Detection* 3(01), 2015, 1-7.
- [18] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet. *Sl. Glasnik* br. 36/2018-54, 2018.

RADIOLOGICAL ANALYSIS OF SOME TYPES OF MEDICINAL PLANTS FROM THE GUČEVO AREA AND ESTIMATION OF ANNUAL EFFECTIVE DOSE DUE TO INGESTATION

Mirjana ĐURAŠEVIĆ¹, Igor ČELIKOVIĆ², Aleksandra SAMOLOV²,
Tamara MILANOVIĆ², Zorica OBRADOVIĆ¹, Irina KANDIĆ³, Aleksandar KANDIĆ²

- 1) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Permanent Education, Belgrade, Serbia*
- 2) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Nuclear and Plasma Physics, Belgrade, Serbia*
- 3) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Materials, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

In the rich flora of Serbia, there are a large number of medicinal plants types used in the pharmaceutical industry and medicine. There is also a large percentage of daily use of herbal teas as some kind of beverages. Natural radionuclides (radionuclides of the uranium and thorium series as well as K-40) are an integral part of our environment, and as a consequence of nuclear accidents we also have the presence of anthropogenic radionuclides, primarily Cs-137. The significant use of medicinal plants represent a radiological burden for the general population, so the regular monitoring is needed.

In this work, 9 types of medicinal plants from the area of Gučevo (Western Serbia) were analysed. The specific activities of natural radionuclides ²¹⁰Pb i ⁴⁰K as well as Cs-137 were determined using a semiconductor HPGe spectrometer. Annual effective dose due to ingestion were calculated for each measured radionuclide, and for two age categories (one year old and adult). All calculations are based on the assumption daily consumption of 200 ml of herbal tea. The obtained values for the annual effective dose due to ingestion point to the conclusion that the daily use of medicinal plant teas from the analyzed area does not represent a significant radiological risk for the health of adults, but caution and prudence are necessary when it is about children.

PRIMENA JONOIZMENJIVAČKIH SMOLA ZA GAMA SPEKTROMETRIJSKO ODREĐIVANJE RADIJUMA U VODI

Sofija FORKAPIĆ¹, Marija MALETIN², Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹,
Danijel VELIMIROVIĆ¹, Jan HANSMAN¹, Dušan MRĐA¹, Kristina DEMIRHAN¹,
Jasmina AGBABA²

- 1) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Departman za fiziku, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*
- 2) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Departman za hemiju, biohemiju i zaštitu životne sredine, Trg Dositeja Obradovića 3, Novi Sad*

Autor za korespondenciju: Sofija FORKAPIĆ, sofija@df.uns.ac.rs

SAŽETAK

Zbog visoke radiotoksičnosti i sklonosti da se akumulira u kostima kao i drugi alkalni metali veoma je važno razviti brzu i preciznu metodu za određivanje niskih koncentracija radijuma u uzorcima pijaće vode. U ovom istraživanju razmatrana je moguća upotreba komercijalne jonoizmenjivačke smole i modifikovane magnetne smole za pripremu uzoraka vode za gama spektrometrijsku analizu sadržaja radijuma. Ova metoda merenja obezbeđuje dovoljno niske granice detekcije za određivanje radijuma u uzorcima vode bez potrebe za komplikovanom i dugotrajnom radiohemijskom pripremom. U cilju validacije rezultata ispitivanja određena je efikasnost uklanjanja radijuma iz vode pomoću katjonskih smola i rastvora poznate aktivnosti radijuma. Izvršeno je i poređenje efikasnosti detekcije i minimalne detektibilne aktivnosti sa drugim metodama pripreme koje se koriste u standardnim laboratorijskim procedurama za gama-spektrometrijska merenja uzoraka vode.

Uvod

Radioaktivnost voda potiče dominantno od prirodnih radionuklida članova radioaktivnih nizova uranijuma i torijuma, ali takođe mogu biti prisutni i radionuklidi antropogenog porekla ispušteni u vodotokove ili atmosferu. Zbog toga je važno sprovoditi monitoring radioaktivnosti površinskih i pijaćih voda radi procene radijacionog zdravstvenog rizika za stanovništvo [1]. Radium je radioaktivni alkalni elemenat terestrijalnog porekla čija su dva izotopa ²²⁶Ra i ²²⁸Ra najznačajnija sa aspekta zaštite od jonizujućih zračenja, zbog dugih perioda polu-raspada, zastupljenosti u životnoj sredini i visokim doznim konverzionim faktorima [2]. Iako je sadržaj radijuma u vodi veoma nizak, reda veličine mBq/l, ovaj elemenat je izuzetno radiotoksičan i ima tendenciju da se taloži u kostima kao i drugi alkalni elementi (kalcijum, barijum ili stroncijum). Zato je neophodno razviti brzu i preciznu metodu sa dovoljno niskim granicama detekcije kako bi uopšte bilo moguće detektovati prisustvo malih koncentracija ²²⁶Ra i ²²⁸Ra u uzorcima vode za piće [3]. Izuzetno, neke mineralne ili geotermalne vode mogu sadržati ²²⁶Ra i do koncentracija reda veličine Bq/l [4].

Katjonske jonoizmenjivačke smole su prepoznate kao najbolja dostupna tehnologija (BAT) za uklanjanje radijuma iz vode sa efikasnošću do 99 % u zavisnosti od izbora smole, pH vrednosti i konkurentnih jona [5]. U ovom radu je istražena moguća primena komercijalno dostupne jonoizmenjivačke smole Lewatit za pripremu uzoraka sveže vode za gama-spektrometrijsku analizu sadržaja radijuma. Ovom metodom moguće je postići dovoljno niske granice detekcije u vodenim matricama bez potrebe za komplikovanim radiohemijskim procedurama pripreme uzoraka koje obično i dugo traju kao kod

alfa-spektrometrijskih metoda. Zakonski propisane granice za koncentracije radijuma u pijaćoj vodi su veoma niske (0,5 Bq/l za ^{226}Ra i 0,2 Bq/l za ^{228}Ra) i odgovaraju indikativnoj dozi od 0,1 mSv/godišnje [6]. Ove koncentracije su izvedene na osnovu doznih koeficijenata iz publikacije ICRP119 [7] i prosečnog unosa pijaće vode na godišnjem nivou od 730 l za odrasle osobe [8].

Metode merenja i pripreme uzoraka

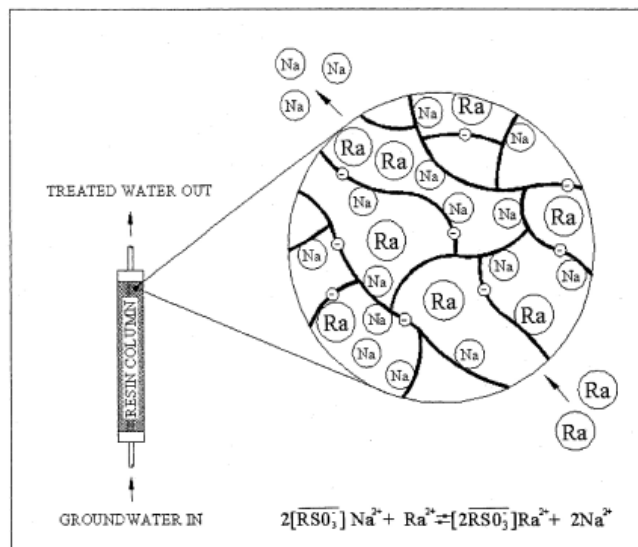
Za gama-spektrometrijska merenja uzoraka vode najčešće se koriste tri uobičajene procedure pripreme uzoraka u zavisnosti od zahtevanih limita detekcije [9]. Nakon prikupljanja, uzorci vode se zakišeljavaju da bi se sprečila adsorpcija radijuma na zidovima nosača uzorka koji su najčešće od plastičnih materijala. Kod direktnih merenja tako zakišljeni uzorak se sipa u posudu za merenje cilindrične ili Marineli geometrije koja je pogodnija zbog veće efikasnosti detekcije. Za ovo istraživanje korišćene su plastična posuda cilindrične geometrije zapremine 500 ml i Marineli geometrije zapremine 450 ml, koje se potom postavljaju na kapu germanijumskog detektora poznate efikasnosti.

Ukoliko se koncentracije aktivnosti radionuklida u vodi određuju iz suvog ostatka, neophodno je prethodno izvršiti uparavanje vode, zapremine 20 l – 25 l, koja je presuta u kontejner obložen aluminijumskom folijom. Nakon uparavanja, koje najčešće traje nekoliko dana u termostatoranim sušnicama na (70-100) °C, aluminijumska folija na kojoj se nalazi suvi ostatak, pakuje se u cilindričnu kutiju dimenzija: prečnika 72 mm i visine 30 mm. Kutija se potom postavlja na kapu germanijumskog detektora poznate efikasnosti. Radionuklidi ostaju na aluminijumskoj foliji u vidu suvog ostatka i reprezentuju celokupnu količinu vode koja se uparila.

Za prekoncentrisanje radionuklida iz velike zapremine vode za gama-spektrometrijsko određivanje sadržaja radionuklida, korišćena je i MnO_2 precipitacija. Ovo je takođe veoma efikasan metod za prikupljanje radijuma i ostalih radionuklida gama-emitera iz vode (torijuma, uranijuma, polonijuma, aktinijuma i olova) [2]. U polaznu zapreminu od 10 litara vode se dodaje kalijum permanganat KMnO_4 , nakon čega se uzorak zagreva do 50 °C uz konstantno mešanje. Potom se dodaje 35 % vodonik-peroksida H_2O_2 (dok rastvor ne dostigne $\text{pH} = 7$) i nastavlja se sa mešanjem sve dok se interakcija među jedinjenjima ne završi. Nakon taloženja voda se filtrira kroz filter-papir na kojem se zadržavaju prisutni radionuklidi. Da bi se sprovedla gama-spektrometrijska analiza sadržaja radionuklida, filter-papir se suši i homogeno pakuje u plastičnu kutiju cilindričnog oblika (dimenzija: prečnika 72 mm i visine 30 mm) koja se postavlja na kapu germanijumskog detektora poznate efikasnosti. Radionuklidi ostaju zahvaćeni u talogu na filteru koji u stvari reprezentuje celokupnu količinu vode koja se profiltrirala.

Katjonske jonoizmenjivačke smole sadrže pozitivne jone koji se selektivno zamenjuju pozitivnim jonima iz vode kao što je ^{226}Ra (Slika 1). Efikasnost ovih smola u mnogome zavisi od selektivnosti jona, tj. od njihove valence i atomskog broja jona, što je razlog za lakše vezivanje jona radijuma od jona magnezijuma ili kalcijuma [10]. Fizičke osobine smole od kojih zavisi njihova selektivnost su veličina pora i funkcionalne grupe kojima su joni vezani za smolu. U eksperimentu korišćena je smola Lewatit TP207. Analizirani su uzorci pijaćih voda i voda iz geotermalnih izvora. Početna zapremina od 10 l zakišljene vode je propušтана kroz kolonu sa smolom podešenog protoka oko 1 ml/min. Na Departmanu za hemiju, biohemiju i zaštitu životne sredine izvršeno je modifikovanje komercijalno dostupne jonoizmenjivačke smole Lewatit TP207 sa magnetnim nanočesticama u adsorbent koji se lako može odvojiti od vode korišćenjem magnetna i efikasniji je za adsorpciju teških metala. U cilju proučavanja primene ovakve smole za uklanjanje radijuma iz vode izvršena je procena

MDA za gama-spektrometrijsku metodu određivanja radijuma u vodi uz propuštanje 5 l vode kroz smolu.



Slika 1. Jonoizmenjivačka kolona i princip uklanjanja radijumovih jona iz vode [9]

Gama-spektrometrijska merenja pripremljenih uzoraka izvršena su pomoću nisko-fonskog HPGe detektora proizvođača Canberra, model GX10021 u originalnoj zaštiti od olova debljine zidova 15 cm. Ovaj detektor ima prošireni energetski opseg od 6 keV do 3 MeV i relativnu efikasnost od 100 % (ekvivalentno apsolutnoj efikasnosti 3" x 3" NaI(Tl) detektora na 1332 keV). Kalibracija efikasnosti gama-spektrometarskog sistema je određena snimanjem gama spectra sertifikovanog radioaktivnog izvora u cilindričnoj geometriji sa matricom smole i miksom radionuklida gama emitera poznate aktivnosti (Czech Metrology Institute, model CBSS2, certificate no. 1035-SE-40001-17). Za prikupljanje i obradu spektara korišćen je program GENIE 2000 Spectroscopy Software, Canberra U.S.A, version 3.3, a za prelaz na različite geometrije i matrice uzoraka ANGLE program, version 3.0.

Određivanje minimalne granice detekcije MDA za različite metode pripreme uzoraka vode

MDA za određivanje sadržaja ^{226}Ra u vodi gama-spektrometrijskom metodom za različite primenjene procedure pripreme i prekoncentrisanja uzoraka su proračunate na osnovu Kirijeve jednačine [11]:

$$(1) \quad MDA = \frac{2.71 + 4.65\sqrt{Rt}}{t p_{\gamma} \varepsilon V}$$

gde su: R brzina brojanja u fonskom spektru, t vreme merenja (86400 s), p_{γ} prinos gama linije, V početna zapremina uzorka vode i ε efikasnost detekcije za odabranu energiju proračunata za specifičnu matricu merenog uzorka i geometriju i material nosača uzorka. Za magnetnu smolu korišćeni su sledeći podaci za gustinu od 1,15 g/cm³ geometriju cilindričnog plastičnog nosača od 40 mm x 20 mm. Na osnovu formule (1) može se zaključiti da duža vremena merenja i veće početne zapremine uzorka vode mogu dodatno sniziti MDA. U Tabeli 1 date su dobijene vrednosti za sve gore opisane procedure pripreme uzoraka vode za gama-spektrometrijska merenja. Za određivanje radijuma ^{226}Ra odabrana je gama linija od 186,1 keV umesto post-radonskih linija, zbog mogućnosti merenja uzorka neposredno nakon pripreme bez čekanja da se uspostavi radonska ravnoteža (oko 40 dana). Međutim, nedostatak

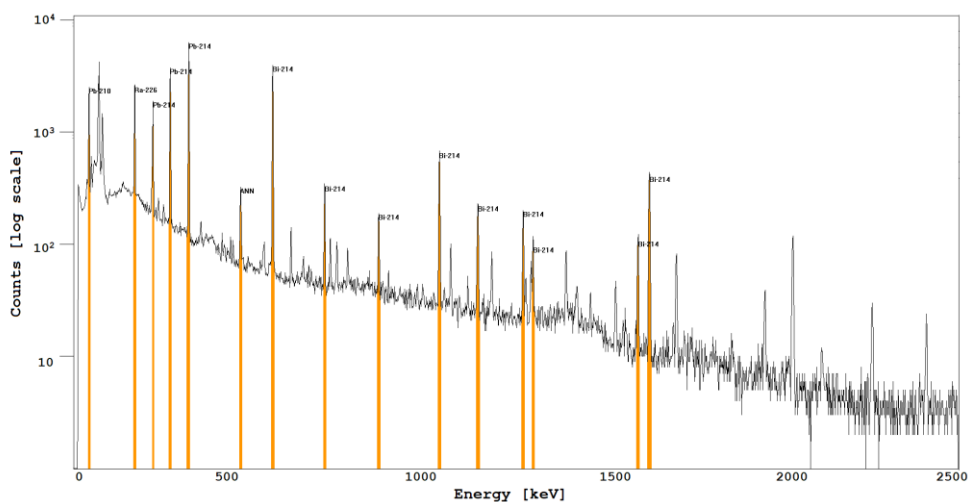
ovakvog izbora gama linije je relativno mala verovatnoća gama prelaza (3,28 %), i dodatno mogućnost preklapanja sa gama linijom uranijuma ^{235}U od 185,7 keV sa daleko većom verovatnoćom emisije fotona od 57,24 %. Ipak u većini slučajeva ova linija se može pripisati radijumu ^{226}Ra uzimajući u obzir prirodnu zastupljenost ^{235}U (izotopski odnos $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ od 0,046) i zanemarljivu prisutnost uranijuma u pijaćim vodama.

Tabela 1. Procenjene MDA za različite procedure pripreme uzoraka vode

R.br.	Procedura pripreme	Efikasnost detekcije ϵ (186,1 keV)	MDA za ^{226}Ra (186,1 keV) [mBq/l]
1.	direktno merenje cilindar 0.5 l	0,03071	2000
2.	uparavanje iz 5 l na Al	0,06291	100
3.	MnO_2 precipitacija iz 5 l	0,07429	80
4.	Jonoizmenjivačka magnetna smola iz 5 l	0,10996	55

Određivanje efikasnosti uklanjanja radijuma iz rastvora poznate aktivnosti

Da bi se utvrdila efikasnost uklanjanja radijuma, pripremljen je vodeni rastvor sa poznatom aktivnošću ^{226}Ra i propušten kroz kolonu napunjenu sa 25 g magnetne smole. Rastvor poznate koncentracije aktivnosti radijuma je napravljen spajkovanjem u destilovanu vodu tečnog sertifikovanog referentnog izvora ^{226}Ra (Czech Metrology Institute Cert.No:9031-OL-551/13) poznate koncentracije ^{226}Ra (1,0844 ng/g sa kombinovanom standardnom nesigurnošću 0,5 %). Da bi se sprečila adsorpcija radijuma na zidove posude i da bi se održala homogena distribucija radijuma unutar vodene matrice, rastvor je zakišljen sa 5 ml 2M HNO_3 . Ovaj rastvor je meren pre i posle jonske razmene na magnetnoj smoli (Slika 2). Rezultati određivanja aktivnosti su dati u Tabeli 2.



Slika 2. Spektar smole nakon propuštanja spajkovane vode

Tabela 2: Rezultati određivanja efikasnosti uklanjanja radijuma za magnetnu smolu

Uzorak	^{226}Ra aktivnost [Bq]
Spajkovana voda pre kolone	$51,1 \pm 2,6$
Magnetna smola posle kolone	$51,2 \pm 2,6$
Efikasnost uklanjanja ^{226}Ra	100%

Rezultati

Rezultati gama-spektrometrijskih analiza sadržaja ^{226}Ra u uzorcima voda koji su pripremljeni propuštanjem kroz kolonu sa Lewatit TP207 jonoizmenjivačkom smolom su prikazani u Tabeli 3.

Tabela 3: Rezultati određivanja sadržaja radijuma u površinskim, pijaćim i podzemnim vodama

Određivanje koncentracije aktivnosti ^{226}Ra i ^{228}Ra Lewatit					
Uzorak	Opis uzorka	A (^{226}Ra) [mBq/l]	A (^{228}Ra) [mBq/l]	datum uzorkovanja	početna zapremina [l]
1	Zlatibor vodovod	6,8±1,2	3,1 ± 2,2	2022.	123,7 (postignuta saturacija)
2	Bigar vodopad površinska	50±7	2,9±0,5	19.04.2022.	25
3	Niška Banja Školska česma	88±18	2,7±0,3	19.04.2022.	25
4	Niška Banja Kraljev izvor	770±50	1,79±0,24	19.04.2022.	25
5	Ždrelo Gabrovnica	52±9	2,3±0,4	19.04.2022.	25
6	Žitorađa javna česma	45±4	9,5±1,2	26.07.2022.	20
7	Žitorađa vodovod	3,3±1,0	3,7±1,1	26.07.2022.	20
8	Prolom banja izvor	12±4	6,4±2,3	31.08.2022.	22

Diskusija i zaključak

U radu je detaljno analizirana primena jonoizmenjivačkih smola komercijalne prirode i iste smole modifikovane magnetnim česticama za određivanje sadržaja radijuma niske koncentracije u pijaćim, površinskim i podzemnim vodama. Predložena je brza metoda bez čekanja uspostavljanja radonske ravnoteže u uzorku na osnovu linije od 186,1 keV. Pored prednosti izbegavanja post-radonskih linija i problema koji nastaju izdvajanjem radona u vazдушnom prostoru ispod čepa nosača uzorka, nedostatak ove metode može biti precenjivanje rezultata ako je u vodi prisutan ^{235}U zbog preklapanja sa linijom 185,7 keV veće verovatnoće emisije fotona. Procenjuje se da ova greška ne unosi veliku neodređenost zbog male zastupljenosti ^{235}U u uzorcima iz životne sredine. Poređenje granica detekcije MDA svih procedura pripreme uzoraka vode, koje se najčešće koriste kod gama-spektrometrijskih analiza, pokazuje da primena jonoizmenjivačkih smola za istu početnu zapreminu vode i mereno na istom detektoru daje najnižu granicu detekcije i mogućnost da se odrede zaista niske koncentracije aktivnosti radijuma u pijaćoj vodi radi usaglašavanja sa zakonskom regulativom ($< 0,5 \text{ Bq/l}$ za ^{226}Ra i $< 0,2 \text{ Bq/l}$ za ^{228}Ra). Kod direktne metode merenja korišćena je cilindrična posuda zapremine 0,5 l zbog nemogućnosti da se Marineli posuda postavi na kapu detektora.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev.br. 451-03-47/2023-01/200125)

Literatura

- [1] WHO World Health Organization. (2018), Guidelines for Drinking-Water Quality, Fourth Edition incorporating the First Addendum, Geneva
- [2] IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series No. 19: Analytical Methodology for the Determination of Radium Isotopes in Environmental Samples IAEA/AQ/19, Vienna 2010.
- [3] The Environmental Behavior of Radium, IAEA Technical Reports Series 476, Vienna (2014).
- [4] G. Cinelli, M. De Cort, T. Tollefsen. (Eds.), European Atlas of Natural Radiation, Publication Office of the European Union, Luxembourg, 2019.
- [5] W. Fan, B. Liberati, M. Novak, M. Cooper, N. Kruse, D. Young, and J. Trembly: Radium-226 Removal from Simulated Produced Water Using Natural Zeolite and Ion-Exchange Resin, Ind. Eng. Chem. Res., Vol. 55, 2016, 12502–12505
- [6] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet, Sl. gl. RS 36/18, 2018.
- [7] The European Commission Drinking Water Directive 98/83/EC
- [8] [8] ICRP, 2012. Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41(Suppl.).
- [9] Kvalitet vode – Radionuklidi koji emituju gama zračenje – Metoda ispitivanja sa gama spektrometrijom visoke rezolucije SRPS EN ISO 10703:2021
- [10] J. F. McMahon, Removing radium-226 contamination from ion exchange resins used in drinking water treatment, Master's Theses, University of New Hampshire, Durham, 2008.
- [11] L.A. Currie, Limits for qualitative and quantitative determination. Anal. Chem. 40, 1968, 586 – 593

APPLICATION OF ION EXCHANGE RESINS FOR GAMMA SPECTROMETRIC DETERMINATION OF RADIUM IN WATER

Sofija FORKAPIĆ¹, Marija MALETIN², Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹,
Danijel VELIMIROVIĆ¹, Jan HANSMAN¹, Dušan MRĐA¹, Kristina DEMIRHAN¹,
Jasmina Agbaba²

- 1) *Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*
- 2) *Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Department of Chemistry, Biochemistry and Environmental Protection, Trg Dositeja Obradovića 3, Novi Sad*

ABSTRACT

Due to its high radiotoxicity and tendency to accumulate in bones like other alkaline metals, it is very important to develop a fast and accurate method for the determination of low concentrations of radium in drinking water samples. In this research, the possible use of commercial ion exchange resin and modified magnetic resin for the preparation of water samples for gamma spectrometric analysis of radium content was considered. This measurement method provides sufficiently low detection limits for the determination of radium in water samples without the need for complicated and time-consuming radiochemical preparation. In order to validate the test results, the efficiency of radium removal from water was determined using cationic resins and solutions of known radium activity. A comparison of detection efficiency and minimum detectable activity with other preparation methods used in standard laboratory procedures for gamma-spectrometric measurements of water samples was also performed and discussed.

**ODREĐIVANJE VEŠTAČKIH I PRIRODNIH RADIONUKLIDA U UZORKU
ZEMLJIŠTA U SVRHU INTERKOMPARACIJE IAEA-TERC-2022-02**

Jelena ĐORĐEVIĆ¹, Nevena ZDJELAREVIĆ¹, Nataša LAZAREVIĆ¹,
Dalibor ARBUTINA¹

1) *Javno preduzeće „Nuklearni objekti Srbije”, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Jelena ĐORĐEVIĆ, jelena.djordjevic@nuklearniobjekti.rs

SAŽETAK

Interkomparaciju za članove Mreže analitičkih laboratorija za merenje radioaktivnosti u prirodi (Analytical Laboratories for the measurement of Environmental Radioactivity Network - ALMERA) organizovala je Međunarodna agencija za atomsku energiju (MAAE) 2022. godine. Cilj interkomparacije bila je procena analitičkog učinka laboratorija učesnica prilikom gama spektrometrijskih ispitivanja. Zbog lakše logistike za organizatore i učesnike, ALMERA je obezbedila spektar uzorka zemljišta kao deo paketa. Glavni cilj takve procedure bio je da se obezbedi fokus na samu analizu spektra. Prilikom određivanja prirodnih i veštačkih radionuklida u dobijenom spektru korišćena je korekcija krive efikasnosti HP Ge detektora usled pravog koicidentnog sumiranja, transfer energije i izračunata je specifična aktivnost radionuklida. U radu su prikazani dobijeni rezultati specifične aktivnosti radionuklida kao i obrada i interpretacija rezultata poređenja.

Uvod

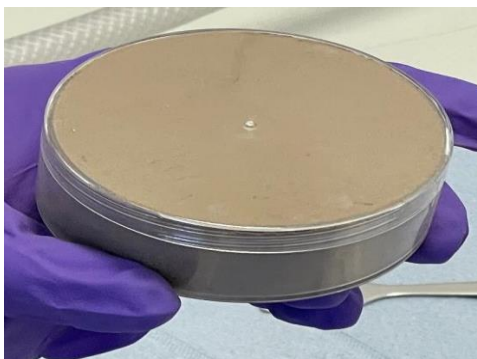
Laboratorija Sektora za radijacionu sigurnost i zaštitu životne sredine u okviru Javnog preduzeća „Nuklearni objekti Srbije“ učestvovala je na *IAEA-TERC-2022-02 ALMERA Proficiency Test* organizovanom od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju (*International Atomic Energy Agency - IAEA*) tokom 2022. godine. U sklopu ove međunarodne interkomparacije za jedan od uzoraka je dostavljen spektar. Samim tim ova interkomparacija predstavlja kuriozitet kao prva *Proficiency Test* koja podrazumeva analizu dostavljenog spektra. Ideja za ovaj vid provere je potekla od laboratorija članica koje analiziraju zemljište nakon uspešne međunarodne vežbe ConvEx-3 (2021). Cilj vežbe je bila provera odgovora zemalja članica na zadati spektar zemljišta.

Fokus ove interkomparacije bio je na samoj analizi spektra. Ovakav vid provere članica međunarodne mreže laboratorija za merenje radioaktivnosti u prirodi je delom odabran i da bi se vežbala analiza dostavljenog spektra i izveštavanje rezultata putem zvaničnih kanala u slučaju kratkog roka za izveštavanje, prilikom vanredne situacije. Način dostave spektra omogućio je lakšu logistiku za organizatore i učesnike, kao i eliminaciju mogućnosti kontaminacije laboratorije.

Treba istaći da je pored 69 laboratorija članica ALMERA mreže, još 128 laboratorija poslalo svoje rezultate analize spektra, što ukupno čini 197 laboratorija koje su učestvovala u ukupnoj statistici koja je usledila iz obrade poslatih rezultata.

Metoda merenja

Spektar je dobijen merenjem spajkovanog uzorka zemljišta nepoznatog porekla označen kao: “Tarjanian soil“, pripremljenog za merenje u cilindričnoj geometriji, prikazan na slici 1.



Slika 1. Slika uzorka zemljišta



Slika 2. Slika detektora BBE

“Tarjanian soil“

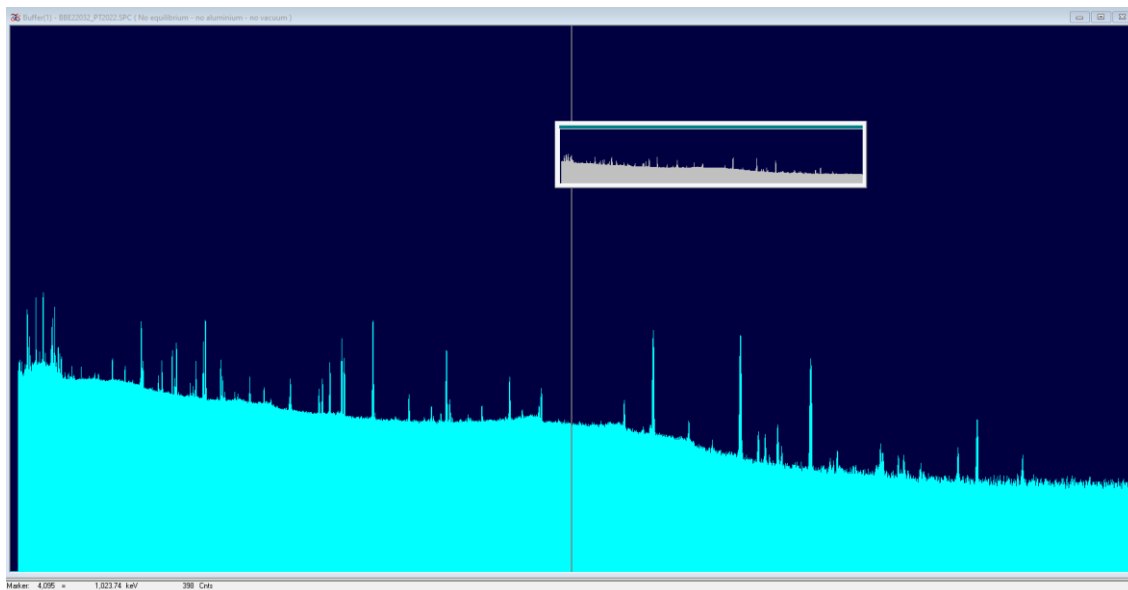
Zemljište je čuvano više od 6 godina nakon spajkovanja, u plastičnoj posudi za koju nije dokazano da je nepropusna za radon, da bi u aprilu 2022. godine bilo pripremljeno i prebačeno u geometriju u kojoj je izvršeno merenje. Merenja radioaktivnosti su izvršena na BEGe 5030 detektoru (BBE) proizvođača “CANBERRA” čije karakteristike su prikazane u Tabeli 1, a sam detektor je prikazan na Slici 2.

Tabela 1. Karakteristike BBE detektora

Oznaka detektora	PT2022(BBE)
Model detektora	BE5030P
Tip detektora	planarni
Visoki napon	+4000 V
Opseg energija	3-10000 keV
Kriostat	Niskofonski, U-tipa
Olovna zaštita	777-Canberra
Pb	150 mm
Cd	2 mm
Cu	3 mm
Digitalni analizator signala	LYNX-MCA FW V1.1.83.1

Detektor je eksperimentalno kalibrisan za cilindričnu geometriju, u energetskom opsegu od 46.5 keV do 1836 keV. Vreme merenja uzorka zemljišta je iznosilo 417600 s, dobijeni spektar je prikazan na Slici 3. Takođe elementarna analiza sastava uzorka je izvršena putem XRF analizatora, i podaci o sastavu zemljišta su dostavljeni u sklopu paketa. Kao deo paketa je dostavljen i spektar uzorka vode spajkovane sertifikovanim referentnim materijalom, zajedno sa svim neophodnim podacima, kao što je sertifikat referentnog materijala izdatog od

strane Nacionalne laboratorije za fiziku iz Velike Britanije, na osnovu kojih je izvršena energetska kalibracija i kalibracija efikasnosti. Obezbeđeni su i spektri fona i blanka, koji su snimani 1 400 000 s i 604 800s respektivno.



Slika 3. Slika spektra uzorka zemljišta

Rezultati

Uzorak je analiziran akreditovanom metodom prema SRPS ISO/IEC 17025:2017 [1], IAEA TRS 295[2] i ASTM C1402[3], korišćenjem kompjuterskog programa Gamma Vision za vršenje analize spektra. Sama analiza spektra se sastojala iz nekoliko koraka. Prvo je urađena energetska kalibracija, a zatim i kalibracija efikasnosti na vodenom matriksu. Vreme snimanja vodenog matriksa je iznosilo 20000 s. Određeni su odgovarajući korekcionni faktori za koincidentno sumiranje korišćenjem programa EFFTRAN [4]. Korekcionni faktori za koincidentno sumiranje zavise od geometrije merenja i karakteristika samog detektora, Ulazni podaci koje koristi EFFTRAN su parametri detektora koji su dostupni u specifikaciji proizvođača: dimenzije i materijal kristala, držača kristala, kućišta i prozora detektora, kao i debljina mrtvog sloja. Takođe, kao ulazni podaci, potrebni su i parametri koji se odnose na uzorak, a koji uključuju dimenzije i materijal posude u kojoj se nalazi uzorak, količinu, tj. masu i visinu punjenja, kao i hemijski sastav uzorka. Svi potrebni podaci za ovaj korak su dostavljeni laboratorijama kako deo paketa, s tim da je laboratorijama ostavljeno da na osnovu iskustva dopune hemijski sastav uzorka koji je dobijen rendgenskom fluorescentnom analizom pomoću XRF analizatora. Tako dobijene efikasnosti su pomoću EFFTRAN programa, opcijom transfer efikasnosti, korigovane na matriks zemljište. Potom su za identifikovane prirodne i veštačke radionuklide primenjeni svi izračunati faktori, kako bi se odredila aktivnost uzorka. Aktivnost uzorka zemljišta dobijena je korišćenjem sledeće formule:

$$(1) \quad A = \frac{N \times C(E)}{t \times p \times \epsilon}$$

gde N predstavlja odbroj ispod pika, C(E) korekcionni faktor za koincidentno sumiranje izračunat pomoću EFFTRAN programa, t vreme merenja, p prinos i ϵ predstavlja efikasnost izračunatu pomoću EFFTRAN programa. Kombinovana ili ukupna merna nesigurnost je izračunata kao kvadratni koren zbira kvadrata svih identifikovanih i u istim jedinicama

određenih mernih nesigurnosti. Za svaki radionuklid je izračunata merna nesigurnost prema formuli:

$$(2) \quad u(A) = \sqrt{u_{rel}^2(\varepsilon) + u_{rel}^2(N) + u_{rel}^2(\text{fit}) + u_{rel}^2(m) + u_{rel}^2(p_\gamma) + u_{rel}^2(C(E)) + u_{rel}^2(f_d)}$$

gde je:

$$u_{rel}(\varepsilon) - \text{definisano jednačinom } u_{rel}(\varepsilon) = \sqrt{u_{rel}^2(A_{ref}) + u_{rel}^2(N_{ref}) + u_{rel}^2(C(E))},$$

$u_{rel}(A_{ref})$ - relativna nesigurnost aktivnosti u standardu, dobijena od proizvođača,

$u_{rel}(N_{ref})$ - relativna nesigurnost odbroja dobijena u programu Gamma Vision,

$u_{rel}(C(E))$ - relativna nesigurnost proračuna korekcionih faktora za koincidentno sumiranje,

$u_{rel}(N)$ - relativna nesigurnost odbroja,

$u_{rel}(\text{fit})$ - nesigurnost određena fitovanjem krive.

Merna nesigurnost radionuklida sa dve ili više gama linija dobijene aktivnosti kao srednje vrednosti aktivnosti pojedinačnih gama linija izračunata je prema formuli:

$$(3) \quad u^2(\bar{A}) = \frac{1}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{u^2(A_i)}} .$$

Merna nesigurnost je izražena sa sigurnim ciframa različitim od nule u skladu sa preporukom *Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement* [5] da se merna nerna nesigurnost zaokružuje na najviše dve značajne cifre i u skladu sa dobrom laboratorijskom praksom i iskustvom samog analitičara.

Rezultati merenja izraženi u Bq/kg pojedinačno za svaki radionuklid zajedno sa ocenom organizatora interkomparacije su prikazani u Tabeli 2 .

Tabela 2. Ocena rezultata gamaspektrometrijske analize uzorka "Tarjanian soil"

Analit	Robusna srednja vrednost [Bq/kg]	Robusna standardna devijacija [Bq/kg]	Prijavljena vrednost [Bq/kg]	Prijavljena merna nesigurnost [Bq/kg]	z	Kriterijum prihvatljivosti $z < 2$
Ac-228	36,27	3,03	38,6	3,3	0,77	A
Am-241	78,89	7,59	81,1	6,5	0,29	A
Ba-133	62,13	8,76	65,0	5,2	0,33	A
Bi-212	39,39	5,02	42,7	3,5	0,66	A
Bi-214	31,49	3,39	32,7	1,9	0,36	A
Co-60	123,96	8,12	127,2	10,2	0,40	A
Cs-134	39,8	3,85	42,4	2,3	0,68	A
Cs-137	83,2	4,79	85,3	6,8	0,44	A
K-40	449,74	31,25	448	36	0,06	A
Pb-210	621,79	80,1	661	53	0,49	A
Pb-212	38,24	3,99	43,3	3,5	1,27	A
Pb-214	32,86	2,5	33,9	1,9	0,42	A
Ra-226	38	10,91	35,7	3,1	0,21	A
Th-234	28,6	6,56	25,5	2,1	0,47	A
Tl-208	13,25	1,92	14,5	1,6	0,65	A
U-235	1,46	0,55	1,59	0,21	0,24	A

Kao što se može videti iz Tabele 2, svi rezultati gamaspektrometrijske analize uzorka su ocenjeni kao prihvatljivi, kriterijum prihvatljivosti je bio: $zscore \leq 2$. U skladu sa ISO 13528[6] za svaki radionuklid, izračunata je robusna srednja vrednost i robusna standardna devijacija prijavljenih rezultata, z rezultat je korišćen za procenu rezultata za one radionuklide koje je prijavilo najmanje 30 laboratorija. Ovaj način je primenjen jer namera organizatora nije bila da unapred postavlja ciljne vrednosti za vežbu spektra.

Zaključak

U radu su prikazani rezultati gamaspektrometrijske analize dostavljenog spektra zemljišta. Analiza rezultata pokazuje odlično slaganje sa vrednostima usvojenim od strane organizatora. Rezultati analize potvrdili su uspešnu primenu akreditovane metode za gamaspektrometrijska ispitivanja u delu koji se odnosi na samu analizu spektra i obradu rezultata, što je i predstavljalo sam cilj učešća na ovoj međunarodnoj interkomparaciji.

Literatura

- [1] Opšti zahtevi za kompetentnost laboratorija za ispitivanje i laboratorija za etaloniranje SRPS ISO/IEC 17025, Institut za standardizaciju Srbije, Beograd, 2017
- [2] Measurements of Radionuclides in Food and Environment, Method for Determining Gamma Emitters, IAEA Technical Reports Series No. 295, Vienna, 1989
- [3] Standard Guide for High-Resolution Gamma-Ray Spectrometry of Soil Samples, ASTM C1402, 2017
- [4] <https://efftran.github.io>
- [5] Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement, Joint Committee for Guides in Metrology, 2008
- [6] Statistical methods for use in proficiency testing by interlaboratory comparison, ISO 13528, International Organization for Standardization, Geneva, 2022

DETERMINATION OF GAMMA-EMITTING ANTHROPOGENIC AND NATURAL RADIONUCLIDES IN SOIL SAMPLE FOR THE PURPOSE OF PROFICIENCY TEST IAEA-TERC-2022-02 ALMERA

Jelena ĐORĐEVIĆ¹, Nevena ZDJELAREVIĆ¹, Nataša LAZAREVIĆ¹,
Dalibor ARBUTINA¹

1) *Public Company „Nuclear Facilities of Serbia”, Mike Petrovića Alasa 12-14,
Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

Proficiency test for members of Analytical Laboratories for the measurement of Environmental Radioactivity Network (ALMERA) on the determination of gamma emitting radionuclides in soil sample was organized by International Atomic Energy Agency (IAEA) in 2022. Purpose of the proficiency test was to estimate analytical performance of participating laboratories. Due to easier logistics for organizers and participants, ALMERA provided spectrum of Tarjanian soil sample as part of package. Main purpose of such procedure was to provide focus on the actual analysis of the spectrum. Efficiency transfer method, coincidence summing corrections and identification of radionuclides has been performed. Results of gamma-spectrometric determination of radionuclides in soil sample and evaluation of the reported results are presented and discussed.

RASPODELA KONCENTRACIJA AKTIVNOSTI PRIRODNIH RADIONUKIDA U UZORCIMA ŽIVOTNE SREDINE KAO POSLEDICA RADA TERMoeLEKTRANE “KOLUBARA” U PERIODU 2010 – 2022. GODINE

Ivana VUKAŠINOVIĆ¹, Dragana TODOROVIĆ², Jelena KRNETA NIKOLIĆ³,
Milica RAJAČIĆ², Marija JANKOVIĆ², Nataša SARAP², Julija ŠĆEKIĆ¹

- 1) *Univerzitet u Beogradu, Poljoprivredni fakultet, Katedra za matematiku i fiziku, Nemanjina 6, Zemun-Beograd*
- 2) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za Zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*

Autor za korespondenciju: Ivana VUKAŠINOVIĆ, ivanavu@agrif.bg.ac.rs

SAŽETAK

Jedan od značajnih načina kontrole rada termoelektrana (TE) na ugalj je kontinuirano praćenje vrednosti koncentracija aktivnosti radionuklida prirodnog porekla sadržanih prvenstveno u uglju, a potom i uzorcima pepela i šljake kao glavnim produktima sagorevanja uglja koje je zbog svoje obilne proizvodnje neophodno odlagati na deponije otpada. Koncentracije aktivnosti prirodnih radionuklida ^{238}U , ^{235}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th i ^{40}K , koje bi u životnoj sredini potencijalno mogle biti preraspodeljene kao posledica rada TE, podležu redovnoj kontroli u uzorcima uglja, šljake, elektrofilterskog pepela, kao i u uzorcima sakupljenim sa deponija pepela, na aktivnoj i pasivnoj kaseti, i zemljištu uzorkovanom na manjoj i većoj udaljenosti od TE. Predmet ovoga rada je analiza rezultata višegodišnjih merenja obavljenih u periodu od 2010. do 2022. godine. Godišnje vrednosti koncentracija aktivnosti izmerene za svaki ispitivani radionuklid i svaku od sedam vrsta uzoraka posmatrane su kao hronološki nizovi podataka koji čine diskretne vremenske serije za koje su rezultati statističke analize ukazivali da se mogu opisati kao procesi tzv. belog šuma.

Uvod

Ugalj, kao i ostali prirodni materijali, sadrži tragove primordijalnih terestrijalnih radionuklida: začetnika radioaktivnih nizova (^{238}U , ^{235}U i ^{232}Th), njihovih produkata raspada, kao i kalijumov radioizotop ^{40}K , u različitim udelima u zavisnosti od geološkog porekla uglja. Ugalj se sastoji od tečne, gasovite i čvrste faze, dok matriks čvrste faze može biti organskog (huminske kiseline) i neorganskog porekla (alumosilikatni minerali). Uranijum i njegovi produkti radioaktivnog raspada vezani su za matriks organskog porekla, dok su torijum i njegovi produkti zajedno sa kalijumom vezani za matriks pepela tj. neorgansku komponentu uglja. U cilju proizvodnje električne energije ugalj sagoreva u kotlu termoelektrana kada se prirodni radionuklidi oslobađaju iz originalne matrice uglja i distribuiraju između gasovite i čvrste faze sporednih produkata sagorevanja. Gasovita faza sadrži isparljive nuklide (Rn, Pb, Po), dok manje isparljivi ili potpuno neisparljivi nuklidi (U, Ra, Th, K) ostaju zarobljeni i koncentrisani u pepelu i šljaci ili bivaju kondenzovani na česticama letećeg pepela [1–3]. Šljaka ili teža frakcija pepela (15–20) % pada na dno kotla, a lakša frakcija tzv. leteći pepeo (80–85) % kreće se naviše zajedno sa vrelinim dimnim gasovima i biva zaustavljena elektrofilterskim precipitatorima pri čemu se neznatna količina obično oslobodi iz dimnjaka u atmosferu (~1 %). Nakon eliminacije organske komponente uglja, pepeo se višestruko obogaćuje prirodnim radionuklidima što zavisi od vrste i načina sagorevanja uglja [2]. Pepeo, u kome su sadržani prirodni radionuklidi raspodeljeni između čestica dimenzija od nekoliko milimetra (šljaka) do 100–ih delova milimetra (leteći pepeo),

neophodno je odlagati na deponije pepela kao čvrsti otpad. Međutim, sa velikih površina deponija delovanjem vetra, putem atmosferskih padavina ili ispiranjem, čestice pepela se mogu redistribuirati i potencijalno nagomilavati u različitim kompartmanima životne sredine [3]. Prema tome, prirodni radionuklidi dospeli u životnu sredinu u gasnoj ili čestičnoj formi mogu uticati na povećanje prirodne radioaktivnosti iznad prirodnog fona [2-4].

Kontrola radioaktivnosti izdvaja se kao jedna od značajnih mera praćenja kvaliteta životne sredine i izvodi se tako što se u okviru zakonskih propisa uzorci prikupljaju i analiziraju jednom u toku godine. Vrednosti koncentracija aktivnosti radionuklida prirodnog porekla ^{238}U , ^{235}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th i ^{40}K prate se u uzorcima uglja, šljake i letećeg pepela iz samog procesa proizvodnje [5], kao i u uzorcima sakupljenim u široj okolini TE na deponiji pepela i okolnom zemljištu. Deo programa kontrole radioaktivnosti u životnoj sredini koji se odnosi na spektrometriju gama emitera u uzorcima iz životne sredine tema je ovoga rada. Na osnovu višegodišnjih rezultata merenja analizirane su promene koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida u funkciji vremena u periodu 2010-2022. godine i ispitano da li se među izmerenim koncentracijama aktivnosti različitih vrsta uzoraka uspostavljaju značajne relacije.

Materijali i metode

Ispitivano je sedam vrsta uzoraka: ugalj (UG), šljaka (ŠLJ), elektrofilterski pepeo (EFP), zatim pepeo sakupljen sa deponije aktivne (AKP) i pasivne kasete (PKP), kao i zemljište uzorkovano bliže (ZB) i dalje (ZD) od TE (po analogiji sa obradivim i neobradivim zemljištem). Svi uzorci sakupljeni su jednom godišnje u periodu od 2010. do 2022. godine. Uzorkovanje uglja vršeno je pre procesa mlevenja i sušenja uglja u mlinu, šljaka je uzorkovana tokom transporta ispod kotla, dok je leteći pepeo uzorkovan u piramidalnim rezervoarima elektrofiltera [5]. Uzorci pepela sakupljeni su sa nasipa deponija aktivne i pasivne kasete, a mesta uzorkovanja zemljišta su bila raspoređena tako da budu na manjoj (0-2) km i većoj (2-6) km udaljenosti od TE. Uzorci zemljišta i pepela sa deponije uzimani su iz površinskih slojeva dubine 0 cm–10 cm pri čemu je na datoj lokaciji formiran po jedan zbirni uzorak mase 1-1,5 kg.

Uzorci uglja, šljake, pepela i zemljišta pripremljeni su za analizu (mleveni, sušeni, prosejani i izvagani) odgovarajućim standardnim metodama u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta za nuklearne nauke „Vinča“. Pripremljeni uzorci pakovani su u plastične sudove u cilindričnoj ili Marineli geometriji radi gamaspektrometrijske analize. Uzorci su zatopljeni pčelinjim voskom i ostavljeni 4 do 6 nedelja radi dostizanja sekularane radioaktivne ravnoteže u prirodnim radioaktivnim nizovima. Merenja su vršena koaksijalnim poluprovodničkim HPGe detektorima (Canberra Industries, Inc., Meriden, CT, USA) relativne efikasnosti 18 %, 20 % i 50 % i energetsom rezolucijom svakog od detektora od 1,8 keV na 1332 keV energiji gama zraka ^{60}Co . Za kalibraciju efikasnosti HPGe detektora korišćeni su sertifikovani standardi i referentni radioaktivni materijali, a počev od 2012. korišćeni su sekundarni referentni materijali različitog matriksa izrađeni od sertifikovanog radioaktivnog standarda u tečnom stanju 9031-OL-427/12, ERX (Češki Metrološki Institut) koji je sadržao radionuklide ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{203}Hg , ^{88}Y , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs i ^{210}Pb ukupne aktivnosti 72,4 kBq na dan 31.08.2012. Pri merenju uzorci se postavljaju direktno na detektor, koaksijalno sa detektorskim kristalom osim u slučaju detektora efikasnosti 18 % kod koga se uzorak postavlja na nosač da bi se berilijumski prozor detektora zaštitio. Merenje je vršeno u trajanju od 60000 s do 234000 s. Spektar fona je sniman neposredno pre ili posle snimanja spektra standarda. Spektri su analizirani korišćenjem softverskog paketa GENIE 2000 (Canberra).

Za određivanje koncentracija aktivnosti ^{238}U korišćene su linije potomaka u radioaktivnoj ravnoteži energije 63,3 keV (^{234}Th) i 1001,01 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$). Koncentracija aktivnosti ^{226}Ra određena je kao prosečna vrednost na osnovu intenziteta linija 295,2 keV i 351,9 keV (iz raspada ^{214}Pb) i 609,3 keV, 1120,3 keV i 1764,5 keV (iz raspada ^{214}Bi). Koncentracija aktivnosti ^{235}U određena je na osnovu linije energije 185,72 keV koja je korigovana za doprinos koji potiče od ^{226}Ra na energiji 186,21 keV. Za koncentraciju aktivnosti ^{232}Th korišćene su linije gama-zraka 338,42 keV i 911,16 keV (iz raspada ^{228}Ac). Koncentracija aktivnosti ^{40}K određena je analizom fotopika na energiji 1460,83 keV, a ^{210}Pb analizom fotopika na energiji 46,54 keV. Rezultati merenja koncentracija aktivnosti predstavljeni su sa kombinovanom mernom nesigurnošću koja je izražena kao proširena merna nesigurnost za faktor $k=2$ koji za normalnu raspodelu odgovara nivou poverenja od 95 %.

Da bi se ispitala distribucija grupa podataka sastavljenih od n izmerenih vrednosti koncentracija aktivnosti ispitivanih radionuklida za svaku vrstu uzorka izvršeno je testiranje kojim se ocenjuje da li posmatrani podaci potiču iz normalne raspodele koristeći Shapiro–Wilk-ov test. Da bi se opisali skupovi n elemenata korišćeni su osnovni numerički statistički parametri: srednja vrednost tj. aritmetička sredina, medijana, minimalna i maksimalna vrednost i pokazatelji disperzije: standardna devijacija (σ), koeficijent varijacije (C_{var}) i koeficijenti asimetričnosti i spljoštenosti kao mere odstupanja od “zvonaste” normalne raspodele. Detektovane su i netipične vrednosti tj. autlajeri (eng. outliers) kao opservacije koje ne potiču iz iste distribucije kao ostatak uzorka.

Diskretna vremenska serija je skup hronološki poređanih podataka koja može biti sastavljena od pojedinačnih merenja (očitanja) u određenim vremenskim trenucima kao što je jednom godišnje. Tako je skup vrednosti koncentracija aktivnosti datog radionuklida izmerenih jednom godišnje u periodu od 2010. do 2022. u datoj vrsti uzorka posmatran kao diskretna vremenska serija. S obzirom da uzorkovanje nije izvršeno 2020. godine, za šest ispitivanih prirodnih radionuklida ^{238}U , ^{235}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th i ^{40}K detektovanih u svakoj od sedam vrsta uzoraka (UG, ŠLJ, EFP, AKP, PKP, ZB, ZD) broj sakupljenih podataka n bio je najviše 12 osim kada su neke vrednosti koncentracija aktivnosti iz 2011. i 2017. godine izostale iz tehničkih razloga. Koncentracije aktivnosti ^{210}Pb određene su u manjem broju uzoraka jer je njegova vrednost često bila ispod minimalne detektabilne koncentracije aktivnosti (MDC) usled merenja na detektoru manje efikasnosti na nižim energijama.

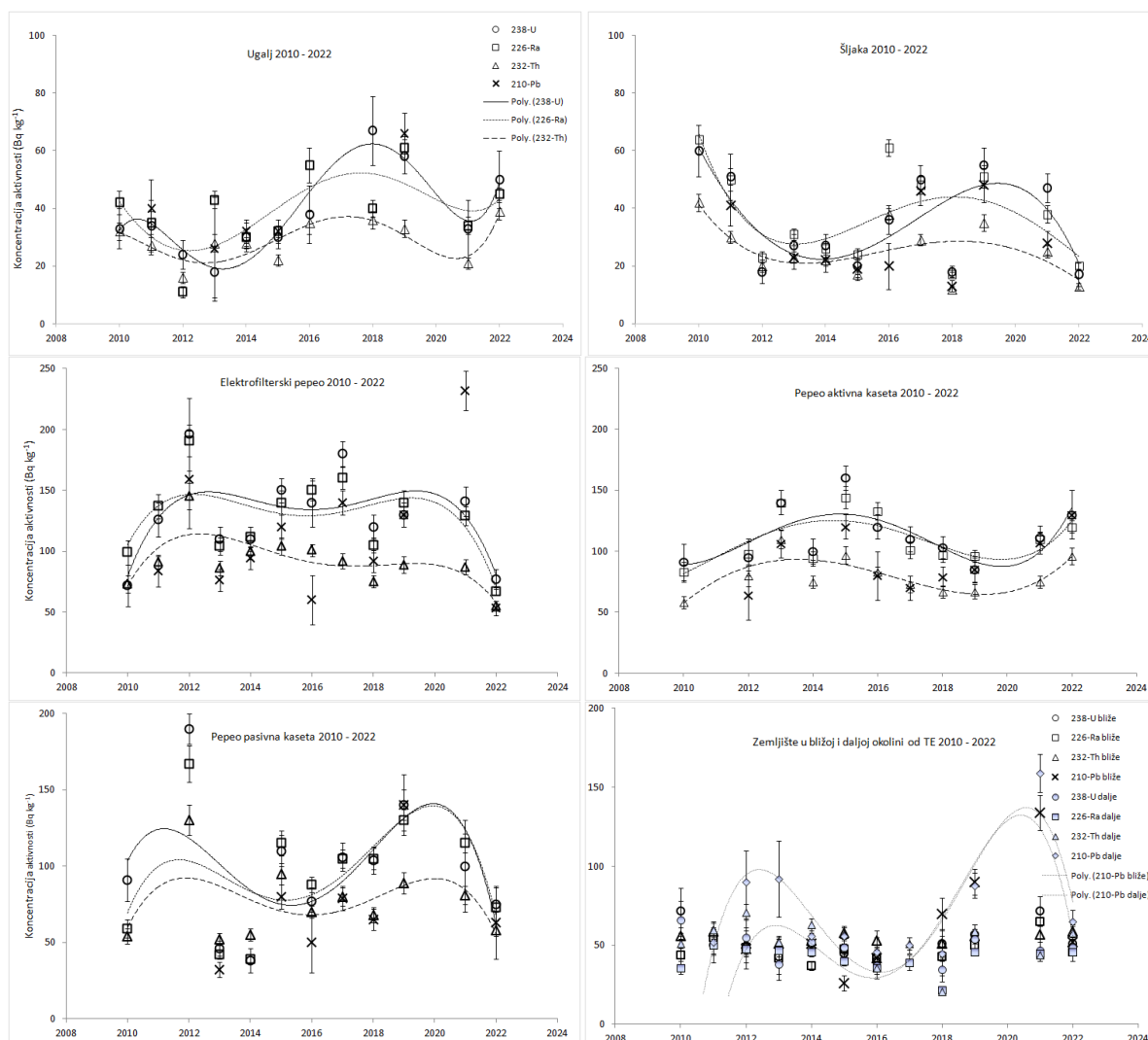
Da bi se pojedinačne serije analizirale korišćen je programski jezik R verzija 4.2.3 i postupak je bio sledeći: a) priključena je vrednost koja nedostaje u datom nizu podataka koja je određena intepolacijom na osnovu dve prethodne i dve naredne poznate vrednosti, b) ispitana je hipoteza slučajnosti i prihvatanje ove hipoteze na nivou poverenja 95 % označavalo je da podaci imaju proizvoljan poredak u vremenu, c) računati su autokorelacioni koeficijenti kojima se testira da li postoje značajne korelacije između elemenata iste serije koji su međusobno odvojeni k vremenskih perioda – koraka (eng. lag), d) računati su koeficijenti kroskorelacije kojima se testira da li postoje korelacione veze između elemenata dve serije odvojenim k vremenskih koraka ($k = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$). Vrednost određena na osnovu broja podataka (n) i broja koraka (k): $|\alpha| \geq 2/\sqrt{n - |k|}$ korišćena je za određivanje značajnosti koeficijenta kroskorelacije na nivou 95 % intervala poverenja. Za broj podataka $n = 13$ izračunate su vrednosti: $\alpha = 0,555$ za $k = 0$; $\alpha = 0,577$ za $k = \pm 1$; $\alpha = 0,603$ za $k = \pm 2$; $\alpha = 0,630$ za $k = \pm 3$; $\alpha = 0,667$ za $k = \pm 4$. Značajna kroskorelacija u slučaju pozitivnih koraka ($k = +1, +2, \dots$) označava da prva serija „prednjači“, a u slučaju negativnih ($k = -1, -2, \dots$) da prva serija „zaostaje“ u odnosu na drugu sa vremenskim kašnjenjem od k perioda [6].

Tabela 2: Deskriptivna statistika vrednosti rezultata merenja koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida u periodu 2010 – 2022. godine

	A [Bq/kg]	Aritm. sred.	Med.	Min.	Max.	σ	C _{var} (%)	Koef. asimetr.	Koef. spoljoš.	Autl.	n
UG	²³⁸ U	37,7	33	18	67	14,7	39,1	1,229	0,123	–	11
	²³⁵ U	2,1	2	1,1	3,1	0,6	28,9	0,272	-0,314	–	11
	²²⁶ Ra	38,9	40	11	61	13,3	34,1	-0,546	0,891	–	11
	²¹⁰ Pb	39,2	32	26	66	15,8	40,3	1,570	1,420	–	5
	²³² Th	28,6	28	14	39	7,4	26,0	-0,801	-0,063	–	11
	⁴⁰ K	143,2	146	60	250	55,2	38,5	0,220	0,230	–	11
ŠLJ	²³⁸ U	35,5	31,5	17	60	16,2	45,8	0,303	-1,257	–	12
	²³⁵ U	1,7	1,6	0,7	3,3	0,8	46,7	0,879	-0,140	–	12
	²²⁶ Ra	37,8	34,5	17	64	16,5	43,7	0,468	-1,019	–	12
	²¹⁰ Pb	28,9	23	13	48	12,8	44,4	0,704	-0,840	–	9
	²³² Th	25,5	24	12	42	9,6	37,6	0,382	-0,594	–	12
	⁴⁰ K	197,9	197	110	260	47,5	24,0	-0,447	-0,668	–	12
EFP	²³⁸ U	129,3	128	72	196	36,4	28,1	0,291	0,019	–	12
	²³⁵ U	6,9	7,0	4	11	1,8	26,4	1,021	0,949	–	12
	²²⁶ Ra	127,8	133	67	191	32,7	25,6	0,097	0,294	–	12
	²¹⁰ Pb	112,7	94	53	232	51,7	45,9	1,640	1,180	–	11
	²³² Th	91,5	90	55	145	21,7	23,7	1,460	2,260	145	11
	⁴⁰ K	435,3	426,5	311	570	83,7	19,2	0,258	-0,849	–	12
AKP	²³⁸ U	113,2	110	85	160	22,7	20,0	1,194	0,187	–	11
	²³⁵ U	5,9	5,8	3,5	8,4	1,2	21,1	0,367	1,180	–	11
	²²⁶ Ra	110,5	101	83	144	20,6	18,7	0,779	-0,746	–	11
	²¹⁰ Pb	93,4	85	64	130	23,1	24,7	0,442	-0,788	–	9
	²³² Th	80,1	75	58	110	15,4	19,2	0,893	-0,077	–	11
	⁴⁰ K	397,6	380	300	580	76,0	19,1	2,134	1,950	580	11
PKP	²³⁸ U	97,9	100	38	190	42,2	43,1	1,060	0,929	–	11
	²³⁵ U	4,9	4,6	2,5	9,1	2,1	42,4	1,074	0,078	–	11
	²²⁶ Ra	94,4	105	39	167	39,0	41,3	0,227	-0,207	–	11
	²¹⁰ Pb	96,1	72	32	260	73,3	76,3	2,258	2,300	260	8
	²³² Th	75,6	70	52	130	23,3	30,8	1,740	1,300	–	11
	⁴⁰ K	462,5	420	370	610	91,7	19,8	1,000	-0,879	–	11
ZB	²³⁸ U	52,8	51	40	72	10,5	19,9	1,499	0,330	72	11
	²³⁵ U	2,9	2,7	2,1	4,7	0,8	26,6	1,815	1,180	–	11
	²²⁶ Ra	47,4	46	37	65	7,6	16,0	1,667	1,432	–	11
	²¹⁰ Pb	64,1	51,5	26	134	34,0	53,1	1,585	1,118	–	8
	²³² Th	55,0	56	51	59	3,2	5,8	-0,074	-1,180	–	11
	⁴⁰ K	544,0	550	430	680	71,4	13,1	0,169	0,357	–	11
ZD	²³⁸ U	47,7	49	35	66	9,1	19,0	0,440	-0,047	–	12
	²³⁵ U	2,7	2,8	1,4	4,0	0,8	29,1	-0,199	-0,575	–	12
	²²⁶ Ra	41,8	45,5	22	50	7,8	18,6	-2,257	2,081	22	12
	²¹⁰ Pb	72,6	56	45	159	33,8	46,5	2,254	2,686	159	11
	²³² Th	52,0	54,5	21	71	13,3	25,6	-1,617	1,230	–	12
	⁴⁰ K	543,7	545	230	790	125,4	23,1	-1,194	3,202	230	12

Rezultati

Vrednosti deskriptivnih statističkih parametara koncentracija aktivnosti ispitivanih prirodnih radionuklida ^{238}U , ^{235}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th i ^{40}K prikazani su u Tabeli 1. Intervali i srednje vrednosti koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida u uzorcima uglja i pepela nisu se razlikovale od tipičnih vrednosti navedenih u publikaciji IAEA [1], a aktivnosti određene u uzorcima zemljišta pripadale su oblasti prosečnog nivoa gama zračenja koje potiče iz zemljišta na osnovu podataka UNSCEAR (2010) [4]. Srednje vrednosti koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida bile su poredane u rastućem nizu: šljaka < uglj < zemljište dalje \approx zemljište bliže < pepeo pasivne kasete < pepeo aktivne kasete < elektrofilterski pepeo što se i očekuje kao posledica sagorevanja uglja u termoelektranama. Za radionuklid ^{40}K srednje vrednosti su bile poredane u drugačijem nizu: uglj < šljaka < pepeo < zemljište jer su površinski slojevi zemljišta pokriveni vegetacijom obogaćeni kalijumom, a time i njegovim radioizotopom. Prema Šapiro-Vilkovom testu normalnosti raspodele sve grupe podataka pokazale su normalnu distribuciju, osim log-normalne za grupu podatka ^{210}Pb u zemljištu dalje od TE.



Slika 1: Koncentracija aktivnosti (Bq/kg) ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb i ^{232}Th u ispitivanim uzorcima u periodu od 2010–2022. godine. Da bi se uočila promena provučen je polinom 4. reda kao što pokazuje legenda.

Godišnje vrednosti koncentracija aktivnosti ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{210}Pb u uzorcima uglja, šljake i pepela su zajedno sa svojom mernim nesigurnostima predstavljene na Slici 1. pri čemu su radi ilustracije kroz karakteristične nizove tačaka provučeni polinomi 4. reda da bi se uočila promena aktivnosti tokom vremena (2010-2022). Na osnovu dovoljnog broja rezultata merenja promena ^{210}Pb je ilustrovana polinomom 4. reda samo u uzorcima zemljišta u bližoj i daljoj okolini TE. U zemljištu su prilično ujednačene koncentracije aktivnosti ^{238}U , ^{226}Ra i ^{232}Th ukupno varirale 6 %-26 % tokom vremena za razliku od ^{210}Pb čije varijacije su se kretale u rasponu 29 %-53 % (Tabela 1, Slika 1). Primećeno je da su vrednosti mernih nesigurnosti koje su iznosile 4 %-11 % za ^{226}Ra i ^{232}Th , 5 %-12 % za ^{40}K , 6 %-30 % za ^{238}U i ^{235}U i 4 %-40 % za ^{210}Pb najčešće bile manje od dobijenih koeficijenata varijacije (%) za pojedinačne radionuklide u datom uzorku (Tabela 1).

Diskusija i zaključak

Na Slici 1. može se primetiti da vrednosti koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida u svim vrstama uzoraka izgledaju kao da tokom vremena imaju slučajna odstupanja od neke konstantne vrednosti zbog čega je pretpostavljeno da se svaki pojedinačni skup podataka za dati radionuklid mogao posmatrati kao jedna realizacija stohastičkog procesa. Da bi se ovaj proces ispitao, skupovi godišnjih vrednosti koncentracija aktivnosti posmatrane su kao diskretne vremenske serije. Rezultati statističke analize pokazali su da se većina serija na nivou značajnosti 95 % mogla opisati kao potpuno slučajni proces odnosno proces belog šuma (nezavisne slučajne promenljive nulte srednje vrednosti i konstantne varijanse). Na istom nivou značajnosti, nekoliko serija je pokazalo da su njihove vrednosti u različitim vremenskim trenucima bile u korelaciji, konkretno određena je značajna autokorelacija u vremenskom pomaku od jedne godine (Lag 1) u nizovima: ^{238}U i ^{235}U u uglju; ^{40}K u pepelu pasivne kasete i ^{238}U i ^{235}U u zemljištu bliže TE.

U Tabeli 2. prikazani su rezultati testa kroskorelacija između vremenskih serija istog radionuklida u različitim uzorcima. Na osnovu vrednosti kroskorelacionih koeficijenata može se primetiti da se porast koncentracija aktivnosti u uglju odražavao sa vremenskim otklonom na vrednosti u zemljištu bliže TE u slučaju ^{238}U (Lag 2, Lag 3) i zemljištu dalje od TE za ^{226}Ra (Lag -1) i ^{210}Pb (Lag -1), a značajne pozitivne korelacije određene su i između koncentracija aktivnosti elektrofilterskog pepela i pepela pasivne kasete bez vremenskog kašnjenja (Lag 0) za ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th i ^{40}K . Negativne korelacije između koncentracija aktivnosti u pepelu aktivne i pepelu pasivne kasete određene su sa vremenskim otklonom za ^{238}U (Lag 1), ^{226}Ra (Lag -1) i ^{232}Th (Lag 1). Vrednosti koncentracija aktivnosti u zemljištu bliže TE sa vrednostima u zemljištu dalje od TE bile su pozitivno povezane za ^{238}U (Lag 0), ^{210}Pb (Lag 0) i ^{40}K (Lag 3). U slučaju ^{232}Th , korelacije su određene samo između njegovih koncentracija aktivnosti u uglju i pepelu (Tabela 2), a nikakve korelacije nisu uspostavljene sa vrednostima koncentracija aktivnosti u zemljištu što bi moglo da ukazuje da ponašanje ^{232}Th u zemljištu uopšte nije pod uticajem rada TE. Na osnovu prethodnih rezultata može se zaključiti da se promene koncentracija aktivnosti u uglju, šljaci i pepelu iz samog procesa proizvodnje potencijalno odražavaju na koncentracije aktivnosti u pepelu deponija i zemljištu u okolini TE istovremeno ili sa vremenskim kašnjenjem. S obzirom da su se ispitivane vremenske serije mogle predstaviti procesima belog šuma čime je ispunjen uslov slabe stacionarnosti (tj. invarijantnosti na pomeranja u vremenu), u sledećem koraku će biti moguće izvršiti (barem kratkoročno) prognoziranje vrednosti koncentracija aktivnosti ispitivanih radionuklida [6].

Tabela 2: Koeficijenti kroskorelacije između koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida u ispitivanim uzorcima

Uzorak	UG	ŠLJ	EFP	AKP	PKP	ZB	ZD
⁴⁰ K	ŠLJ					Lag -1 (+0,722)	
	EFP		Lag 0 (+0,568)			Lag 0 (+0,662) Lag 1 (+0,737)	
	AKP	Lag 0 (+0,631)					
	PKP		Lag -1 (+0,604) Lag 0 (+0,675) Lag 1 (+0,745)			Lag -1 (+0,557) Lag 0 (+0,556)	
	ZB						Lag 3 (+0,627)
²³⁸ U	UG					Lag 2 (+0,715) Lag 3 (+0,699)	Lag 1 (-0,618)
	ŠLJ			Lag 0 (-0,581)		Lag 0 (+0,598)	
	AKP				Lag 1 (-0,567)		
	ZB						Lag 0 (+0,627)
²²⁶ Ra	UG			Lag 1 (-0,613)			Lag -1 (+0,643)
	ŠLJ	Lag 0 (+0,556)					
	PKP		Lag 0 (+0,680)	Lag -1 (-0,608)		Lag 0 (+0,612)	
	ZD					Lag 3 (-0,651)	
²¹⁰ Pb	UG		Lag -1 (+0,701)			Lag -1 (+0,908)	Lag -1 (+0,749)
	ŠLJ		Lag 0 (+0,567)				
	EFP				Lag 0 (+0,680)	Lag 0 (+0,768)	
	ZD		Lag 0 (+0,828)	Lag 1 (+0,700)		Lag 0 (+0,867)	
²³² Th	UG			Lag 1 (-0,706)			
	EFP	Lag 0 (-0,731)		Lag 1 (+0,606)	Lag 0 (+0,636)		
	AKP				Lag 1 (-0,619)		

Zahvalnica

Rezultat istraživanja je nastao u okviru ugovora o realizaciji i finansiranju naučnoistraživačkog rada u 2023. godini između Ministarstva nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije i Poljoprivrednog fakulteta Univerziteta u Beogradu (ugovor br. 451-03-47/2023-01/200116) i Instituta za nuklearne nauke “Vinča” Univerzitetu u Beogradu (ugovor br. 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] Extent of Environmental Contamination by Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) and Technological Options for Mitigation Method for Determining Gamma Emitters, IAEA Technical Reports Series No. 419, Vienna, 2003.
- [2] J. Temuujin, E. Surenjav, C.H. Ruescher, J. Vahlbruch. Processing and uses of fly ash addressing radioactivity (critical review), Chemosphere Vol.216, 2019, 866–882, ISSN: 0045-6535.
- [3] Z. Wang, R.M. Coyte, E.A. Cowan, H.M. Stapleton, G.S. Dwyer, A. Vengosh. Evaluation and Integration of Geochemical Indicators for Detecting Trace Levels of Coal Fly Ash in Soils, Environ. Sci. Technol. Vol.55 No.15, 10387–10397 ISSN: 0013-936X.
- [4] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and effects of ionizing radiation, UNSCEAR 2008, Report to the General Assembly with Scientific Annexes, United Nations, New York, 2010.
- [5] A. Kandić, B. Šešlak, M. Đurašević, I. Vukanac, M. Erić, Z. Milošević, Z. Marković. Radiological analysis of coal, slag and fly-ash from “Nikola Tesla” and „Kolubara power“ plants, Proceedings of International Conference on Power Plants, 28–31. October 2014, Zlatibor, Serbia, 168-175.
- [6] Z.J. Kovačić. Analiza vremenskih serija, Ekonomski fakultet, Beograd, 1995.

THE ACTIVITY CONCENTRATION DISTRIBUTIONS OF NATURALLY OCCURRING RADIONUCLIDES IN THE ENVIRONMENTAL SAMPLES AS A RESULT OF THE OPERATION OF THE “KOLUBARA” COAL-FIRED POWER PLANT IN THE PERIOD OF 2010 – 2022.

Ivana VUKAŠINOVIĆ¹, Dragana TODOROVIĆ², Jelena KRNETA NIKOLIĆ³,
Milica RAJAČIĆ², Marija JANKOVIĆ², Nataša SARAP², Julija ŠČEKIĆ¹

- 1) *Faculty of Agriculture, University of Belgrade, Department of Mathematics and Physics, Nemanjina 6, Zemun-Beograd*
- 2) *“Vinča” Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Radiation and Environmental Protection Department, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade*

ABSTRACT

One of the most important means of controlling the operation of coal-fired power plant (CFPP) is the continuous monitoring of naturally occurring activity concentrations of radionuclides contained primarily in coal and, consequently, in ash and slag samples, the main coal combustion products that must be disposed of in landfills due to their high production. The activity concentrations of the naturally occurring radionuclides ^{238}U , ^{235}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th , and ^{40}K , which could potentially be released into the environment as a result of the CFPP operation, are regularly monitored in the samples of coal, slag, and fly ash, as well as in the samples of ash piles on the active and passive cassettes and in the soil sampled at lesser and greater distances from the CFPP. The aim of this work is to analyse the results of the multi-year activity concentration measurements carried out in the period from 2010 to 2022. The annual activity concentration values measured for each studied radionuclide and each of the seven sample types were observed as a chronological sequence of data forming discrete time series, which, according to the results of statistical analysis, may be described as white noise processes.

RADIOLOGICAL CHARACTERIZATION OF ALKALI ACTIVATED MATERIALS CONTAINING WOOD AND FLY ASH

Ljiljana KLJAJEVIĆ¹, Nataša MLADENOVIĆ NIKOLIĆ¹, Aleksandar KANDIĆ²,
Ivana VUKANAC³, Marija IVANOVIĆ¹, Sanja KNEŽEVIĆ¹, Miljana MIRKOVIĆ¹,
Snežana NENADOVIĆ¹

- 1) „Vinča“ Institute of Nuclear Sciences – National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Materials, , Belgrade, Serbia
- 2) „Vinča“ Institute of Nuclear Sciences – National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade. Department of Nuclear and Plasma Physics, , Belgrade, Serbia
- 3) „Vinča“ Institute of Nuclear Sciences – National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade Department of Radiation and Environmental Protection, , Belgrade, Serbia

Author for corespondance: Ljiljana KLJAJEVIĆ, ljiljana@vin.bg.ac.rs

ABSTRACT

Improperly storage of fly ash as industrial wastes has been a cause of land contamination issues. These wastes or by-products have the potential to be used as secondary raw materials in construction, promoting the concept of a circular economy that will avoid land contamination. Here we evaluate radiological environmental impacts when wastes that contain elevated levels of naturally occurring radionuclides (NORs) such as fly ash and wood ash are made into 'green cements' such as geopolymers or alkali-activated materials (AAMs). Alkali-activated materials were formed by alkali-activation reaction of wood and fly ash, as a solid precours, and alkali activator solution, sodium hydroxide and sodium silicate. Three different concentration of alkali solution were used. Determination of radionuclide content was performed by means of gamma-ray spectrometry. The external absorbed gamma dose rate was 68.6-98.1 nGy/h, and external radiation hazard index for alkali-activated material AAM4, AAM6 and AAM12 were 0.544 Bq/kg, 0.575 Bq/kg and 0.403 Bq/kg, respectively. The results of activity concentration measurements in alkali-activated materials indicate potential of their safe application in building constructions. In terms of some the structural characterizations the obtained alkali activated materials were examined.

Introduction

The production of waste is daily increasing with faster industrial development making environmental control a very important task. Alternative materials which could replace traditional cements and reduced the environmental pollution, including CO₂ emission, are alkali-activated materials (AAMs) [1, 2]. AAMs are a new class of alumina-silicate materials which are very attractive owing to their excellent mechanical properties, durability and thermal stability. In addition, they are of great interest because of the reduced energy requirement for their manufacture. They poses low thermal conductivity, good mechanical strength, durability, fire resistance, and the high sustainability [4, 5].

Raw materials, precursors, for alkali-activated materials are solid waste materials, such as fly ash (FA) and wood ash (WA), which are actually by-products of burnig process of coal and wood, respectively. Depositing of these kind of waste materials can caused environmental problems, especially desposing fly ash [3]. Synthesis of AAMs from a solid powder precursors imply dissolving precursors in alkaline solutions. According our previous research

[6] the chemical composition of wood ash shown the high percent of CaO. Incorporation of different forms of calcium during synthesis of alkali-activated materials, will cause the different reaction pathway and increasing sample strengths and thus gives possibilities of application AAMs in construction sectors [7].

Coal mainly contains higher amount of natural radionuclides, and in the burnig process in power plants produce the ash, which represents a risk to the environmental and health for population [8]. According to Mladenović Nikolić et al. [6] using wood ash in production of alkali-activated materials as cementations materials for application in the construction industry, the value of radium equivalent activity for samples which contains wood ash are lower than the recommended maximum level (370 Bq/kg), providing an excess annual effective dose less than 1 mSv, and its use of this is considered safe for the population. Ignjatiović et al. [9] showed in their research the natural radionuclide content, for all concrete samples, were lower than recommended limit. They concluded the fly ashes from Serbia power plants does not require any restrictions on the production from a radiological point of view.

So far, it has been shown in our earlier studies that the alkaline activation of alumino-silicate precursors affects the reduction of radionuclide activity compared to the precursors. The aim of this research is investigate the possibility using of fly and wood ash in construction sector with radiological point of view.

Materials and Methods

For the synthesis of the alkali-activated materials, as a precursor, used fly ash (FA) and wood ash (WA). Fly ash originated from power plant „Nikola Tesla“, Obrenovac, Serbia, while the wood ash from wood burning process in individual fireplace. Alkali-actiavated materials were synthesis by mixture fly and wood ash (ratio is 9:1), and the alkali activator solutions (AAS), mixture of sodium hydroxide (Sigma-Aldrich, st. Louis, MO, USA) and sodium silicate solution (Interhem Company, Belgrade, Serbia). The solution of sodium hydroxide was made in three differente concentration (4M, 6M and 12M). The obtained alkali-activated materials labeled as – AAM4 (precursor and AAS- 4M NaOH/Na₂SiO₃), AAM6 (precursor and AAS- 6M NaOH/Na₂SiO₃) and AAM12 (precursor and AAS - 12M NaOH/Na₂SiO₃). The ratio of liquid and solid phase was 1.0. Precursor and AAS were mixed, poured in modls, covered and left ad room temperature for 24 hours. After that the mixture was kept 48 hours at 60 °C, and than left for four weeks at room temperature in controlled conditions. The samples were crushing and sived through a sieve, and prepared for characterization.

Chemical composition was done by x-ray fluorescence spectroscopy–XRF (Li₂B₄O₇/ LiBO₂ fusion, measured with XF700 program (XRF-Fusion-Major Oxides). All samples were ignited at 950°C (Loss on ignition (LOI)).

Phase characterization of alkali-activated materials were analyzed using x-ray diffraction (XRD) – Ultima IV Rigaku diffractometer (Rigaku, Tokyo, Japan) equipped with Cu K α 1,2 radiation, with a generator voltage of 40.0 kV and a generator current 40.0 mA. The range of 5-80° 2 θ was used for all powders in a continuous scan mode with a scanning step size of 0.02° at a scan rate of 5°/min [10, 11].

Diffused reflectance infrared Fourier transform spectroscopy (DRIFT) was performed by using the Perkin-Elmer FTIR spectrometer, in the spectral region of 400-4000 cm⁻¹.

Activity concentration of naturally occurring radionuclides (uranium and thorium series, ⁴⁰K and ²³⁵U) in alkali-activated materials was determined by the semiconductor high purity germanium (HPGe) detector. Powdered samples were placed in PVC cylindrical containers

(125 mL), sealed, and left in order to reach radioactive equilibrium. Radiological analysis was performed by means of two coaxial spectrometers: АМТЕК-ОРТЕС GEM 30-70, with 37% relative efficiency and 1.8 keV resolution at the 1332.5 keV line ^{60}Co ; and Canberra GX5019, with 55% relative efficiency and 1.9 keV resolution at the 1332.5 keV line ^{60}Co . Certified solution of mixed gamma-emitting radionuclides (^{241}Am , ^{109}Cd , ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{51}Cr , ^{210}Pb , and ^{88}Y), purchased from the Czech Metrology Institute (CMI) [12], was used for the preparation of standards for the energy and efficiency calibration of the spectrometer in accordance with IAEA recommendations [13]. After reaching the radioactive equilibrium, samples were measured, and all spectra were recorded and analyzed using Canberra's Genie 2000 software; net areas of the peaks were corrected for the background, dead time, and coincidence summing effects. All calculations were performed with the Mathematica 5.2 software (Wolfram Research, Inc., Champaign, IL, USA).

Radium equivalent activity (Ra_{eq}) is the index defined to obtain the sum of activities for comparison of specific radioactivity of materials containing different radionuclides ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K , and it is defined as:

$$(1) \quad Ra_{eq} = A_{Ra} + 1.43A_{Th} + 0.077A_K$$

where A_{Ra} , A_{Th} , and A_K are activities in Bq/kg of ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K , respectively [8]. We examine the characteristics of the material in order to assess the possibility of its use as a building material; for limiting the radiation dose from building material, the external hazard index (H_{ex}) is defined as [8].

$$(2) \quad H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1$$

The value of this index must be less than unity to keep the radiation hazard insignificant, i.e., to keep the radium equivalent activity and annual dose under the permissible limits of 370 Bq/kg and 1 mSv, respectively [8].

The external absorbed gamma dose rate, \dot{D} (nGy/h), in air 1m above the ground due to radionuclides ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K in measured samples was calculated [8]:

$$(3) \quad \dot{D} = 0.462A_{Ra} + 0.604A_{Th} + 0.0417A_K$$

In order to estimate the health risks, the annual effective dose rates was calculated using the conversion coefficient from the absorbed dose in air to the effective dose (0.7 Sv/Gy), the indoor occupancy factor (0.8) - assuming that people spend approximately 80% of the time indoors, and 8760 h (1 year) annual exposure time as proposed by UNSCEAR (1993). The annual effective dose (EDR) was calculated from the formula [8, 14]:

$$(4) \quad EDR(\text{mSv}) = \dot{D}(\text{nGy/h}) \times 8760 \cdot (\text{h/y}) \times 0.8 \times 0.7 (\text{Sv/Gy}) 10^{-6}$$

Results

XRF analysis

Table 1 shows chemical composition of raw materials, WA and FA.

Table 1. Chemical composition of WA and FA.

Chemical	WA (wt.%)	FA (wt.%)
Na ₂ O	0,51	0,32
MgO	4,25	2,07
Al ₂ O ₃	4,06	27,36
SiO ₂	4,07	55,90
P ₂ O ₅	1,92	0,07
SO ₃	1,18	0,18
K ₂ O	11,16	1,49
CaO	38,76	3,69
TiO ₂	0,11	0,67
MnO	1,43	0,07
Fe ₂ O ₃	0,72	5,93
ZnO	0,193	0,013
As ₂ O ₃	0,14	0,15
BaO	0,26	0,08
L.O.I.*	31,06	1,79

*Loss on ignition 950 °C

Radiological characterization of AAM

Results of activity concentration of gamma-emitting radionuclides in alkali-activated materials AAM4, AAM6 and AAM12 shown in the Table 2.

Table 2: Activity concentration (in Bq/kg) of gamma-emitting radionuclides in alkali-activated materials

Radionuclides	Activity concentration (in Bq/kg) of gamma-emitting radionuclides		
	Samples of alkali activated materials		
	AAM4	AAM6	AAM12
¹³⁷ Cs	3,82±0,37	4,19±0,47	2,80±0,31
²¹⁰ Pb	59,3±3,9	58,6±5,7	37,3±2,6
²³⁵ U	5,07±0,76	4,56±0,93	2,7±0,54
²²⁶ Ra	94,2±8,6	95,9±8,7	63,3±5,8
²³⁸ U	100,4±11	93,4±8,2	63,2±6,7
²³⁵ U/ ²³⁸ U	0,0505	0,0488	0,0427
²³⁴ Th(²²⁸ Ac)	53,1±3,8	55,6±3,8	42,3±2,9
⁴⁰ K	408±21	485±26	332±17

Table 3 shows results of radium equivalent activity (Ra_{eq}), external radiation hazard index (H_{ex}), the external gamma radiation absorbed dose rate (\dot{D}) and effective dose rate (EDR) calculated on the basis Equation (1), (2), (3), (4), respectively.

Table 3. Radium equivalent activity (Ra_{eq}), external radiation hazard index (H_{ex}), the external gamma radiation absorbed dose rate (\dot{D}) and effective dose rate (EDR) of alkali-activated wood and fly ash

Samples	Ra_{eq} (Bq/kg)	H_{ex} (Bq/kg)	\dot{D} (nGy/h)	EDR (mSv/y)
AAM4	201,55	0,544	92,6	0,454
AAM6	212,75	0,575	98,1	0,481
AAM12	149,35	0,403	68,6	0,337

Structural characterization of AAMs

XRD analysis

Figure 1 shows the diffractogram of alkali-activated materials.

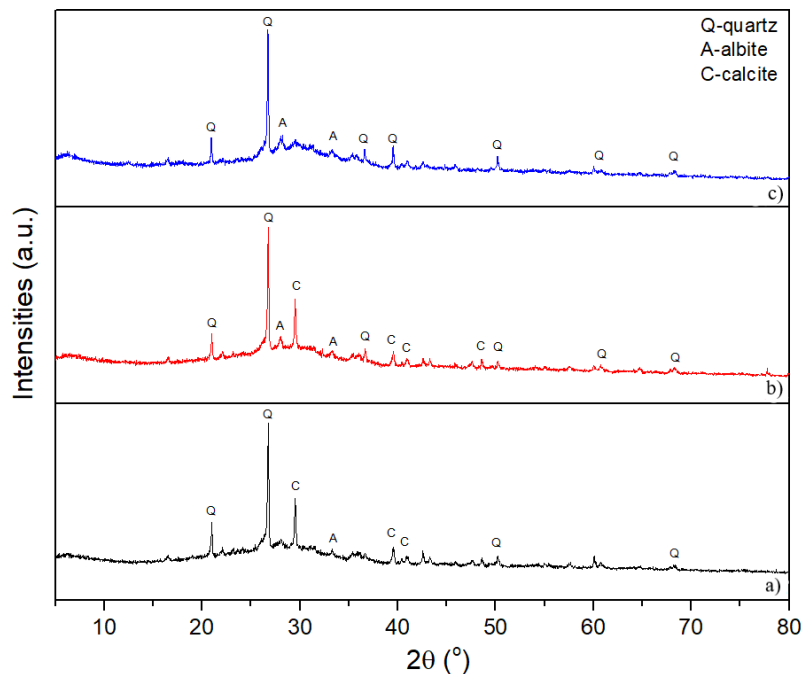


Figure 1. XRD diffractogram of alkali-activated materials: a) AAM4, b) AAM6 and c) AAM12

DRIFT analysis

Diffused reflectance infrared Fourier transform spectroscopy was shown on the Figure 2.

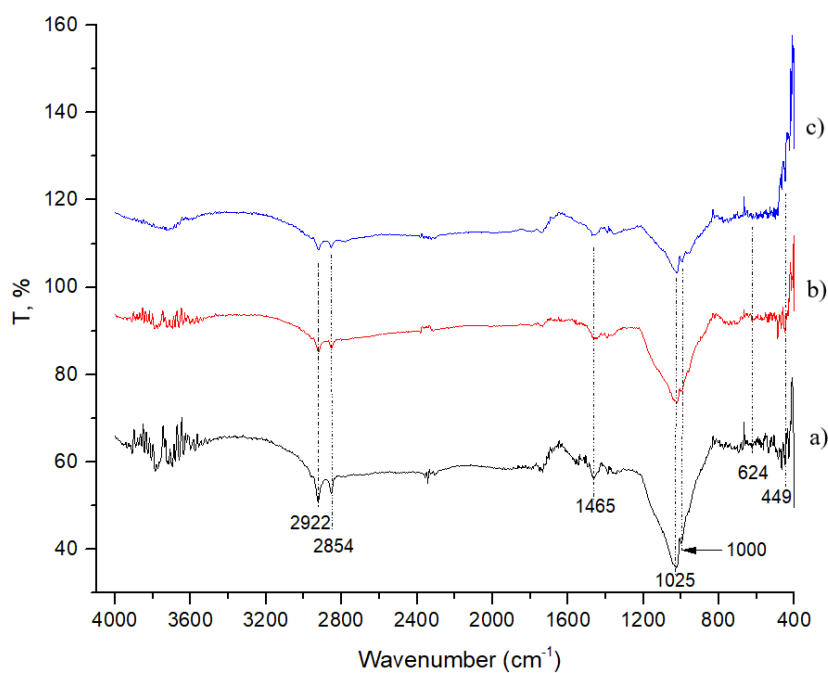


Figure 2. DRIFT spectrum of alkali-activated materials: a) AAM4, b) AAM6 and c) AAM12

Discussion

Chemical analysis of WA showed that the highest content of CaO, and K₂O, while the percentages of Al₂O₃ and SiO₂ are quite small and approximately the same, about of 4%. The content of Al₂O₃ is twice time lower than percent of SiO₂ for the fly ash originated during combustion process of coal in thermal power plant and their values are 55.9 % and 27.36 %, respectively. The content of CaO presented in fly ash is 3.69 %. The presence of the mentioned oxides is significant from the aspect of the alkaline activation process, that is, the polymerization that occurs during alkali activation.

Artificial radionuclide ¹³⁷Cs (Table 2) was detected in low concentration in all AAM samples. Decrease of specific activity was detected for 40K, 232Th, and 226Ra obtained for all AAM samples related to values of specific activity was detected for 40K, 232Th, and ²²⁶Ra of FA investigated by Nenadović et al, 2021 [15]. Table 3 presents the total values of the *R_{aeq}*, *Hex*, *D*, and annual effective dose *EDR* originated from AAMs. The smallest values of calculated parameters were mainly observed for AAM12 sample. The value of external radiation hazard index -*Hex* must be less than unity to keep the radiation hazard insignificant, i. e., to keep the radium equivalent activity and annual dose under the permissible limits of 370 Bqkg⁻¹ and 1 mSv, respectively [15].

The mineralogical composition of the present phases was determined by X-ray analysis (Fig 1). The obtained data confirmed the presence of some main crystal phases. In the diffractogram of all three samples, the presence of an amorphous phase, which characterizes some higher background on the diffractogram in the range of 15–35° 2θ, was noticeable, and the presence of dominated crystalline phase of quartz—SiO₂ in all sample detected. Crystalline phase calcite -CaCO₃ was observed in AAM4 and AAM6, followed by smaller amounts of albite, while quartz and albite presented in AAM12.

The DRIFT spectra all of AAMs are very similar. The presence of two bands in the range of OH-group vibrations was noted in the DRIFT spectrum. The band at ~3700 cm⁻¹ was derived from the regularly distributed group OH in the structure. The wide band ~3450 cm⁻¹ was related to a randomly placed hydroxyl group in the structure. Vibrations associated with symmetric and asymmetric stretches of C-H in the methyl and methylene groups, present in the spectrum were found at wavelengths 2922 cm⁻¹ and 2854 cm⁻¹ [16, 17], respectively. The characteristic stretching asymmetric vibrations C=O and carbonate vibrations at 1465 cm⁻¹ were expected due to presence of CaO in wood ash (Table 1) and the possibility of carbon dioxide formation in highly alkaline wood and fly ash [18]. The peak at 624 cm⁻¹ assignable to Mg–O– or K–O bonds were observed in alkali-activated material. A vibration at 449 cm⁻¹ indicated Si–O bonds, while vibrations at 1025 cm⁻¹ were the main characteristic of the alkali-activated materials which represented the Al–O and Si–O bonds [19].

Conclusion

On the basis of the obtained results, it can be concluded that fly and wood ash are suitable for obtaining alkali-activated materials with satisfactory radiological and structural characteristics. The calculated maximum *R_{aeq}* of all AAMs, lower than the recommended maximum and investigated materials do not cause a significant radiation hazard. The main structural characteristic of the AAM is observed at 1025 cm⁻¹, which represents the Al–O and stretching Si–O bonds, and the Si-O-Al polymeric framework. XRD analysis showed that AAMs consists predominantly of phase of quartz, calcite and albite.

Aknowledgement

This work was financially supported by the Ministry of Science, Technological Development and Inovation of the Republic of Serbia on the research program, record number: 451-03-47/2023-01/200017, and grant No. 1702302 Vinča Institute of Nuclear Sciences, National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Serbia.

References

- [1] K.D. Tran Thi, M.C Liao , D.H. Vo, The characteristics of alkali-activated slag-fly ash incorporating the high volume wood bottom ash: Mechanical properties and microstructures, *Construction and Building Materials* Vol. 394, 2023, 132240, ISSN: 0950-0618.
- [2] B.C. Mendes, L.G. Pedroti, C.M.F. Vieira, M. Marvila, A.R.G. Azevedo, J.M. Franco de Carvalho, J.C.L. Ribeiro, Application of eco - friendly alternative activators in alkali - activated materials: A review, *Journal of Building Engineering* 35, 2021, 1020103, ISSN: 2352-7102.
- [3] Ş. Turhan, İ.H. Arıkan, R. Küçükcezzar, Radiological Consequencwa of the use of fly ash in construction sector and geotehcnical applications, *Indoor Built Evironment* Vol.20 No.2, 2011, 253-258, ISSN: 1420-326X
- [4] J. Němeček, V. Šmilauer, L. Kopecký, Nanoindentation characteristics of alkali-activated aluminosilicate materials, *Cement and Concerte Composites* Vol.33, 2011 163-170, ISSN: 0958-9465
- [5] G. Gorhan, G. Kurklu, The influence of the NaOH solution on the properties of the fly ash-based geopolymer mortar cured at different temperatures, *Composites: Part B* Vol.58, 2014, 371-377, ISSN: 1359-8368.
- [6] R.C. Bhangare, M.Tiwari, P.Y. Ajmal, S.K. Sahu, G.G. Pandit, Distribution of natural radioactivity in coal and combustion residues of thermal power plants, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* Vol.300, 2014, 17–22, ISSN: 0236-5731.
- [7] N.N Mladenović Nikolić., A.B Kandić, K.V. Trivunac, M.M. Mirković, I.S. Vukanac, S.S. Nenadović, L.M. Kljajević, Radiological and Structural Characterization of Raw and Alkali-Activated Wood Ash and Metakaolin Blends, *Sustainability* Vol.14, 2022, 12960, ISSN: 2071-1050.
- [8] G.M. Canfield, J. Eichler, K. Griffith, J.D. Hearn, The role of calcium in blended fly ash geopolymers, *Journal of Materials Science* Vol.49, No.17, 2014, 5922-5933, ISSN: 0022-2461.
- [9] I. Ignjatović, Z. Sas, J. Dragaš, J. Somlai, T. Kovács, Radiological and material characterization of high volume fly ash concrete, *Journal of Environmental Radioactivity* Vol.168, 2017, 38-45, ISSN: 0265-931X.
- [10] Rigaku. *PDXL Integrated X-Ray Powder Diffraction Software*; Version 2.8.4.0; Rigaku: Tokyo, Japan, 2011.
- [11] International Crystallographical Data Base (ICDD).
- [12] [12] MBSS 2, Cert. No. 9031-OL-032/05; Radioactive Standard. CMI (Czech Metrological Institute): Prague, Czech Republic, 2005.

- [13] International Atomic Energy Agency. Measurement of Radionuclides in Food and the Environment, A Guide Book; Technical Reports Series No. 295; IAEA: Vienna, Austria, 1989
- [14] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation (UNSCEAR) Report to the General Assembly with Annex A: Exposures from Natural Sources of Radiation; United Nations: New York, NY, USA, 1993.
- [15] M. T. Nenadović, C. Ferone, Lj. M. Kljajević, M. M. Mirković, B. Todorović, Ivana S. Vukanac, and Snežana S. Nenadović, Alkali Activation of Different Type of Ash as a Production of Combustion Process, Nuclear Technology & Radiation Protection, Vol. 36, No. 1, 2021, pp. 66-73, ISSN: 1451-3994.
- [16] M. Poletto, A.J. Zattera, R.M.C. Santana, Structural differences between wood species: Evidence from chemical composition, FTIR spectroscopy, and thermogravimetric analysis, Journal of Applied Polymer Science Vol.126, 2012, E337–E344, ISSN: 1097-4628.
- [17] I. Kubovský, D. Kačíková, F. Kačík, Structural Changes of Oak Wood Main Components Caused by Thermal Modification. Polymers Vol.12, 2020, 12, 485, ISSN:2073-4360
- [18] F. Li, W. Wu, R. Li, X. Fu, Adsorption of phosphate by acid-modified fly ash and palygorskite in aqueous solution: Experimental and modeling. Applied Clay Science 2016, Vol.132–133, 343–352, ISSN:0169-1317.
- [19] G.M. Nasab, F. Golestanifard, K.J.D. MacKenzie, The effect of the SiO₂/Na₂O ratio in the structural modification of metakaolin-based geopolymers studied by XRD, FTIR and MAS-NMR, Journal of Ceramic Science and Technology Vol.5, 2014, 185–192, ISSN: 2190-9385.

RADIOLOŠKA KARAKTERIZACIJA ALKALNO AKTIVNIH MATERIJALA KOJI SADRŽE DRVENI I LETEĆI PEPEO

Ljiljana KLJAJEVIĆ¹, Nataša MLADENOVIĆ NIKOLIĆ¹, Aleksandar KANDIĆ², Ivana VUKANAC³, Marija IVANOVIĆ¹, Sanja KNEŽEVIĆ¹, Snežana NENADOVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za materijale, Beograd, Srbija*
- 2) *Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za nuklearnu i plazma fiziku, Beograd, Srbija*
- 3) *Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija*

SAŽETAK

Nepravilno skladištenje letećeg pepela kao industrijskog otpada je uzrok problema kontaminacije zemljišta. Ovaj otpad ili nusproizvodi imaju potencijal da se koriste kao sekundarne sirovine u građevinarstvu, promovišući koncept kružne ekonomije kako bi se izbegla kontaminaciju zemljišta. U ovom radu procenjuje se radiološki uticaj na životnu sredinu kada se otpad koji sadrži povišene nivoe prirodnih radionuklida kao što su leteći pepeo i drveni pepeo pretvara u "zelene cemente" kao što su geopolimeri ili alkalno aktivirani materijali (AAM). Alkalno-aktivirani materijali nastali su reakcijom alkalne aktivacije drvenog i elektrofilterskog pepela, kao čvrstih prekursora, i rastvora alkalnog aktivatora, natrijum hidroksida i natrijum silikata. Korišćene su tri različite koncentracije rastvora alkalnog aktivatora. Određivanje sadržaja radionuklida urađeno je spektrometrijom gama zraka. Jačina apsorbovane doze bila je 68,6-98,1 nGy/h, a H_{ex} (Bq/kg) za alkalno aktivirane materijale AAM4, AAM6 i AAM12 je bio 0,544 Bq/kg, 0,575 Bq/kg i 0,403 Bq/kg, respektivno. Rezultati merenja koncentracije aktivnosti u alkalno aktiviranim materijalima ukazuju na potencijal njihove bezbedne primene u građevinskim konstrukcijama. Alkalno aktivirani materijali su ispitani i u pogledu nekih strukturnih karakteristika.

POTENCIJALNI ODNOS IZMEĐU KONCENTRACIJE TRICIJUMA U KIŠNICI I REKAMA

Marija JANKOVIĆ¹, Nataša SARAP¹, Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹, Milica RAJAČIĆ¹,
Ivana VUKANAC¹, Ivana JELIĆ¹, Marija ŠLJIVIĆ-IVANOVIĆ¹

1) *Institut za nuklearne nauke Vinča, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Mike Petrovića Alasa 12-14, 11001 Vinča, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Marija JANKOVIĆ, marijam@vinca.rs

SAŽETAK

U radu je razmatran potencijalni odnos između dobijenih rezultata za koncentraciju tricijuma u kišnici i rekama, Savi i Dunavu, u Beogradu. Uzorkovanja su vršena svakog meseca tokom 2021. godine. Svi uzorci su koncentrisani primenom metode sa elektrolitičkim obogaćenjem, dok je za detekciju tricijuma korišćen tečni scintilacioni spektrometar. Dobijeni rezultati korišćeni su za izračunavanje količine tricijuma deponovane po m² površine, kao i prosečnog toka tricijuma u rekama na osnovu protoka vode. Dobijena distribucija tricijuma tumačena je u skladu sa meteorološkim i hidrološkim parametrima.

Uvod

Tricijum, radioaktivni izotop vodonika, sa vremenom poluraspada od 12,32 godine [1], prirodno nastaje u reakciji neutrona iz kosmičkog zračenja sa molekulima azota u gornjim slojevima atmosfere. Veštački stvoren tricijum nastao je prilikom nuklearnih proba u periodu 1945-1980. Nuklearne probe dovele su do ispuštanja tricijuma u atmosferu u obliku tritiranog vodonika HT i metil tricijumskog gasa CH₃T, pri čemu dolazi do brze oksidacije i pretvaranja u tritiranu vodu (HTO) [2]. Ovo ispuštanje u atmosferu dovelo je do sto puta većih koncentracija tricijuma u padavinama u odnosu na prirodni nivo [3]. Izotopski sastav padavina prati se više od 50 godina širom sveta kroz globalnu mrežu izotopa u padavinama (GNIP - Global Network of Isotopes in Precipitation), oformljenu od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju (IAEA - International Atomic Energy Agency) i Svetske Meteorološke Organizacije (WMO - World Meteorological Organization), kao i pojedinačnih institucija. Globalna mreža izotopa u rekama (GNIR - Global Network of Isotopes in Rivers) pokrenuta je u periodu 2002-2005. kao deo Programa za vodene resurse IAEA u okviru pilot projekta. Fokusirana je na stabilne izotope i sadržaj tricijuma u različitim slivovima svetskih reka. Cilj GNIR programa je prikupljanje i širenje vremenskih serija o podacima za izotopske sastave svetskih reka, kao i diseminacija ka širokim naučnim disciplinama, uključujući hidrologiju, meteorologiju i klimatologiju, okeanografiju, limnologiju i vodenu ekologiju [4].

Cilj ovog rada je razmatranje potencijalnog odnosa između dobijenih rezultata za koncentraciju tricijuma u padavinama i u rekama, Savi i Dunavu, kao i da se na osnovu meteoroloških i hidroloških parametara proceni količina deponovanog tricijuma i njegov prosečan tok u rekama. Podaci koji se dobijaju za mesečne uzorke bitni su u cilju identifikacije potencijalnih izvora kontaminacije. Povišeni nivoi tricijuma mogu ukazati na prisustvo drugih veštačkih radionuklida [5].

Eksperimentalni deo

U cilju analize sadržaja tricijuma u kišnici i u rekama, tokom 2021. kišnica je uzorkovana na meteorološkoj stanici Zeleno brdo (ZB) u Beogradu, dok su površinske vode Save i Dunava

uzorkovane na Novom Beogradu i u Zemunu (Slika 1). Analiza se radi u kompozitnim mesečnim uzorcima. Priprema uzoraka uključuje preliminarnu destilaciju, elektrolitičko obogaćenje i sekundarnu destilaciju. Zajedno sa uzorcima u sistemu za elektrolizu obogaćuje se i standard tricijuma poznate aktivnosti u cilju računanja faktora obogaćenja. Nakon sekundarne destilacije uzorci se mešaju sa scintilacionim koktelom Ultima Gold LLT u zapreminskom odnosu 8:12 ml u polietilenskim bočicama zapremine 20 ml. Za merenje sadržaja tricijuma u uzorcima koristi se tečni scintilacioni spektrometar Ultra Low Level Liquid Scintillation Spectrometer Quantulus 1220. Za merenje fona koristi se *mrtva voda* [6]. Efikasnost detekcije određuje se pomoću standardnog referentnog rastvora tricijuma (Czech Metrology Institute) i iznosila je 26,6 %. Prozor za merenje tricijuma podešen je između 1. i 250. kanala. Vreme merenja uzoraka je 18000 s. Svi rezultati merenja prikazuju se sa mernom nesigurnošću, koja je izražena kao proširena merna nesigurnost za faktor $k = 2$, koji za normalnu raspodelu odgovara nivou poverenja od 95 %.



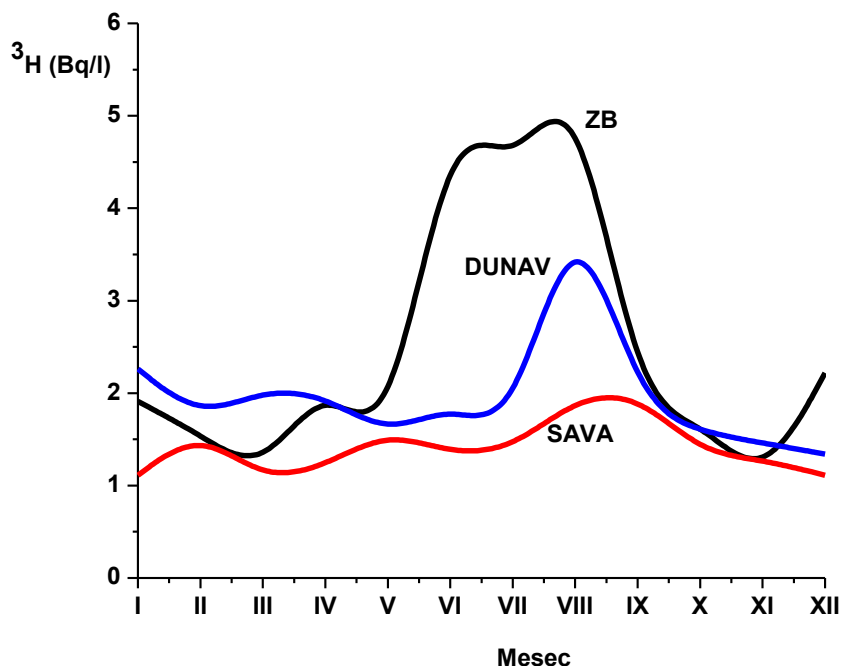
Slika 1: Uzorkovanje kišnice i površinske vode

Rezultati i diskusija

U cilju proučavanja odnosa između koncentracije tricijuma u kišnici sa referentne meteorološke stanice Zeleno brdo i u rekama, Savi i Dunavu, na Slici 2 prikazane su mesečne koncentracije tricijuma u padavinama i površinskim vodama tokom 2021. godine. Koncentracija tricijuma u kišnici bila je u opsegu od $0,98 \pm 0,23$ Bq/l (novembar) do $5,59 \pm 0,47$ Bq/l (avgust). Tokom prolećnih i letnjih meseci, dobijene koncentracije u kišnici su znatno više u odnosu na koncentraciju tricijuma u površinskoj vodi, te je izražen sezonski efekat. Tokom prolećnih meseci dolazi do povećane koncentracije tricijuma u troposferi na severnoj hemisferi. Ovaj mehanizam se objašnjava razmenom troposferskih i stratosferskih vazdušnih masa koja se javlja pretežno tokom kasne zime i proleća [7]. Dobijene vrednosti tricijuma u kišnici ukazuju na normalne sezonske varijacije, što je posledica stratosferskog porekla ovog radionuklida. Na severnoj hemisferi gde su koncentracije tricijuma u padavinama bile najveće usled atmosferskih nuklearnih proba, danas se zapaža trend opadanja. Sličan trend je primećen i na južnoj hemisferi [2].

U uzorcima površinske vode Save, koncentracija tricijuma je bila u opsegu od $1,05 \pm 0,25$ Bq/l (mart) do $2,00 \pm 0,30$ Bq/l (septembar), dok su vrednosti za Dunav bile u opsegu od $1,34 \pm 0,26$ Bq/l (decembar) do $4,27 \pm 0,41$ Bq/l (avgust). Različiti procesi, kao što

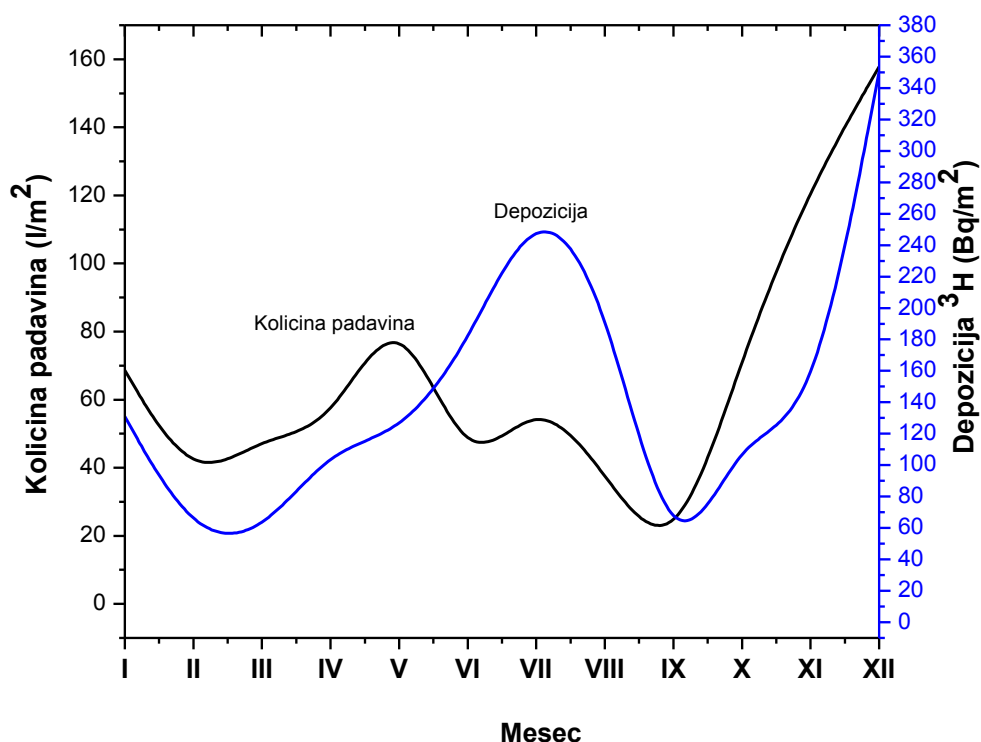
su procesi mešanja koji postoje u jezerima, rezervoarima i podzemnim vodama, dovode do niske sezonske izotopske amplitude, što je evidentno za Savu, dok Dunav ima pik tokom letnjih meseci [2,4].



Slika 2: Mesečne koncentracije tricijuma u padavinama i površinskim vodama tokom 2021. godine

Za ispitivani period, odnos koncentracija tricijuma u kišnici i u Savi i Dunavu je blizu 1, što ukazuje da nije došlo do nekog lokalnog ispuštanja [8].

Korišćenjem meteoroloških podataka za Beograd (meteorološka stanica Opservatorija [9]) za količinu padavina, može se proceniti depozicija tricijuma na Zemljinu površinu uzimajući u obzir dobijene vrednosti tricijuma u kišnici (Slika 3). Depozicija se kretala u opsegu od $17,3 \text{ Bq/m}^2$ (septembar) do $350,3 \text{ Bq/m}^2$ (decembar). Vrednost prosečnih tokova tricijuma u rekama [2,8] za 2021. godinu procenjena je na $0,0647 \text{ PBq/god}$ i $0,157 \text{ PBq/god}$ za Savu i Dunav, redom, korišćenjem srednjih godišnjih protoka za Savu ($1450 \text{ m}^3/\text{s}$ u Sremskoj Mitrovici (139,2 km od ušća Save u Dunav)) i $2550 \text{ m}^3/\text{s}$ za Dunav (Novi Sad, 1255 km od ušća Save u Dunav)) [10] i srednjih godišnjih vrednosti koncentracije tricijuma u ispitivanim rekama.



Slika 3: Količina padavina na meteorološkoj stanici Opservatorija (Beograd) i depozicija tricijuma tokom 2021. godine

Zaključak

Analiza sadržaja tricijuma u mesečnim uzorcima kišnice i reka Save i Dunava u Beogradu tokom 2021. godine, pokazuje međusobni odnos blizu 1, što dovodi do zaključka da nema lokalnog ispuštanja ovog radioizotopa. Dobijene koncentracije tricijuma u kišnici na lokaciji Zeleno brdo u Beogradu, pokazuju njegovo stratosfersko poreklo sa izraženim maksimumom tokom prolećnih i letnjih meseci. Na osnovu izmerenih koncentracija tricijuma u padavinama i količine padavina, procenjena je depozicija tricijuma, čija je maksimalna vrednost iznosila 350,3 Bq/m². Pored toga, korišćenjem hidroloških podataka za prosečan protok Save i Dunava i izmerenih koncentracija tricijuma u ovim površinskim vodama, procenjena je vrednost prosečnog toka tricijuma, čija je maksimalna vrednost iznosila 0,157 PBq/god.

Zahvalnica

Istraživanje je podržano od strane Ministarstva nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (broj aneksa 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] L. L. Lucas, M. P. Unterweger, Comprehensive Review and Critical Evaluation of the Half-Life of Tritium. Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology Vol. 105 No. 4, 2000, 541-549.
- [2] L. Ducros, F. Eyrolle, C. D. Vedova, S. Charmasson, M. Leblanc, A. Mayer, M. Babic, C. Antonelli, D. Mourier, F. Giner, Tritium in river waters from French Mediterranean

- catchments: Background levels and variability. *Science of the Total Environment* Vol. 612, 2018, 672-682.
- [3] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and effects of ionizing radiation, UNSCEAR 2008, Report to the General Assembly with Scientific Annexes. United Nations, New York, 2010.
- [4] J. Halder, S. Terzer, L. I. Wassenaar, L. J. Araguás-Araguás, P. K. Aggarwal, The Global Network of Isotopes in Rivers (GNIR): integration of water isotopes in watershed observation and riverine research. *Hydrology Earth System Sciences* Vol. 19, 2015, 3419-3431.
- [5] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet, Sl. gl. RS 36/18, 2018.
- [6] J. Nikolov, N. Todorović, M. Janković, M. Voštinar, I. Bikit, M. Vesković, Different methods for tritium determination in surface water by LSC. *Applied Radiation and Isotopes* Vol. 71, 2013, 51-56.
- [7] K. Rozanski, R. Gonfiantini, L. Araguas-Araguas, Tritium in the global atmosphere: distribution patterns and recent trends. *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics* Vol. 17, 1991, S523-S536.
- [8] N. Miljević, V. Šipka, A. Žujić, D. Golobočanin, Tritium around the Vinča Institute of Nuclear Sciences. *Journal of Environmental Radioactivity* Vol. 48, 2000, 303-315.
- [9] Meteorološki godišnjak - klimatološki podaci 2021. Republički Hidrometeorološki Zavod, Republika Srbija, Beograd, 2022.
- [10] Hidrološki godišnjaci - 1. Površinske vode 2021. Republički Hidrometeorološki Zavod, Republika Srbija, Beograd, 2022.

**RELATIONSHIP BETWEEN TRITIUM CONCENTRATIONS
IN PRECIPITATION AND RIVERS**

Marija JANKOVIĆ¹, Nataša SARAP¹, Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹, Milica RAJAČIĆ¹,
Ivana VUKANAC¹, Ivana JELIĆ¹, Marija ŠLJIVIĆ-IVANOVIĆ¹

1) *Vinča Institute of Nuclear Sciences, National Institute of the Republic of Serbia,
University of Belgrade, Radiation and Environmental Protection Department, Mike
Petrovića Alasa 12-14, 11001 Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

The potential relationship between the obtained results for the tritium concentration in precipitation and in the Sava and Danube River in Belgrade was analyzed. Sampling was done during 2021. All samples were concentrated using the method with electrolytic enrichment, while a liquid scintillation spectrometer was used for tritium detection. The obtained results were used to calculate the amount of tritium deposited per m² of surface as well as to estimate the average flow of tritium in rivers based on river water flow. The obtained distribution of tritium was interpreted in accordance with meteorological and hydrological parameters.

ANALIZA TRENDA PROMENE UKUPNE ALFA I UKUPNE BETA AKTIVNOSTI U POLJOPRIVREDNOM EKOSISTEMU

Nataša SARAP, Marija JANKOVIĆ, Jelena KRNETA NIKOLIĆ, Milica RAJAČIĆ,
Ivana VUKANAC, Vojislav STANIĆ, Ivana JELIĆ

- 1) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča" - Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Mike Petrovića Alasa 12-14, 11001 Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Nataša B. SARAP, natasas@vinca.rs

SAŽETAK

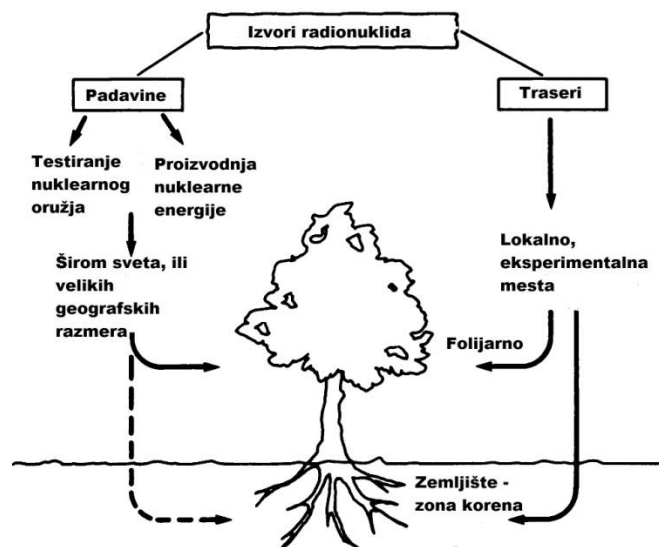
Sprovedeno istraživanje je usmereno na analizu trenda promene ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u poljoprivrednom zemljištu i usevima višegodišnjeg oglednog polja. Analiza je urađena primenom akreditovane metode za određivanje ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u čvrstim matriksima. Merenja su obavljena u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine Instituta za nuklearne nauke "Vinča" na niskofonskom gasnom proporcionalnom brojaču Thermo Eberline FHT 770T. Izmerene vrednosti ukupne alfa aktivnosti variraju od 158 Bq/kg do 324 Bq/kg i ukupne beta aktivnosti od 600 Bq/kg do 1324 Bq/kg za uzorke zemljišta. Za uzorke biljnih kultura vrednosti ukupne alfa aktivnosti su u intervalu od 5 Bq/kg do 167 Bq/kg suve materije, dok su vrednosti ukupne beta aktivnosti u intervalu od 180 Bq/kg do 584 Bq/kg suve materije. Rezultati istraživanja su značajni, jer daju osnovne radiološke informacije od vitalnog značaja za ispitivano područje. Ovo je prvi pokušaj generisanja osnovnih podataka o radijacionom opterećenju zemljišta i biljnih kultura poljoprivrednog ekosistema alfa i beta emiterima, koji su određeni skrining metodom za monitoring životnog okruženja.

Uvod

Prirodni radionuklidi su prisutni u svim aspektima životne sredine, a mnogi datiraju još od vremena pre nastanka Sunčevog sistema. Prirodna radioaktivnost je najznačajniji izvor jonizujućeg zračenja u životnoj sredini, kako u pogledu ukupnog ozračivanja stanovništva, tako i u pogledu visokih lokalnih doza zračenja [1]. Pored prirodne radioaktivnosti, primena nuklearne energije u mirnodopske svrhe je dovela do svojevrstne tehnološke revolucije, ali i povećanog rizika kontaminacije životne sredine antropogenim (proizvedenim) radionuklidima. Antropogeni radionuklidi se oslobađaju u životnu sredinu usled testiranja i primene nuklearnog oružja, kao i u mirnodopskim akcidentima ili havarijama nuklearnih postrojenja, što predstavlja ozbiljan i globalni problem [1].

Zemljište kao nezaobilazna karika u lancu ishrane sadrži alfa i beta emitere koji potiču iz prirodnih nizova uranijuma, torijuma i aktinijuma, kao i ^{40}K i proizvedene izotope, ^{90}Sr i ^{137}Cs . Ukupna alfa aktivnost uključuje aktivnost svih alfa emitera, bez ^{222}Rn , dok ukupna beta aktivnost obuhvata sve beta emitere, izuzev ^3H [2]. Resorpcijom iz zemljišta putem korenovog sistema, radionuklidi se metabolički mogu ugraditi u biljne vrste. Usvajanje i akumulacija dugoživećih radionuklida: ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{90}Sr i ^{137}Cs od strane vegetacije je složen proces, koji pored osobina zemljišta, morfološko-fizioloških karakteristika biljne vrste i mikroklimatskih uslova, zavisi i od puta kontaminacije [3,4]. Postoje dva mehanizma interakcije vegetacije sa radionuklidima, a to su: direktna apsorpcija preko nadzemnog dela biljke iz vazduha i padavina, i indirektna apsorpcija iz zemljišta putem korenovog sistema biljke [3]. Kontaminacija prvim modusom je dominantna u trenutku i neposredno nakon

nuklearnih i drugih akcidenata koji dovode do porasta koncentracije antropogenih radionuklida u atmosferi, dok nakon izvesnog vremena, kada koncentracija radionuklida opadne, dominira drugi modus [5]. Putevi kontaminacije i usvajanje radionuklida od strane vegetacije, prikazani su na Slici 1.



Slika 1: Putevi kontaminacije i usvajanje radionuklida od strane vegetacije [3]

Ispitivanje radioaktivnosti u životnoj sredini je neophodno sprovoditi radi procene izloženosti stanovništva jonizujućem zračenju. Sadržaj radionuklida u uzorcima iz životne sredine se određuje koristeći metode: određivanja ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti, gamaspektrometrije, radiohemijsko-analitičke, i druge. Metoda određivanja ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti se pokazala korisnom kao skrining metoda za brzu procenu nivoa kontaminacije radionuklidima. Sprovedeno istraživanje je obuhvatilo analizu ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u poljoprivrednom ekosistemu, jer je proizvodnja zdrave i bezbedne hrane jedan od najvažnijih izazova s kojim se suočava moderna poljoprivreda, uz istovremeno smanjenje negativnih uticaja poljoprivrede na životnu sredinu. Ovi uticaji uključuju zagađenje svih medijuma životne sredine, što je naročito izazvano prekomernom upotrebom mineralnih đubriva koja sadrže odgovarajuću količinu radionuklida.

Eksperimentalni deo

Istraživanje obuhvata lokalitet oglednog polja Radmilovac u Beogradu (Republika Srbija). Uzorkovanje obradivog zemljišta i useva je izvršeno u periodu od 2013. do 2015. godine, i to: zemljište dva puta godišnje u proleće/leto i jesen, dok su usevi uzorkovani jednom godišnje u sezoni proleće/leto, zavisno od vrste useva i u fazi pune zrelosti. Zemljište mase oko 2,5 kg je uzorkovano u dva sloja na dubini (0-15) cm i (15-30) cm, pomoću ašova i sonde od nerđajućeg čelika. Uzorci biljnog materijala su uzorkovani u celini, mase oko 2 kg. Na lokalitetu uzorkovanja, uzorci su spakovani u kese za uzorkovanje i adekvatno obeleženi, nakon čega su transportovani do laboratorije.

Priprema uzoraka zemljišta uključuje: uklanjanje mehaničkih nečistoća i sitnjenje prstima, sušenje u sušnici na 105 °C tokom 24 h, mehaničko usitnjavanje u mlinu za mlevenje uzoraka, zatim i u avanu sa tučkom i na kraju prosejavanje kroz sito od nerđajućeg čelika (veličine pora 250 μm), čime su uzorci homogenizovani do praha. Priprema uzoraka biljnog materijala uključuje: odstranjivanje ostataka zemljišta iz korenovog sistema pod mlazom

tekuće vode posle čega se vrši ispiranje destilovanom vodom, seckanje biljne mase na sitnije delove, sušenje na vazduhu i sobnoj temperaturi minimalno tri nedelje, mineralizaciju u laboratorijskoj peći za žarenje na 450 °C tokom 24 h metodom suvog spaljivanja i homogenizaciju mineralnog ostatka.

Analiza uzoraka se vrši primenom MARLAP akreditovane metode za određivanje ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u čvrstim matriksima [6]. Za analizu ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti koristi se oko 130 mg uzorka zemljišta ili biljnog materijala, pripremljenih na prethodno opisani način. Uzorci se fiksiraju i mere u planšetama od nerđajućeg čelika, prečnika 59 mm, na niskofonskom gasnom proporcionalnom brojaču Thermo Eberline FHT 770T. Vreme merenja uzoraka je 14400 s u tri serije merenja. Efikasnost niskofonskog gasnog proporcionalnog brojača za merenje ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti je određena upotrebom tačkastih kalibracionih izvora ^{241}Am i ^{90}Sr , koji su nabavljeni od Češkog metrološkog instituta iz Praga, i iznose 27 % i 32 %, redom. Tačnost i reproduktivnost mernog uređaja (provera efikasnosti detekcije) se verifikuju jednom nedeljno, pomoću navedenih kalibracionih izvora i sastavni su deo procedure kontrole kvaliteta.

Ukupna alfa i ukupna beta aktivnost ($A_{\alpha\beta}$) izražene u Bq/kg se izračunavaju pomoću izraza (1):

$$(1) \quad A_{\alpha\beta} = \frac{(R - R_0)}{\varepsilon \cdot m}$$

gde je: R - alfa ili beta odbroj za mereni uzorak (1/s), R_0 - alfa ili beta odbroj za pozadinsko zračenje (1/s), ε - efikasnost mernog uređaja za merenje alfa ili beta efikasnosti, m - masa uzorka (kg).

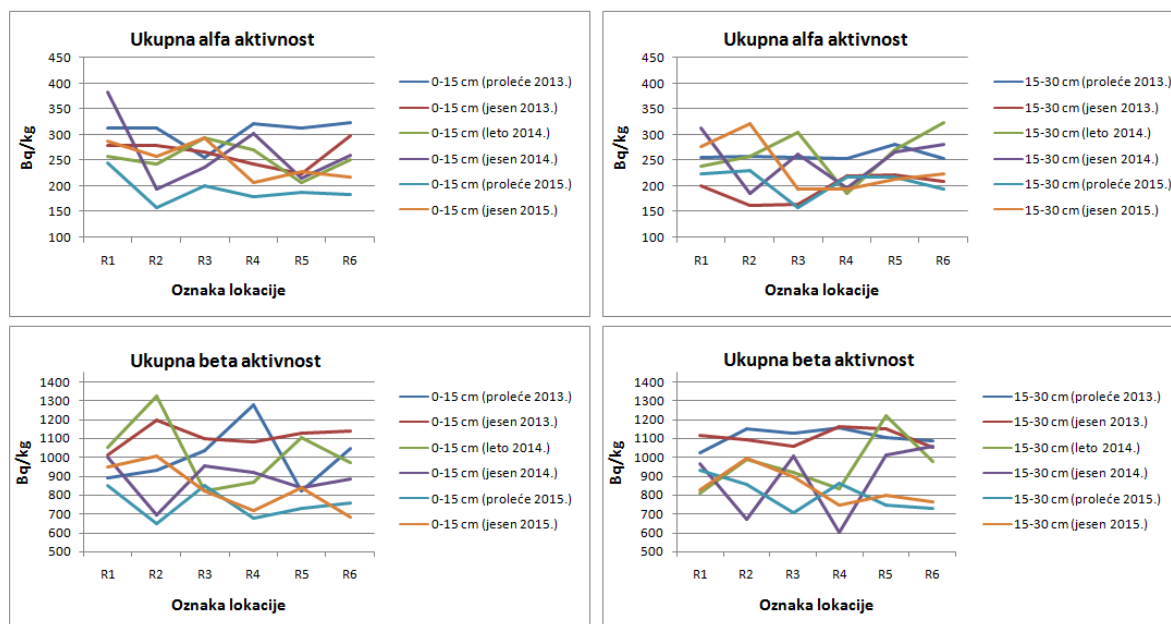
Rezultati i diskusija

Na Slici 2 su prikazani rezultati određivanja ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti za dva profila oraničnog horizonta zemljišta tipa izluženi černozem u periodu od 2013. do 2015. godine. Istraživanje uključuje dva poljoprivredna sistema: sistem organske poljoprivrede (lokacije R1-R3), koji se bazira na visokom poštovanju ekoloških principa i sistem održive poljoprivrede (lokacije R4-R6), koji predstavlja noviji sistem poljoprivredne proizvodnje uveden zbog očuvanja životne sredine kroz favorizovanje očuvanja biodiverziteta [7]. U okviru sistema organske poljoprivrede zastupljene su dve varijante đubrenja: folijarna primena tečnog mikrobiološkog đubriva u proleće (R1), zatim primena čvrstog prirodnog organskog đubriva u jesen (R2) i treća kontrolna varijanta bez đubrenja (R3). U okviru sistema održive poljoprivrede, pored osnovnog đubrenja u jesen primenom 300 kg/ha NPK đubriva (15:15:15), obavljena je i dopunska prihrana azotom u proleće, i to u dva nivoa: viši sa 120 kg/ha N (R4) i racionalni sa 60 kg/ha N (R5); pored ovoga postojala je i kontrolna varijanta bez aplikacije azota (R6).

Srednje vrednosti ukupne alfa aktivnosti za profile oraničnog horizonta (0-15) cm i (15-30) cm u sistemu organske poljoprivrede iznose (264 ± 98) Bq/kg i (237 ± 92) Bq/kg, redom, dok u sistemu održive poljoprivrede iznose (246 ± 94) Bq/kg i (235 ± 91) Bq/kg za profile (0-15) cm i (15-30) cm, redom. Iz navedenog se vidi da su srednje vrednosti ukupne alfa aktivnosti za oba profila oraničnog horizonta niže u sistemu održive poljoprivrede.

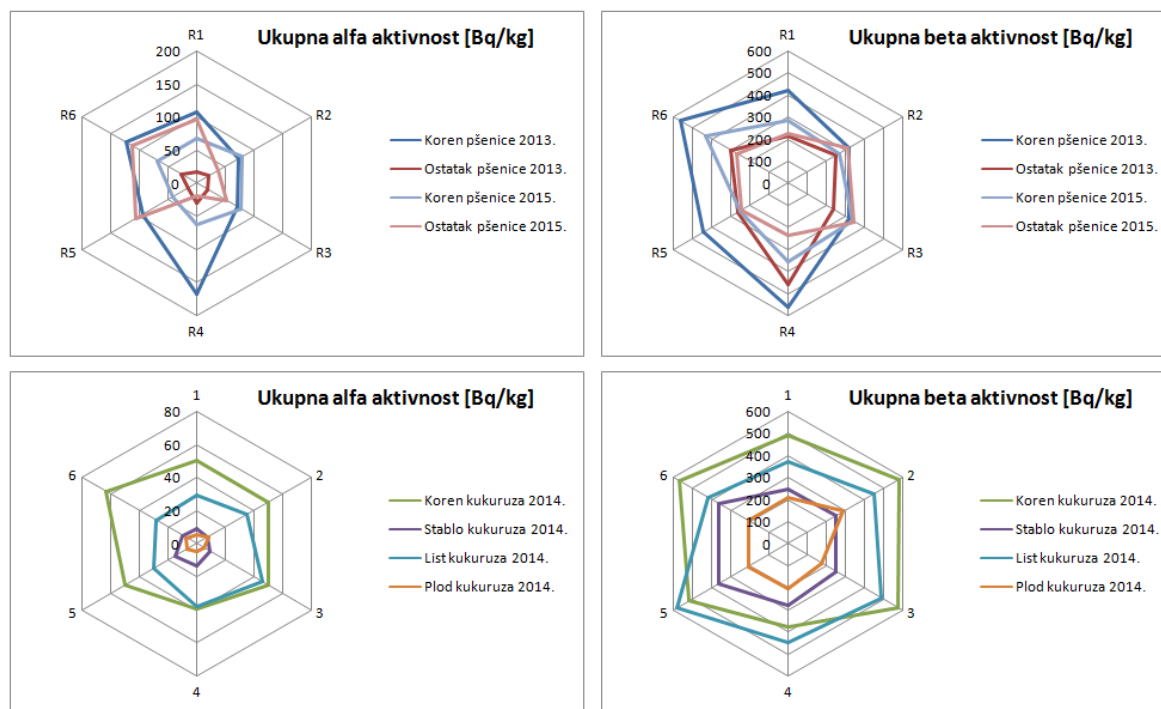
Srednje vrednosti ukupne beta aktivnosti za profile oraničnog horizonta (0-15) cm i (15-30) cm u sistemu organske poljoprivrede su jednake i iznose (952 ± 162) Bq/kg, dok u sistemu održive poljoprivrede iznose (916 ± 159) Bq/kg i (949 ± 162) Bq/kg za profile (0-15) cm i (15-30) cm, redom. Ukoliko se posmatraju srednje vrednosti ukupne beta

aktivnosti po profilima oraničnog horizonta, varijanti poljoprivrednog sistema i godinama ispitivanja, zaključuje se da ove vrednosti opadaju sa godinama ispitivanja, dok za ukupnu alfa aktivnost to nije slučaj.



Slika 2: Ukupna alfa i ukupna beta aktivnost za dva profila oraničnog horizonta zemljišta

Na Slici 3 su prikazani rezultati određivanja ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u usevima ispitivanog dvopoljnog plodoreda sa vremenskom smenom za obe tehnologije gajenja: pšenica u 2013. i 2015. godini, a kukuruz u 2014. godini. Svi rezultati su izraženi kao Bq/kg suve materije.



Slika 3: Ukupna alfa i ukupna beta aktivnost u usevima ispitivanog oglednog polja

Srednje vrednosti ukupne alfa aktivnosti u pšenici iz sistema organske poljoprivrede iznose (80 ± 24) Bq/kg za koren i (41 ± 8) Bq/kg za ostatak (stablo, list, zrno), dok u sistemu održive poljoprivrede iznose (92 ± 28) Bq/kg za koren i (52 ± 7) Bq/kg za ostatak (stablo, list, zrno). Srednje vrednosti ukupne beta aktivnosti u pšenici iz sistema organske poljoprivrede iznose (324 ± 42) Bq/kg za koren i (265 ± 21) Bq/kg za ostatak (stablo, list, zrno), dok u sistemu održive poljoprivrede iznose (434 ± 56) Bq/kg za koren i (293 ± 21) Bq/kg za ostatak (stablo, list, zrno). Iz navedenog se vidi da su srednje vrednosti ukupne alfa aktivnosti, kao i ukupne beta aktivnosti u pšenici, niže u sistemu organske poljoprivrede. U organskom sistemu je gajena alternativna vrsta ozime pšenice *Triticum durum* (sorta *Durumko*), koja je namenjena isključivo za pravljenje testenina, dok je u održivom sistemu gajena obična meka pšenica *Triticum aestivum vulgare* (srednje rana sorta *Rapsodija*), koja spada u sorte namenjene za ljudsku ishranu (hleba pšenica) [5]. Izmerene vrednosti ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u pšenici ukazuju na to da se najveći deo aktivnosti zadržava u korenu biljke, kao i da sorta *Durumko* apsorbuje manje alfa i beta emitera od sorte *Rapsodija*.

Srednje vrednosti ukupne alfa aktivnosti u kukuruзу iz sistema organske poljoprivrede iznose (50 ± 15) Bq/kg za koren, (9 ± 3) Bq/kg za stablo, (37 ± 12) Bq/kg za list i (7 ± 2) Bq/kg za plod, dok u sistemu održive poljoprivrede iznose (51 ± 16) Bq/kg za koren, (13 ± 4) Bq/kg za stablo, (32 ± 11) Bq/kg za list i (6 ± 2) Bq/kg za plod. Srednje vrednosti ukupne beta aktivnosti u kukuruзу iz sistema organske poljoprivrede iznose (551 ± 75) Bq/kg za koren, (250 ± 17) Bq/kg za stablo, (439 ± 36) Bq/kg za list i (226 ± 14) Bq/kg za plod, dok u sistemu održive poljoprivrede iznose (485 ± 69) Bq/kg za koren, (332 ± 25) Bq/kg za stablo, (479 ± 44) Bq/kg za list i (205 ± 13) Bq/kg za plod. U navedenim poljoprivrednim sistemima gajen je hibrid kukuruза (*Zea mays* L.) *ZP SC 677*, srednje kasni hibrid najviše zastupljen u predelima do 200 m nadmorske visine, sa visokim prinosom i sadržajem skroba [8]. Izmerene vrednosti ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u kukuruзу ukazuju na to da se najveći deo aktivnosti zadržava u vegetativnim organima biljke sa preraspodelom: koren > list > stablo. Najniže vrednosti ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti su detektovane u plodu, kao generativnom organu kukuruза.

Zaključak

Fokus istraživanja prikazanih u ovom radu je bio na detekciji ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti pomoću skrining metode za monitoring životnog okruženja, kao i generisanju informacija o radijacionom opterećenju obradivog zemljišta i biljnih kultura u dve tehnologije gajenja useva zasnovane na dvopoljnoj smeni u plodoredu oglednog polja Radmilovac u Beogradu.

Analiza trenda promene ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u poljoprivrednom zemljištu višegodišnjih oglednih parcela je ukazala na to da ukoliko se posmatraju srednje vrednosti ukupne beta aktivnosti po profilima oraničnog horizonta, varijanti poljoprivrednog sistema i godinama ispitivanja, zaključuje se da ove vrednosti opadaju sa godinama ispitivanja, dok za ukupnu alfa aktivnost to nije slučaj. Rezultati ispitivanja su pokazali i da su srednje vrednosti ukupne alfa aktivnosti za oba profila oraničnog horizonta niže u sistemu održive poljoprivrede.

Izmerene vrednosti ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u pšenici ukazuju na to da se najveći deo aktivnosti zadržava u korenu biljke, kao i da alternativna vrsta ozime pšenice apsorbuje manje alfa i beta emitera od obične meke pšenice. Izmerene vrednosti ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti u kukuruзу ukazuju na to da se najveći deo aktivnosti zadržava u vegetativnim organima biljke sa preraspodelom: koren > list > stablo, dok su najniže vrednosti detektovane u plodu, kao generativnom organu biljke. Analiza rezultata akumulacije ukupne alfa i ukupne

beta aktivnosti u pšenici i kukuruzu, bilo da je u pitanju adsorpcija iz vazduha ili iz zemljišta, je pokazala da se ispitane ratarske kulture mogu koristiti kao indikatori radiološkog zagađenja u poljoprivrednom ekosistemu/životnoj sredini.

U pogledu uticaja vrste/nivoa prihrane/đubrenja na ukupnu alfa i ukupnu beta aktivnost u ispitanom obradivom zemljištu/usevima, ne može se zaključiti ima li i u kojoj meri đubrenje uticaja na sadržaj alfa ili beta emitera u ispitanim medijumima, jer ne postoji uniformna raspodela aktivnosti u odnosu na vrstu/nivo apliciranog đubriva.

U dostupnoj literaturi nisu pronađeni podaci o sličnim istraživanjima, tako da nije bilo moguće izvršiti poređenje sa drugim studijama.

Zahvalnica

Istraživanje je finansijski podržano od strane Ministarstva za nauku, tehnološki razvoj i inovacije Republike Srbije (evidencioni broj Aneksa ugovora: 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and effects of ionizing radiation, UNSCEAR 2008, Report to the General Assembly with Scientific Annexes. United Nations, New York, 2010.
- [2] N. Todorović, J. Nikolov, I. Bikit, Određivanje ukupne alfa i beta aktivnosti u pijaćim vodama metodom tečnog scintilacionog brojanja. Zbornik radova XXVI simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, 12-14. oktobar 2011, Tara, Srbija, 83-87.
- [3] J. J. Koranda, W. L. Robison, Accumulation of Radionuclides by Plants as a Monitor System. Environmental Health Perspective Vol 27, 1978, 165-179.
- [4] J. Ajtić, D. Todorović, D. Popović, J. Nikolić, Više biljke kao biomonitori radionuklida u urbanom vazduhu. Zbornik radova XXVI simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, 12-14. oktobar 2011, Tara, Srbija, 55-59.
- [5] N. Sarap, Praćenje distribucije radionuklida ⁹⁰Sr u poljoprivrednom zemljištu i biljnim kulturama metodom spektrometrije beta zračenja. Doktorska disertacija, Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu, Beograd, 2017.
- [6] Multi-Agency Radiological Laboratory Analytical Protocols Manual (MARLAP), Vol. II, Chapters 10-17 and Appendix F, 2004.
- [7] Ž. Dolijanović, S. Oljača, D. Kovačević, M. Simić, N. Momirović, Ž. Jovanović, Dependence of the productivity of maize and soybean intercropping systems on hybrid type and plant arrangement pattern. Genetika Vol 45, 2013, 135-144.
- [8] <https://mrizp.rs/hibridi-kukuruza/zp-677/>

ANALYSIS OF TREND OF THE GROSS ALPHA AND GROSS BETA ACTIVITY IN THE AGRICULTURAL ECOSYSTEM

Nataša SARAP, Marija JANKOVIĆ, Jelena KRNETA NIKOLIĆ, Milica RAJAČIĆ,
Ivana VUKANAC, Vojislav STANIĆ, Ivana JELIĆ

- 1) *University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences - Institute of National Importance for the Republic of Serbia, Radiation and Environmental Protection Department, Mike Petrovića Alasa 12-14, 11001 Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

The conducted research is focused on the analysis of the trend of changes in gross alpha and gross beta activity in agricultural soil and crops of perennial experimental fields. The analysis was performed using an accredited method for determining gross alpha and gross beta activity in solid matrix. The measurements were performed in the Radiation and Environmental Protection Department in Vinča Institute of nuclear Sciences on a low-level gas proportional counter Thermo Eberline FHT 770T. The measured values of gross alpha activity varied from 158 Bq/kg to 324 Bq/kg, and from 600 Bq/kg to 1324 Bq/kg for the gross beta activity in soil samples. For plant samples, values ranged from 5 Bq/kg to 167 Bq/kg of dry matter, and from 180 Bq/kg to 584 Bq/kg of dry matter for gross alpha and gross beta activity, respectively. The results of the research are significant, because they provide basic radiological information of vital importance for the investigated area. This is the first attempt to generate data base on the radiation load of soil and crops of the agricultural ecosystem with alpha and beta emitters, which were determined by the screening method for environmental monitoring.

AKUMULACIJA RADIONUKLIDA IZ ZEMLJIŠTA U PLODOVIMA LEŠNIKA

Predrag KUZMANOVIĆ^{1,2}, Jan HANSMAN¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹,
Sofija FORKAPIĆ¹, Jovana KNEŽEVIĆ³, Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹

- 1) *Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet, Departman za fiziku, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*
- 2) *Akademija strukovnih studija Šabac, Odsek za medicinske i poslovno-tehnološke studije, Laboratorija za fiziku, Hajduk Veljkova 10, Šabac*
- 3) *Javno preduzeće Nuklearni objekti Srbije, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Vinča*

Autor za korespondenciju: Predrag KUZMANOVIĆ, predrag.kuzmanovic@df.uns.ac.rs

SAŽETAK

U površinskom zemljištu su prisutni prirodni dugoživeći radionuklidi: U-238, Th-232 i njihovi potomci, K-40 i veštački radionuklid Cs-137. Varijacije u koncentracijama ovih radionuklida u površinskom zemljištu zavise od mineraloškog sastava tog zemljišta, kao i njegovih hemijskih i fizičkih osobina, meteoroloških uslova i drugih osobina. Površinsko zemljište je najveći radioaktivni izvor za biljke, što može dati značajan doprinos dozi ingestije za čoveka tokom godine. U ovom radu metodom gama spektrometrije analizirana je koncentracija aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 u uzorcima jezgra lešnika i okolnog zemljišta od jednog individualnog proizvođača u Šapcu, Srbija. Određene su godišnje efektivne doze za odraslog čoveka, a dobijene vrednosti su daleko ispod prosečne vrednosti od $290 \mu\text{Sv y}^{-1}$. Takođe, vrednosti transfer faktora (TF) za sve analizirane radionuklide, su manje od 1 što ukazuje da u jezgru lešnika nema prekomerne aktivne akumulacije radioaktivnosti iz zemljišta.

Uvod

Radionuklidi prirodnog porekla su široko rasprostranjeni u hrani u različitim koncentracijama zbog neujednačenih pozadinskih nivoa radioaktivnosti, klime i poljoprivrednih uslova koji preovlađuju u određenom području. Izvori unutrašnjeg izlaganja zračenju u namirnicama nastaju uglavnom gama zračenjem od prirodnih radionuklida serije U-238 i Th-232, kao i K-40 [1 – 3]. Takođe u ekosistemima mnogo godina nakon nesreće u Černobilu zaostala je određena koncentracija veštačkog radionuklida Cs-137 koji se takođe može naći u hrani u tragovima [4].

U površinskom tlu, ovi radionuklidi postoje sa manjim ili većim varijacijama njihovih koncentracija aktivnosti [2, 5]. Varijacije u koncentracijama radionuklida na površinskom zemljištu uglavnom zavise od njegovog mineraloškog sastava, kao i njegovih hemijskih i fizičkih osobina, meteoroloških uslova i mogućeg prenosa u dublje slojeve zemljišta. U toku kultivacije, dodavanjem veštačkih đubriva i vode dolazi do promene nivoa njihove koncentracije aktivnosti u površinskom zemljištu [1, 6]. Usevi su obično direktno ili indirektno kontaminirani prirodnim i veštačkim radionuklidima. Taloženje radionuklida na nadzemne delove biljaka dovodi do direktne kontaminacije, dok je indirektna kontaminacija posledica apsorpcije radionuklida iz zemljišta od strane korenovog sistema biljaka [1, 5].

Dosadašnja istraživanja pokazuju da je površinsko zemljište najveći izvor za kontaminaciju biljkaka radionuklidima [1, 5]. Biljke imaju sposobnost da apsorbuju i prenose radionuklide putem mineralnog unosa jer radionuklidi imaju hemijske i fizičke karakteristike koje su slične mineralima koje biljke obično koriste. Radionuklidi koji se nalaze u životnoj sredini mogu se

preneti u različite biljne vrste preko korenovog sistema ili preko nadzemnih delova biljaka [1]. Na akumulaciju radionuklida iz zemljišta u biljku putem korena utiču svojstva zemljišta kao što su pH, sadržaj glinenih mineralnih i organskih materija. Pored toga, postupci kao što su oranje, đubrenje i navodnjavanje za kultivaciju zemljišta značajno utiču na profil unosa i distribucije radionuklida kroz korenje u biljkama [1, 7].

Opasnosti po zdravlje čoveka nastaju kada su radionuklidi prisutni u hrani, posebno kada uđu u ljudsko telo gutanjem [1, 8]. Unutrašnja izloženost radionuklidima iz životne sredine može imati štetne zdravstvene efekte za čoveka. Unutrašnja izlaganja zračenju, Ra-226 i Ra-228 su od posebnog značaja jer su ovo dva najopasnija radionuklida po zdravlje ljudi. Emisija alfa čestica kao produkt raspada Ra-226 ga čini kancerogenom, a dugoročna akumulacija Ra-226 usled ingestije tokom vremena i njegova ugradnja u koštanom tkivu je poznati uzrok raka kostiju. Pri normalnim uslovima u životnoj sredini oko 90% Ra-226 ulazi u ljudsko telo putem lanca ishrane [1, 9]. Ponašanje veštačkog radionuklida Cs-137 je slično kao kod K-40, pa se lako prenosi kroz mnoga okruženja [1].

Nevedeni radionuklidi se iz zemljišta akumuliraju kroz korenje na jestivim delovima biljke i kada se ovi jestivi delovi unesu u organizam čoveka varenjem doprinose ukupnoj unutrašnjoj dozi zračenja. Da bi se ispitala radiološka bezbednost i pogodnost hrane za ljude, potrebno je vršiti praćenje radioaktivnosti u hrani koja se konzumira i koristiti pojedinačne doze od svakog radionuklida za procenu ukupne godišnje efektivne doze za čoveka [7]. U tu svrhu su sprovedena istraživanja u različitim zemljama kako bi se definisala doza kojoj su ljudi izloženi u zavisnosti od konzumacije određene namirnice [1, 3 – 5, 7]. Od ukupne prosečne godišnje efektivne doze ($2,4 \text{ mSv y}^{-1}$), $0,29 \text{ mSv y}^{-1}$ čovek unese ingestijom putem hrane i vode, od čega je procenjeno da radionuklidi serije U-238 i Th-232 doprinose sa $0,12 \text{ mSv y}^{-1}$, a radionuklid K-40 sa $0,17 \text{ mSv y}^{-1}$ [2].

Cilj ovog rada je ispitivanje sadržaja radioaktivnih elemenata (U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137) u uzorcima lešnika i okolnom zemljištu i procena transfer faktora kako bi se odredio nivo akumulacije radionuklida u ovom voću iz zemljišta. Takođe, cilj je i procena radijacionog rizika od konzumiranja ovog voća tokom godine u smislu godišnjih efektivnih doza. U svetu postoji mali broj istraživanja koncentracije radionuklida u lešniku, jedno od tih je sprovedeno u Turskoj [4]. U Srbiji se sa 3218 hektara rodne površine pod lešnikom godišnje proizvede oko 4200 tona ovog voća [10]. Ovaj rad predstavlja prvo istraživanje radioaktivnosti lešnika u Srbiji.

Materijal i metode

U ovom radu analizirani su uzorci jezgra lešnika sa privatnog gazdinstva u Šapcu, Zapadna Srbija. Takođe, analizirani su i uzorci okolnog zemljišta na dubini od 0-20 cm. Svi uzorci su sušeni 4 – 6 h na temperaturi od $105 \text{ }^{\circ}\text{C}$ do konstantne mase, a potom samleveni, nakon čega su upakovani u cilindrične plastične posude dimenzija 6,7 cm u prečniku i 6,2 cm visine, i zapečaćeni voskom kako bi se sprečio izlazak radona iz posude. Svi pripremljeni uzorci su mereni metodom gama spektrometrije kako bi se odredile koncentracije aktivnosti ispitivanih radionuklida: U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137. Merenje je sprovedeno nakon mesec dana od zatvaranja posude sa uzorkom, donosno po uspostavljanju sekularne radioaktivne ravnoteže između Ra-226 i Rn-222. Uzorci su analizirani IAEA TRS 295 metodom [8]. Vreme merenja uzoraka iznosilo je oko 70000 s. Masa pripremljenih uzoraka zemlje iznosila je oko 200 g, a masa uzoraka jezgra lešnika iznosila je oko 90 g.

Koncentracije aktivnosti U-238 određene su na osnovu gama linija njegovih potomaka: Th-234 i Pa-234m na 63,3 keV i 1001,026 keV, respektivno. Na osnovu gama linija na 295,2 keV i 351,9 keV od Pb-214, zatim 609,3 keV i 1764,5 keV od Bi-214 određene su

koncentracije aktivnosti Ra-226. Na osnovu gama linija emitovanih na 238,6 keV od Pb-212, 583,2 keV od Tl-208, 911,2 keV i 969,1 keV od Ac-228 određene su koncentracije aktivnosti Th-232. Koncentracija aktivnosti K-40 i Cs-137 je određene su iz njihovih sopstvenih gama linija na 1460,8 keV i 661,7 keV, respektivno [11].

Merenja su sprovedena korišćenjem HPGe gama spektrometra proizvođača Canberra, rezolucije 1,9 keV, relativne efikasnosti 36%. Korišćenjem referentnog radioaktivnog materijala homogeno distribuiranog u silikonskoj smoli zapremine 250 cm³ izvršena je kalibracija detektora u cilindričnoj geometriji. Zaštita oko detektora je izrađena od olova debljine 12 cm. Gama spektri su prikupljeni i analizirani korišćenjem Canberra Genie 2000 softvera [11]. Pomoću programa ANGLE izvršena je korekcija na efekat samoapsorpcije, koji nastaje usled matrica različitih gustina [12]. Merne nesigurnosti su date na nivou poverenja od 95%.

Na osnovu izmerenih vrednosti radionuklida u lešniku i okolnom zemljištu određene su vrednosti transfer faktora (TF). Transfer faktor se može definisati kao sposobnosti biljke da preuzme ili akumulira radioaktivnost iz zemljišta na kome je uzgajana. Transfer faktor je od fundamentalnog značaja u proceni uticaja na životnu sredinu usled prisustva radioaktivnosti u zemljištu i usevima. Transfer faktor se može predstaviti i kao odnos izmerene koncentracije aktivnosti pojedinačnog radionuklida u lešniku i izmerene koncentracije aktivnosti pojedinačnog radionuklida u okolnom zemljištu (najčešće na dubini 0-20 cm) i može se izračunati prema relaciji (1) [1, 3]:

$$(1) \quad TF = \frac{A_{lešnika} \text{ (Bq kg}^{-1}\text{)}}{A_{zemljišta} \text{ (Bq kg}^{-1}\text{)}}$$

Vrednosti transfer faktora se razlikuju od biljke do biljke i na njega utiču svojstva zemljišta, klimatski uslovi i svojstva radionuklida [5]. Raspodela radionuklida u različitim delovima biljke je različita i zavisi od hemijskih karakteristika i nekoliko parametara biljke i zemljišta [5, 13]. IAEA je objavila podatke o transfer faktorima za različite biljke u IAEA-TRS-472 [14]. Vrednosti transfer faktora veći od jedinice podrazumevaju aktivnu bioakumulaciju radioaktivnosti [1].

Tabela 1: Dozni konverzioni faktor koncentracije aktivnosti (D_F) za ingestiju [15].

Radionuklid	D_F (Sv Bq ⁻¹)
U-238	4,4E-8
Ra-226	2,8E-7
Th-232	2,2E-7
K-40	6,2E-9
Cs-137	1,3E-8

Ako su poznate koncentracije aktivnosti određenih radionuklida u nekom prehrambenom proizvodu, može se izvršiti procena godišnjeg unosa ovih radionuklida u smislu godišnje efektivne doze (E). Godišnje efektivne doze zbog unosa radionuklida putem hrane mogu se izračunati na osnovu relacije (2) [3, 4, 7]:

$$(2) \quad E = A_C \cdot I_R \cdot D_F$$

gde je E godišnja efektivna doza (mSv y⁻¹) za svaki pojedinačan radionuklid u uzorku lešnika; A_C je izmerena koncentracija aktivnosti radionuklida u lešniku (Bq kg⁻¹); I_R je stopa potrošnje hrane (kg godišnje). Imajući u vidu da ne postoji podatak o tačnoj potrošnji lešnika za čoveka tokom godine, pretpostavljena je potrošnja od 1 kg; D_F je faktor konverzije

aktivnosti u dozu za ingestiju ($Sv Bq^{-1}$). Vrednosti faktora konverzije aktivnosti u dozu za ingestiju (D_F) prikazane su u Tabeli 1 [15]. Prema Pravilniku u Srbiji godišnja efektivna doza za ingestiju iz hrane ograničena je na $0,1 mSv y^{-1}$ [16].

Rezultati i diskusija

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 u analiziranim uzorcima lešnika prikazane su u Tabeli 2.

Tabela 2: Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti analiziranih radionuklida u uzorcima jezgra lešnika i okolnog zemljišta (0-20 cm).

Oznaka uzorka	Koncentracija aktivnosti ($Bq kg^{-1}$)				
	U-238	Ra-226	Th-232	K-40	Cs-137
Jezgro lešnika					
L1K	$2,6 \pm 0,5$	$2,9 \pm 0,5$	$1,1 \pm 0,3$	286 ± 15	$< 1,5$
L2K	$3,0 \pm 0,3$	$2,8 \pm 0,4$	$3,2 \pm 0,6$	265 ± 18	$< 3,0$
L3K	$1,5 \pm 0,2$	$2,4 \pm 0,5$	$2,3 \pm 0,5$	305 ± 12	$< 1,8$
L4K	$0,5 \pm 0,2$	$0,4 \pm 0,2$	$0,8 \pm 0,2$	235 ± 12	$< 1,3$
L5K	$1,1 \pm 0,3$	$1,5 \pm 0,3$	$1,1 \pm 0,3$	246 ± 11	$< 1,9$
L6K	$2,5 \pm 0,4$	$2,7 \pm 0,5$	$2,0 \pm 0,6$	287 ± 15	$< 2,5$
Raspon	0,5 - 3,0	0,4 - 2,9	0,8 - 3,2	235 - 305	$< 1,3 - < 3,0$
Prosek	1,9	2,1	1,8	271	$< 2,0$
Zemljište					
L1	$34,5 \pm 1,1$	$35,2 \pm 0,7$	$37,6 \pm 1,4$	489 ± 12	$4,10 \pm 0,23$
L2	$41,3 \pm 1,6$	$40,8 \pm 0,8$	$43,5 \pm 1,6$	547 ± 12	$4,93 \pm 0,20$
L3	36 ± 4	$39,1 \pm 0,8$	$41,2 \pm 1,6$	551 ± 13	$5,4 \pm 0,4$
L4	$38,1 \pm 2,1$	$42,5 \pm 1,2$	$39,2 \pm 2,2$	554 ± 15	$4,2 \pm 0,3$
L5	$38,9 \pm 1,5$	$37,7 \pm 0,9$	$41,7 \pm 1,6$	556 ± 13	$5,36 \pm 0,27$
L6	$37,1 \pm 2,2$	$36,8 \pm 0,9$	$39,5 \pm 1,5$	536 ± 13	$4,7 \pm 0,4$
Raspon	34,5 - 41,3	35,2 - 42,5	37,6 - 43,5	489 - 556	4,1 - 5,4
Prosek	37,7	38,7	40,5	539	4,8
Prosečna vrednost u svetu ^a	33	32	45	420	-

^adato za zemljište u referenci [2].

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 u jezgru lešnika se kreću i rasponu od $(0,5 - 3,0) Bq kg^{-1}$; $(0,4 - 2,9) Bq kg^{-1}$; $(0,8 - 3,2) Bq kg^{-1}$; $(235 - 305) Bq kg^{-1}$; $(< 1,3 - < 3,0) Bq kg^{-1}$, respektivno. Prosečne vrednosti koncentracija aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 u jezgru lešnika su $1,9 Bq kg^{-1}$, $2,1 Bq kg^{-1}$, $1,8 Bq kg^{-1}$, $271 Bq kg^{-1}$, i $< 2,0 Bq kg^{-1}$, respektivno. Najveće vrednosti u uzorcima su dobijene za K-40. Međutim, ne postoji dozvoljena koncentracija K-40 u hrani. Uobičajeno objašnjenje je da je kalijum neophodan element za ljude i da se sadržaj K-40, kao jednog od izotopa kalijuma, održava konstantnim u ljudskom telu putem metaboličkih procesa [3, 17]. Koncentracije aktivnosti izmerene u ovoj studiji su mnogo veće od referentnih vrednosti u voću i proizvodima od žitarica i lisnatog povrća koje je predložio UNSCEAR [2], i više od prijavljenih vrednosti u Kini (Tabela 3 u [3]). Izmerene vrednosti analiziranih radionuklida u drugim namirnicama za ljudsku upotrebu u svetu i njihovo poređenje sa izmerenim vrednostima u ovom radu prikazane su u Tabeli 3. Dobijene vrednosti Ra-226 i Th-232 su niže od prosečnih vrednosti prijavljenih u lešniku [4] i žitaricama (pšenica, ječam, ovas), siru i belom hlebu iz Turske, a uporedive sa sadržajem istih radionuklida u goveđem mesu iz ove zemlje [7]. Dobijene vrednosti koncentracija aktivnosti radionuklida su niže od izmerenih

vrednosti U-238 i Th-232 u drugim namirnicama poreklom iz Nigerije, dok su vrednosti za K-40 su uporedive [18]. Takođe, izmerene vrednosti K-40 su uporedive sa vrednostima za lešnik iz Turske [4] i drugim proizvodima poreklom iz ove zemlje [7], Tabela 3. Izmerene vrednosti svih analiziranih radionuklida su uporedive sa vrednostima za voće iz Indije [19], osim K-40, gde su u našem istraživanju nađene oko 5 puta veće vrednosti od prosečne. Izmerene vrednosti Cs-137 u uzorcima su bile znatno niske (niže od minimalne detektabilne koncentracije aktivnosti) što je uporedivo sa nalazima u npr. zrnu pšenice [1]; lešniku iz Turske [4] i voću iz Indije [19], Tabela 3.

Tabela 3: Poređenje izmerenih koncentracija aktivnosti radionuklida u hrani poreklom iz drugih zemalja u svetu i lešniku iz Srbije.

Hrana	Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)					Referenca
		U-238	Ra-226	Th-232	K-40	Cs-137	
Pšenica (zrno)	Jordan	-	MDC - 92 (12)	< MDC	140 - 382 (220)	< MDC	[1]
Lešnik (jezgro)	Turska	-	MDC - 19 (7)	MDC - 25 (8)	MDC - 298 (136)	MDC - 6 (2)	[4]
Goveđe meso	Turska	-	(2,93)	(4,24)	(207)	-	[7]
Pšenica	Turska	-	(16,84)	(29,93)	(294)	-	[7]
Ovas	Turska	-	(34,33)	(20,08)	(202)	-	[7]
Ječam	Turska	-	(15,79)	(19,62)	(235)	-	[7]
Sir	Turska	-	(11,66)	(18,12)	(169)	-	[7]
Beli hleb	Turska	-	(15,71)	(21,78)	(196)	-	[7]
Manioka-brašno	Nigerija	6,9 - 32,5 (19,3)	-	6,5 - 18,4 (11,4)	207 - 693 (427)	-	[18]
Jam-brašno	Nigerija	4,8 - 8,1 (6,3)	-	7,8 - 9,0 (8,4)	207 - 244 (227)	-	[18]
Taro-brašno	Nigerija	6,1 - 9,7 (7,5)	-	5,6 - 8,2 (7,1)	142 - 248 (196)	-	[18]
Voće	Indija	1,5 - 10,60 (5,30)	3,60 - 7,20 (5,06)	0,10 - 2,00 (0,80)	3 - 111 (44)	0,03 - 0,70 (0,35)	[19]
Lešnik	Srbija	0,5 - 3,0 (1,9)	0,4 - 2,9 (2,1)	0,8 - 3,2 (1,8)	235 - 305 (271)	< 1,3 - < 3,0 (< 2,0)	Ovaj rad

- raspon; (srednja vrednost). MDC = Minimalna detektabilna koncentracija aktivnosti.

Izmerene koncentracije aktivnosti radionuklida u okolnom zemljištu stabala lešnika prikazane su u Tabeli 2. Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 u zemljištu se kreću i rasponu od (34,5 - 41,3) Bq kg⁻¹; (35,2 - 42,5) Bq kg⁻¹; (37,6 - 43,5) Bq kg⁻¹; (489 - 556) Bq kg⁻¹; (4,1 - 5,4) Bq kg⁻¹, respektivno. Prosečne vrednosti koncentracija aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 u zemljištu su 37,7 Bq kg⁻¹, 38,7 Bq kg⁻¹, 40,5 Bq kg⁻¹, 539 Bq kg⁻¹, i 4,8 Bq kg⁻¹, respektivno. Dobijene vrednosti za U-238, Ra-226 i Th-232 su oko prosečnih vrednosti za zemljište u svetu, dok su vrednosti K-40 više od prosečne vrednosti za oko 30% [2]. Može se videti da je distribucija svih radionuklida na analiziranoj parceli prilično dobro ujednačena u obradivom sloju zemljišta. Kao što se obično navodi, najzastupljeniji među ovim radionuklidima je K-40, što je za red veličine više od ostalih [2, 3, 20]. Koncentracije aktivnosti U-238 izmerene u zemljištu bile su ujednačene sa izmerenim vrednostima Ra-226 i Th-232. Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti radionuklida su u proseku duplo veće od onih izmerenih u zemljištu Nigerije [18], a uporedive su sa vrednostima dobijenim za zemljište u Vojvodini, Srbija [6].

Tabela 4: Vrednosti transfer faktora (TF) za analizirane radionuklide.

Oznaka uzorka	TF_U	TF_{Ra}	TF_{Th}	TF_K	TF_{Cs}
L1K	0,075	0,082	0,029	0,58	< 0,37
L2K	0,073	0,069	0,074	0,48	< 0,61
L3K	0,039	0,056	0,059	0,55	< 0,43
L4K	0,014	0,010	0,019	0,43	< 0,24
L5K	0,028	0,040	0,026	0,44	< 0,35
L6K	0,067	0,073	0,051	0,54	< 0,53
Raspon	0,014 - 0,075	0,010 - 0,082	0,019 - 0,074	0,43 - 0,58	< 0,24 - < 0,61
Prosek	0,049	0,055	0,043	0,50	< 0,42

Dobijeni transfer faktori (TF) koji se koriste za predviđanje akumulacije radionuklida u biljci prikazani su u Tabeli 4. Dobijene vrednosti se kreću u intervalu od 0,014 - 0,075; 0,010 - 0,082; 0,019 - 0,074; 0,43 - 0,58; < 0,24 - < 0,61; za U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137, respektivno. TF vrednosti za Cs-137 procenjene su uzimajući u obzir MDC vrednost za lešnik, Tabela 2. Prosečne TF vrednosti iznose 0,049; 0,055; 0,043; 0,50; < 0,42; za U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137, respektivno. Vrednosti TF dobijene za lešnik su u opsegu koji je prijavila IAEA za voće [14]. U izvesnoj meri, ovo takođe ukazuje na to da je odnos koncentracije aktivnosti radionuklida u zemljištu i biljci povezan sa vrstom biljke [3]. Radionuklidi se takođe mogu transportovati zajedno sa hranljivim materijama i mogu imati slično hemijsko ponašanje kao esencijalni nutrijenti iz zemljišta. Biljke preuzimaju hranjive jone, u skladu sa svojim zahtevima i potrebama. Oni se transportuju do određenih tkiva na osnovu funkcije elementa u biljnom metabolizmu i apsorbuju se u većoj koncentraciji u određenom delu u odnosu na druge [1]. Istraživanje [1] je pokazalo da se Ra-226, Th-232 i K-40 nagomilavaju više u stablu biljke nego u samom plodu.

Glavni faktori koji određuju varijabilnost TF su vrsta radionuklida i vrsta zemljišta [1]. Izmerene su koncentracije aktivnosti radionuklida za jednu vrstu zemljišta, pa je bilo za očekivanje prilična ujednačenost koncentracija aktivnosti analiziranih radionuklida u svim uzorcima zemljišta.

Dobijene vrednosti transfer faktora za K-40 su znatno veće od onih za ostale radionuklide (izuzev TF za Cs-137) i uporedive su sa vrednostima za spanać [3]. Dobijene vrednosti transfer faktora K-40 su niže od onih dobijenih za pšenicu iz Jordana [1] i druge biljne kulture poreklom iz Nigerije [18]. Dobro je poznato da je kalijum esencijalni makronutrijent za biljke i stoga se može očekivati da karakteristike zemljišta favorizuju mobilizaciju kalijuma i njegovu kasniju migraciju u biljku [3]. Međutim, objavljeno je da je transport radijuma unutar biljaka ograničen, sa većim sadržajem radijuma u korenu nego u drugim delovima biljaka [21] što je u saglasnosti sa rezultatima dobijenim u ovom radu. Pošto su dobijene vrednosti transfer faktora za sve radionuklide manje od 1, može se reći da nema aktivne akumulacije radionuklida u lešniku iz okolnog zemljišta, dok je aktivna akumulacija Ra-226 i K-40 uočena u uzorcima pšenice iz Jordana [1], odnosno U-238 i K-40 u drugim biljnim kulturama u Nigeriji [18].

Tabela 5: Vrednosti godišnjih efektivnih doza (E) od pojedinačnih radionuklida i vrednosti ukupne godišnje efektine doze (E_{uk}).

Oznaka uzorka	E (nSv y^{-1})					E_{uk} (μ Sv y^{-1})
	U-238	Ra-226	Th-232	K-40	Cs-137	
L1K	114 \pm 22	81 \pm 14	242 \pm 66	1773 \pm 93	< 19,5	2,23 \pm 0,12
L2K	132 \pm 13	78 \pm 11	704 \pm 132	1643 \pm 112	< 39,0	2,60 \pm 0,17
L3K	66 \pm 9	67 \pm 14	506 \pm 110	1891 \pm 74	< 23,4	2,55 \pm 0,13
L4K	22 \pm 9	11,2 \pm 5,6	176 \pm 44	1457 \pm 74	< 16,9	1,68 \pm 0,09
L5K	48 \pm 13	42,0 \pm 8,4	242 \pm 66	1525 \pm 68	< 24,7	1,88 \pm 0,10
L6K	110 \pm 18	76 \pm 17	440 \pm 110	1779 \pm 93	< 32,5	2,44 \pm 0,15
Raspon	22 - 132	11,2 - 81,2	176 - 704	1457 - 1891	< 16,9 - < 39,0	1,68 - 2,60
Prosek	82	59,3	385	1678	26,0	2,23

Procenjene godišnje efektivne doze putem unosa radionuklida kroz godišnju potrošnju lešnika su prikazane u Tabeli 5. Dobijene vrednosti godišnjih doza koje daju pojedinačni radionuklidi se kreću u intervalu od (22 - 132) nSv y^{-1} ; (11,2 - 81,2) nSv y^{-1} ; (176 - 704) nSv y^{-1} ; (1457 - 1891) nSv y^{-1} ; (< 16,9 - < 39,0) nSv y^{-1} ; za U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137, respektivno. Prosečne vrednosti godišnjih doza koje daju pojedinačni radionuklidi iznose 82 nSv y^{-1} ; 59,3 nSv y^{-1} ; 385 nSv y^{-1} ; 1678 nSv y^{-1} ; 26 nSv y^{-1} ; za U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137, respektivno.

Ukupna godišnja efektivna doza (E_{uk}) se izračunava sumiranjem godišnjih efektivnih doza usled unosa svakog pojedinačnog radionuklida [1], Tabela 5. Procenjene vrednosti se kreću u intervalu od (1,68 - 2,60) μ Sv y^{-1} , a prosečna vrednost iznosi 2,23 μ Sv y^{-1} . Jasno je da su godišnje efektivne doze daleko ispod prosečne doze za ingestiju hrane i vode u svetu od 0,29 mSv y^{-1} [2] kao i 0,1 mSv y^{-1} za ingestiju prema Pravilniku u Srbiji [16]. Doprinos ukupnoj dozi U-238 i Th-232 je manji od prosečne vrednosti u svetu od 0,12 mSv y^{-1} . Takođe, doprinos ukupnoj dozi od K-40 je manji od proseka za izloženost ingestiji u svetu od 0,17 mSv y^{-1} [2]. Na osnovu dobijenih vrednosti se može uočiti da najveći doprinos ukupnoj godišnjoj efektivnoj dozi, usled konzumacije lešnika, daju K-40 i Th-232 što čini oko 92,5% godišnje doze, dok je učešće ostalih radionuklida samo 7,5%. U drugim vstama namirnica poreklom iz Indije (mleko, jaja, voće i riba) sa pokazalo da Ra-226 učestvuje sa oko 60%; K-40 sa 18% i Th-232 sa oko 16% u ukupnoj dozi usled ingestije hrane [19], što nije bio slučaj kod uzoraka lešnika. Dobijene vrednosti godišnjih efektivnih doza su značajno niže od onih prikazanih za druge vrste hrane analizirane u istraživanjima sprovedenom u Kini [3], Turskoj [7] i Jordanu [1], kao i voća iz Indije [19], što je direktna posledica male količine lešnika koju čovek konzumira tokom godine. Takođe, dobijene vrednosti godišnjih efektivnih doza usled ingestije su niže i u poređenju sa onim dobijenim za lešnik poreklom iz Turske [4].

Zaključak

U ovom radu izmerene su koncentracije aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 u uzorcima lešnika i okolnog površinskog zemljišta. Izmerene vrednosti su uporedive sa drugim vrstama hrane analizirane u svetu. Zastupljenost istih radionuklida u uzorcima zemljišta je oko svetskog proseka, dok su za K-40 izmerene vrednosti iznad proseka za 30%. Dobijene vrednosti transfer faktora ukazuju da je u svim uzorcima najveća akumulacija iz zemljišta K-40 i Cs-137, dok je akumulacija ostalih radionuklida za red veličine manja, što je uporedivo i sa drugim biljnim proizvodima u svetu, te se zaključuje da nema prekomerne akumulacije radioaktivnosti u jezgri lešnika. Dobijene vrednosti godišnjih efektivnih doza za pojedinačne radionuklide ukazuju da najveći doprinos ukupnoj godišnjoj efektivnoj dozi daju Th-232 i K-40. Sve dobijene vrednosti godišnjih efektivnih doza su ispod prosečne vrednosti

za ingestiju hrane u svetu, te se može reći da ne postoji značajan radijacioni rizik od izloženosti zračenju od analiziranih radionuklida konzumiranjem lešnika.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev. br. 451-03-68/2023-14/ 200125).

Literatura

- [1] A.H. Alomari, M.A. Saleh, S. Hashim, N. Al-Hada, A. Abukashabeh, A. Alsayaheen, M. Hamad. Radiological dose and health impact to Jordanian populace due to radioactivity in staple food crops from four representative soils in Jordan. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol.326 No.3, 2020, 1679–1689, ISSN: 0236-5731
- [2] Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation. Exposures from Natural Radiation Sources, Annex B. United Nations Publication, New York, USA, 2000.
- [3] B. Yang, Q. Zhou, J. Zhang, Z. Li, F. Tuo. Evaluation of the natural radioactivity in food and soil around uranium mining region, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol.329 No.1, 2021, 127–133, ISSN: 0236-5731
- [4] U. Cevik, N. Celik, A. Celik, N. Damla, K. Coskuncelebi. Radioactivity and heavy metal levels in hazelnut growing in the Eastern Black Sea Region of Turkey. *Food and Chemical Toxicology*, Vol.47 No.9, 2009, 2351–2355, ISSN: 0278-6915
- [5] V.T. Nguyen, N.B. Vu, N.P.T Huynh. Gross alpha and beta radioactivity in food crops and surface soil from Ho Chi Minh City, Vietnam. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 315 No.1, 2018, 65–73, ISSN: 0236-5731
- [6] N. Todorović, I. Bikit, M. Vesković, D. Mrdja, S. Forkapić, J. Hansman, J. Nikolov, K. Bikit, M. Krmar. Radioactivity in fertilizers and radiological impact, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* Vol. 303, 2015, 2505–2509, ISSN: 0236-5731
- [7] G. Bilgici Cengiz, I. Caglar, Evaluation of lifetime cancer risk arising from natural radioactivity in foods frequently consumed by people in Eastern of Turkey, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol.331, 2022, 1847–1857, ISSN: 0236-5731
- [8] Measurements of Radionuclides in Food and Environment, Method for Determining Gamma Emitters, IAEA Technical Reports Series No. 295, Vienna, 1989
- [9] L. Tettey-Larbi, E.O. Darko, C. Schandorf, A.A. Appiah. Natural radioactivity levels of some medicinal plants commonly used in Ghana. *SpringerPlus* Vol. 2 No.1 2013, 157.
- [10] Statistika voćarske proizvodnje- Rezultati istraživanja o voćnjacima 2017. Republični zavod za statistiku Republike Srbije. Studije i analize broj 85, 2018.
- [11] P. Kuzmanović, L. Filipović Petrović, J. Hansman, D. Mrđa, S. Forkapić, J. Knežević Radić. Radioactivity of raw materials and wastes from zinc production in Serbia and radiation risk for workers. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. Vol.332, 2023. 2103–2114. ISSN: 0236-5731
- [12] L. Moens, J.D. Donder, L. Xi-lei, F.D. Corte, A.D. Wispelaere, A. Simonits, J. Hoste. Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different

- counting geometries. Nuclear Instruments and Methods Vol.187, 1981, 451–472. ISSN: 0029-554X
- [13] H. Velasco, J.J. Ayub, U. Sansone, Influence of crop types and soil properties on radionuclide soil-to-plant transfer factors in tropical and subtropical environments. *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol.100 No.9. 2009, 733–738, ISSN: 0265-931X
- [14] Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. IAEA Technical reports series No. 472, Vienna, 2010.
- [15] Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. *Ann. ICRP* 41 (Suppl.), 2012.
- [16] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet, Sl. gl. RS 36/18, 2018.
- [17] Criteria for radionuclide activity concentrations for food and drinking water, IAEA-TECDOC-1788, Vienna, 2016.
- [18] A.O. Gregory, and E.O. Agbalagba. Assessment of natural radioactivity, associated radiological health hazards indices and soil-to-crop transfer factors in cultivated area around a fertilizer factory in Onne, Nigeria, *Environmental Earth Sciences*, Vol.71 No.4, 2014, 1541–1549, ISSN: 1866-6280
- [19] A.C. Patra, S. Mohapatra, S.K. Sahoo, P. Lenka, J.S. Dubey, V.K. Thakur, A. V. Kumar, P. M. Ravi, Tripathi, R. M. Assessment of ingestion dose due to radioactivity in selected food matrices and water near Vizag, India, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol.300 No.3, 2014, 903–910, ISSN: 0236-5731
- [20] B. Mitrovic, J. Ajtic, M. Lazic, V. Andric, N. Krstic, B. Vranjes, M. Vicentijevic. Natural and anthropogenic radioactivity in the environment of Kopaonik mountain, Serbia. *Environmental Pollution* Vol.215, 2016, 273–279, ISSN: 0269-7491
- [21] N. Mitchell, D. Pérez-Sánchez, M.C. Thorne. A review of the behaviour of U-238 series radionuclides in soils and plants. *Journal of Radiological Protection* Vol.33 2013, 17–48, ISSN: 0952-4746

ACCUMULATION OF RADIONUCLIDES FROM SOIL IN HAZELNUT FRUITS

Predrag KUZMANOVIĆ^{1,2}, Jan HANSMAN¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹,
Sofija FORKAPIĆ¹, Jovana KNEŽEVIĆ³, Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹

- 1) *University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Novi Sad, Serbia*
- 2) *Academy of Applied Studies Šabac, Department of Medical and Business-Technological Studies, Physics Laboratory, Šabac, Serbia*
- 3) *Public company Nuclear facilities of Serbia, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade*

ABSTRACT

Natural long-lived radionuclides are present in the surface soil: U-238, Th-232 and their descendants, K-40 and the artificial radionuclide Cs-137. Variations in the concentrations of these radionuclides on surface soil depend on the mineralogical composition of that soil, as well as its chemical and physical properties, meteorological conditions and other properties. Surface soil is the largest radioactive source for plants, which can make a significant contribution to the ingested dose for humans during the year. In this paper, the activity concentration of U-238, Ra-226, Th-232, K-40 and Cs-137 in samples of hazelnut kernels and surrounding soil from an individual producer in Šabac, Serbia was analyzed using the gamma spectrometry method. The annual effective doses for an adult man were determined, and the obtained values are far below the average value of 290 $\mu\text{Sv y}^{-1}$. Also, the transfer factor (TF) values for all analyzed radionuclides are less than 1, which indicates that there is no excessive active accumulation of radioactivity from the ground in the hazelnut kernel.

**REZULTATI MERENJA PRIVATNE MERNE STANICE U POŽAREVCU ZA
KONTINUALNO MERENJE AMBIJENTALNOG EKVIVALENTA DOZE
ZA 2021. I 2022. GODINU**Miloš ĐALETIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke Vinča – Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Miloš ĐALETIĆ, djaletic@vinca.rs

SAŽETAK

U radu su prikazani rezultati merenja nezavisne privatne merne stanice u Požarevcu za kontinualno merenje ambijentalnog ekvivalenta doze za 2021. i 2022. godinu. Stanica je opremljena i automatskom meteorološkom stanicom, što je od značaja prilikom tumačenja rezultata merenja zbog uticaja padavina, kada dolazi do spiranja radona i njegovih potomaka iz atmosfere na tlo što se manifestuje kao kratkotrajno povećanje jačine doze. Posebno je prikazano više zanimljivih slučajeva povećanja jačine doze izazvanih prirodnim i veštačkim izvorima. Ovakva privatna merna stanica, koja se adekvatno održava i ima neophodnu infrastrukturu, može biti korisna kao dodatni indikator radiološke situacije, pored zvaničnog državnog sistema pravovremene najave radiološkog akcidenta, u slučajevima nuklearnih akcidenata i drugih situacija gde dolazi do nekontrolisane emisije radioaktivnih efluenata u životnu sredinu.

Uvod

Sistem pravovremene najave radiološkog akcidenta, koji je u nadležnosti Direktorata za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost Srbije, ima ukupno 9 mernih stanica. Stanice u Beogradu i Vinči udaljene su vazdušnom linijom približno 60 km i 50 km od Požarevca, a stanica u Kladovu približno 115 km [1]. Ova činjenica je značajno uticala na formiranje ideje o postavljanju privatne merne stanice. Nakon razvoja uređaja za kontinualno merenje jačine doze gama zračenja u životnoj sredini - GMC7 [2,3], autor je odlučio da jedan takav sistem postavi u okviru privatnog poseda u širem centru grada Požarevca kako bi kontinualno pratio jačinu ambijentalnog ekvivalenta doze gama zračenja. Uređaj GMC7 razvijen je neposredno pre akcidenta u nuklearnoj elektrani Fukušima Daiči u Japanu koji se dogodio 11. marta 2011. godine. Sam akcident je samo dodatno podstakao autora na puštanje u rad ovakvog sistema. U početku je to bio jedan detektor zračenja, ali tokom godina sistem se nadograđivao, pa sada rade tri merna sistema GMC7-0, GMC7-1 i GMC7-2 sa različitim sondama baziranim na Gajger-Milerovim detektorima različitih osetljivosti. Meteorološki uslovi utiču na varijacije nivoa prirodnog zračenja, stoga je autor razvio i digitalnu automatsku meteorološku stanicu za praćenje meteoroloških parametara. U prvoj fazi se samo automatski pratila temperatura vazduha i vazdušni pritisak (od 2013. godine), a očitavanja padavina su bila dnevna sa kišomera sa osloncem i ručno su se upisivala. Meteorološka stanica je unapređena aprila 2022. godine razvojem i instalacijom automatskog merača količine padavina na bazi klackalice. Automatska stanica beleži količinu padavina na 10 sekundi, dok se vrednosti vazdušnog pritiska i temperature očitavaju na 300 sekundi. Ovaj dodatak je veoma značajan zbog naročitog uticaja padavina na porast jačine doze izazvanog spiranjem radona i njegovih potomaka iz atmosfere na tlo (eng. *radon washout*) [4]. Ovakav porast je kratkoročan, što ga razlikuje od porasta izazvanog kontaminacijom radionuklidima

dužeg vremena poluraspada koji se mogu detektovati nakon akcidenata u nuklearnim elektranama.

Opis sistema

Merni sistem čine tri nezavisna merača GMC7 sa sondama baziranim na Gajger-Milerovim brojačima. U ovom radu su prikazani rezultati merenja merača sa detektorom najveće osetljivosti. Sva tri merača su povezana na poseban personalni računar koji se isključivo koristi za akviziciju podataka sa merača GMC7 i automatske meteorološke stanice. Računar je povezan na uređaj za besprekidno napajanje - UPS, što sistemu daje autonomiju od približno 60 minuta rada prilikom nestanka mrežnog napajanja. Ovo rešenje daje zadovoljavajuće rezultate obzirom da su isključenja mrežnog napajanja kratkotrajna, a dugotrajna isključenja prilikom otkaza ili remonta nisu učestala. Merni sistem GMC7-2 bio je aktivan 719 dana od ukupno 730 dana, što znači da je bio raspoloživ 98,5 % ukupnog vremena tokom dve prikazane godine rada, a od početka rada u februaru 2020. do juna 2023. godine raspoloživost iznosi 99,2 % ukupnog vremena. Ukupna raspoloživost najstarijeg sistema GMC7-0 od postavljanja 2011. godine do juna 2023. godine iznosi 97 %. Raspoloživost svih sistema je zadovoljavajuća obzirom da se radi o privatnoj mernoj stanici bez posebnog režima održavanja. Sa određenim novčanim ulaganjima i unapređenjima, pre svega u besprekidno napajanje sa većom autonomijom, raspoloživost bi mogla da se približi raspoloživosti profesionalnih serverskih sistema (> 99,9 %).

Automatska meteorološka stanica je razvijena i postavljena 2013. godine sa senzorima vazdušnog pritiska i ambijentalne temperature, a unapređena je dodatkom automatskog merača količine padavina sa klackalicom aprila 2022. godine. Obavlja se i redovna kontrola stabilnosti merača količine padavina i korekcija kalibracionog koeficijenta, sipanjem određene referentne zapremine vode, izmerene menzуром, u levak za prikupljanje padavina. Merač količine padavina referentnu zapreminu vode registruje kao 10 mm padavina. Rezolucija merača je 0,14 mm.

Sistem GMC7 je ispitan u etalonskim poljima izvora Co-60 i Cs-137 u sektoru za etaloniranje, Laboratorije za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine "Zaštita" kada je i određen kalibracioni koeficijent, ali nije zvanično etaloniran. Međutim, sistem se i ne koristi za praćenje apsolutne vrednosti, već za praćenje varijacija i detekciju povećanja jačine doze kao indikaciju radiološkog akcidenta, što uspešno obavlja.

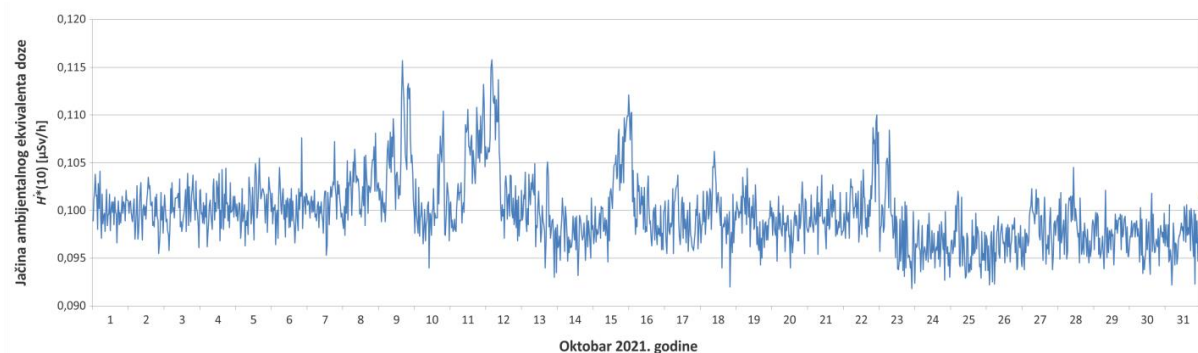
Rezultati merenja i diskusija

Na slici 1 prikazani su grafici srednjih dnevnih vrednosti izmerene jačine ambijentalnog ekvivalenta doze za 2021. i 2022. godinu. Na grafiku za 2022. godinu prikazane su i ukupne dnevne količine padavina izmerene automatskom meteorološkom stanicom. Na trećem grafiku prikazane su uporedno srednje mesečne vrednosti jačine ambijentalnog ekvivalenta doze za 2021. i 2022. godinu. Srednje dnevne vrednosti su u okviru prirodnog fona za datu lokaciju. Blaga povećanja su izazvana spiranjem radona prilikom obilnijih padavina.

Na slici 2 prikazane su vrednosti ambijentalnog ekvivalenta doze za mesec oktobar 2021. godine. Ovaj mesec je odabran zbog više pojava povećanja jačine doze izazvane spiranjem radona. Izmerene vrednosti na 30 sekundi su usrednjene na 48 tačaka po danu (30 minuta).



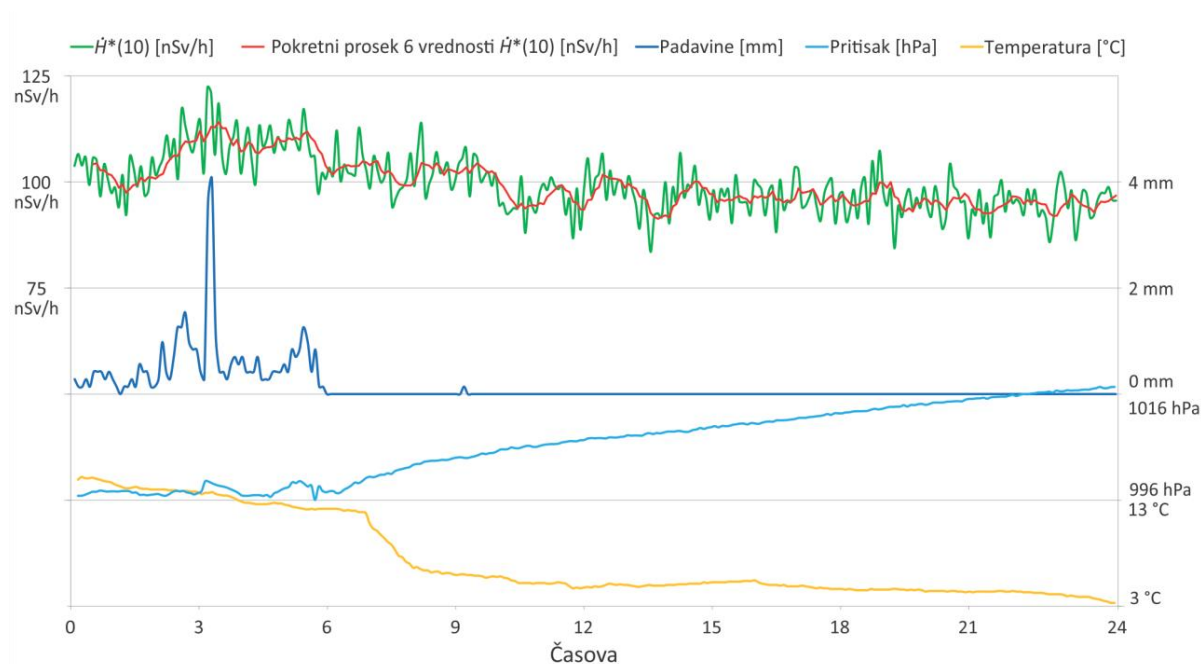
Slika 1. Grafički prikaz rezultata merenja



Slika 2. Vrednosti ambijentalnog ekvivalenta doze za mesec oktobar 2021. godine

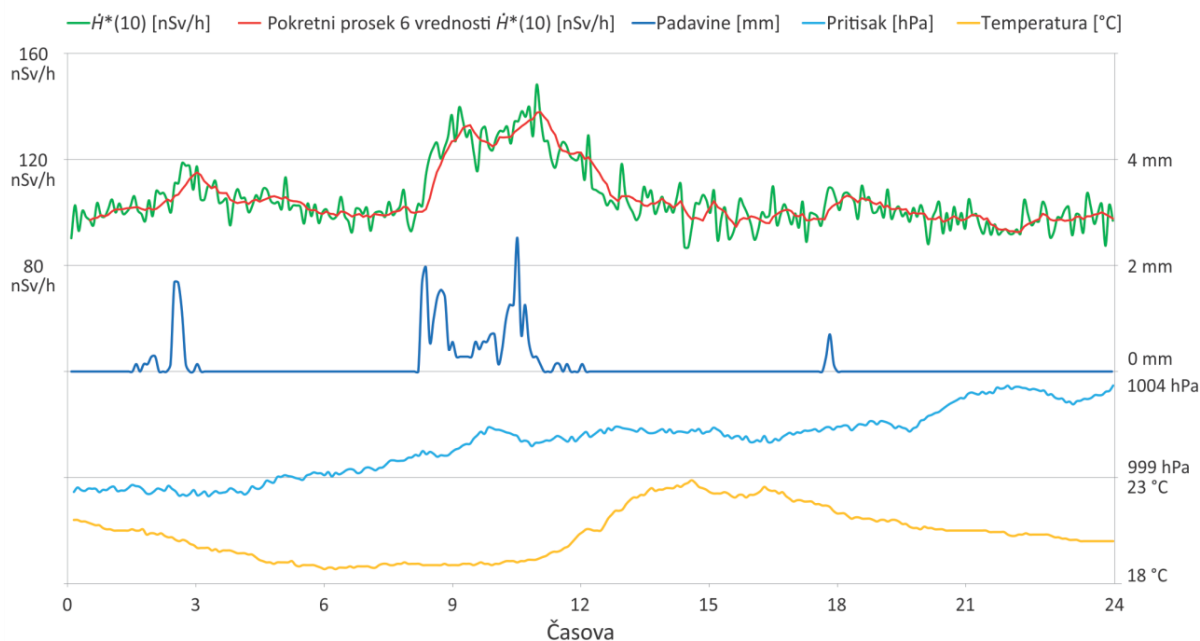
Na slici 3 prikazana su merenja sa svih dostupnih meteoroloških senzora i jačina ambijentalnog ekvivalenta doze za dan 17.12.2022. Ukupna količina padavina je bila 39,6 mm (l/m^2). Srednja vrednost jačine doze bila je 99 nSv/h (min. 83 nSv/h, maks. 122 nSv/h) i uočava se blagi porast jačine doze tokom trajanja padavina. Prikazani su pad

temperature i porast atmosferskog pritiska nakon prestanka padavina i postepeno opadanje jačine doze do uobičajenog opsega vrednosti nakon prestanka padavina.



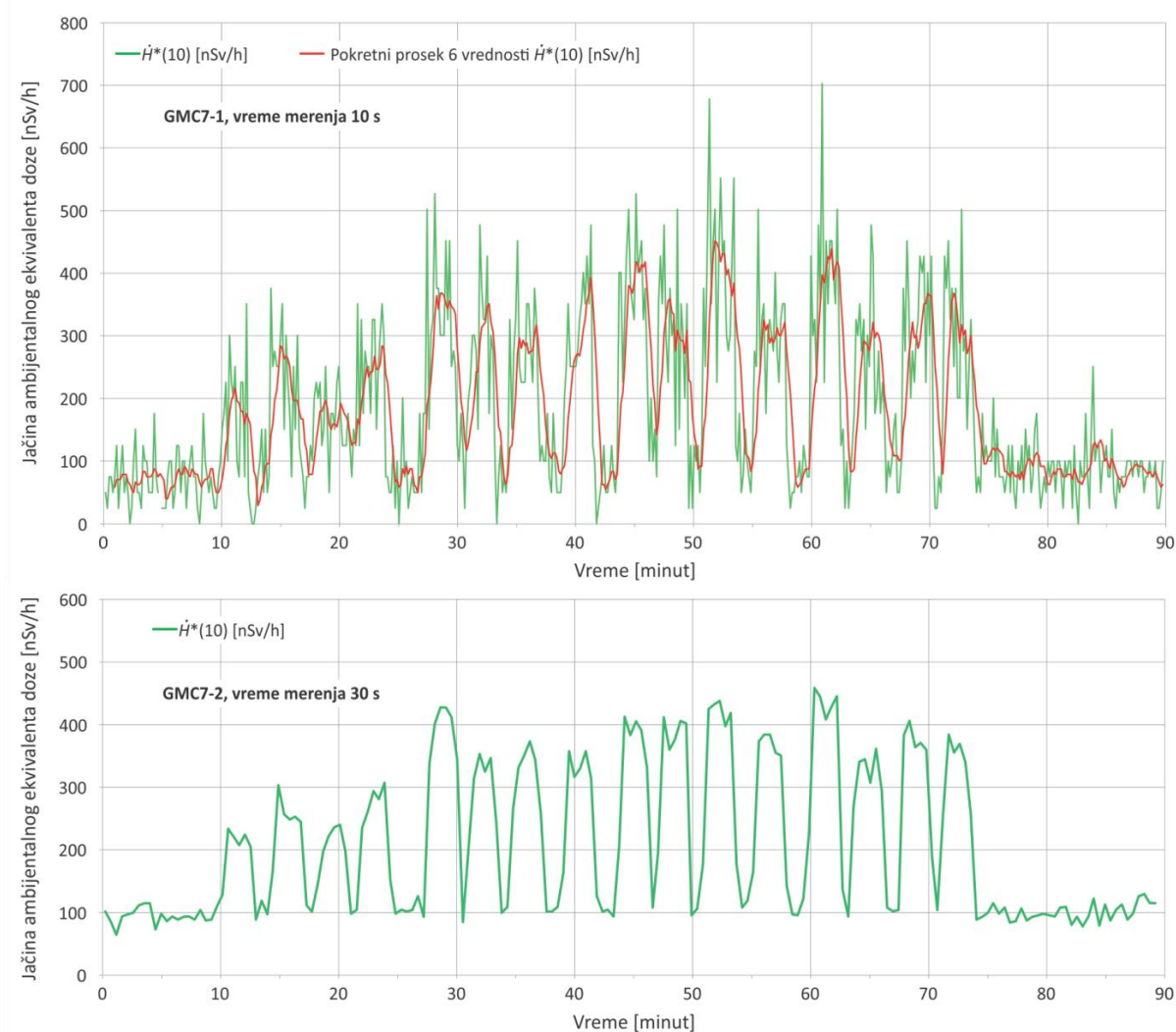
Slika 3. Grafički prikaz merenja za dan 17.12.2022.

Na slici 4 prikazana su merenja sa svih dostupnih meteoroloških senzora i jačina ambijentalnog ekvivalenta doze za dan 23.08.2022. Ukupna količina padavina bila je 32,7 mm (l/m^2). Srednja vrednost jačine doze bila je 105 nSv/h (min. 87 nSv/h, maks. 148 nSv/h) i uočavaju se tri porasta jačine doze tokom trajanja padavina. Povećanja jačine doze izazvana su padavinama tj. dominantno spiranjem radona i njegovih potomaka, ali postoje i slučajevi kada padavine ne prouzrokuju merljivo ili značajno povećanje jačine doze.



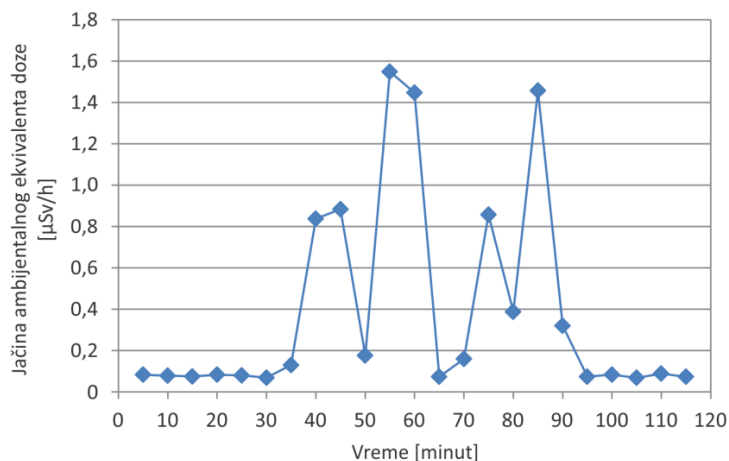
Slika 4. Grafički prikaz merenja za dan 23.08.2022.

Na slici 5 prikazan je izdvojen period tokom koga je primećen porast jačine ambijentalnog ekvivalenta doze tokom približno 63 minuta izazvan veštačkim izvorom. Na nepoznatom rastojanju (pretpostavka je da je od 200 m do 300 m) od merne stanice, sa više objekata koji su atenuirali zračenje, vršena je defektoskopija varova na toplovodu. Kako se na grafiku vidi, izvršeno je 16 ekspozicija u trajanju od 2 do 3 minuta. Prikazani su rezultati merenja sa sistema GMC7-1 čije je vreme merenja 10 s i pokretni proseki šest izmerenih vrednosti i sistema GMC7-2 čije je vreme merenja 30 s, bez usrednjavanja.



Slika 5. Grafički prikaz porasta jačine ambijentalnog ekvivalenta doze izazvane veštačkim izvorom (2021. godina)

Na slici 6 prikazan je izdvojen period tokom koga je primećen porast jačine ambijentalnog ekvivalenta doze tokom približno 60 minuta izazvan veštačkim izvorom 2016. godine kada je samo sistem GMC7-0 bio u upotrebi. Na rastojanju od približno 60 m od merne stanice, bez nadzemnih prepreka, vršena je defektoskopija varova na toplovodu u iskopanom kanalu. Kako se na grafiku vidi, jačina doze bila je do $1,6 \mu\text{Sv/h}$, a najverovatnije i veća, pošto sistem GMC7-0 ima postavljeno vreme merenja od 300 s, pa se gubi informacija o kratkotrajnim varijacijama. Jačina doze od $2,5 \mu\text{Sv/h}$ izmerena je prenosnim uređajem DMRZ-M15 sa lokacije gde je postavljena merna stanica. Jačina doze je niska zbog atenuacije zračenja u sloju zemljišta, pošto se radiografija vršila u kanalu. Radiografsko snimanje se obavljalo tokom više dana, a ovde je prikazan samo jedan dan sa najvišim izmerenim jačinama doze.



Slika 6. Grafički prikaz porasta jačine ambijentalnog ekvivalentna doze izazvane veštačkim izvorom (2016. godina)

Zaključak

Izmerene vrednosti ambijentalnog ekvivalenta doze u okviru su višegodišnjih srednjih vrednosti na lokaciji merne stanice. Mesečne tj. sezonske varijacije izazvane su različitim brojem spiranja radona iz atmosfere padavinama, pojavom snežnog pokrivača koji atenuira zračenje i smanjuje emanaciju radona iz tla na koju još utiču i vlažnost zemljišta, temperatura i vazdušni pritisak, kao i varijacijama intenziteta kosmičkog zračenja i drugim faktorima.

Sistem GMC7 se godinama koristi i unapređuje. Od puštanja u rad 2011. godine do danas, desio se samo jedan otkaz sistema. U prvim godinama eksploatacije došlo je do otkaza jedne elektronske komponente unutar sonde, izazvanog atmosferskim pražnjenjem u blizini merne stanice. Daljim usavršavanjem sistema i unapređenjem prenaponske zaštite, otkaza sistema nije bilo.

Ovakav sistem je dovoljno pouzdan da se može koristiti kao dodatna merna stanica u slučaju nuklearnog akcidenta ili nekontrolisane emisije radioaktivnih efluenata u životnu sredinu. Pored toga, može detektovati prisustvo i korišćenje izvora gama zračenja u okolini stanice, pa može otkriti i akcidente sa industrijskim izvorima zračenja ukoliko se dese u relativnoj blizini stanice.

Literatura

- [1] Izveštaj o izlaganju stanovništva jonizujućem zračenju u 2021. godini, Direktorat za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost republike Srbije, Beograd, jul 2022. <https://www.srbatom.gov.rs/srbatommm/monitoring-radioaktivnosti/>
- [2] Miloš Đaletić, Miloš Živanović, Miloško Kovačević, Uređaj za kontinualno merenje jačine doze gama zračenja u životnoj sredini, XXVI Simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Tara, 12-14. oktobar, 2011. ISBN 978-86-7306-105-4
- [3] Miloš Đaletić, Unapređenje softvera uređaja GMC7 za kontinualno merenje jačine doze gama zračenja u životnoj sredini, XXX Simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Divčibare, 2. - 4. oktobar, 2019. ISBN 978-86-7306-154-2
- [4] J. L. Burnett, I. W. Croudace and P. E. Warwick, Short-lived variations in the background gamma-radiation dose, *Journal of Radiological Protection*, Volume 30, Number 3, pp. 525-533, DOI: 10.1088/0952-4746/30/3/007

**MEASUREMENT RESULTS OF PRIVATE MEASURING STATION IN
POŽAREVAC FOR CONTINUOUS MEASUREMENT OF AMBIENT DOSE
EQUIVALENT FOR 2021 AND 2022**

Miloš ĐALETIĆ¹

- 1) *"VINČA" Institute of Nuclear Sciences - National Institute of the Republic of Serbia,
University of Belgrade, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade*

ABSTRACT

The paper presents the measurement results of an independent private measuring station in Požarevac for continuous measurement of the ambient dose equivalent for 2021 and 2022. The station is also equipped with an automatic meteorological station, which is important when interpreting the measurement results due to the impact of precipitation when radon and its daughters are washed from the atmosphere to the ground, which manifests itself as a short-term increase in dose rate. In particular, several interesting cases of increased dose rates caused by natural and artificial sources are presented. Such a private measuring station, which is adequately maintained and has the necessary infrastructure, can be useful as an additional indicator of the radiological situation, in addition to the official state system of timely announcement of a radiological accident, in cases of nuclear accidents and other situations where there is an uncontrolled emission of radioactive effluents into the environment.

ISPITIVANJE KONCENTRACIJE RADIONUKLIDA U SEDIMENTU PODMORJA CRNE GORENikola SVRKOTA¹, Ranko ZEKIĆ¹, Tomislav ANĐELIĆ¹1) *Centar za ekotoksikološka ispitivanja Podgorica, Crna Gora**Autor za korespondenciju: Nikola SVRKOTA, nikola.svrkota@ceti.me***SAŽETAK**

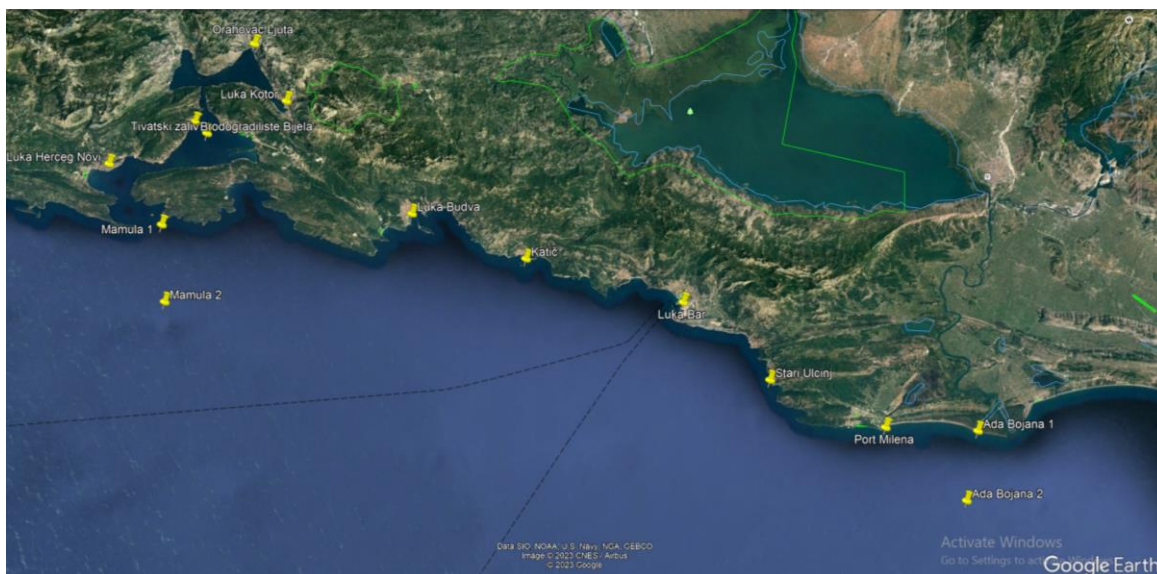
Prikazani su rezultati ispitivanja radionuklida u morskom sedimentu crnogorskog dijela Jadranskog mora. Sediment je uzorkovan na 14 lokacija i to od krajnjeg juga (Ada Bojana) do sjevernog dijela primorja (Mamula i Bokokotorski zaliv). Iz Bokokotorskog zaliva sediment je uzorkovan sa 5 lokacija, sa otvorenog mora – sjeverni dio sa 2 lokacije, sa otvorenog mora – centralni dio sa 3 lokacije i sa južnog dijela (otvoreno more) sa 4 lokacije. Dubina mora se kretala od 6 m (kod Budve) do 120 m (lokacija Mamula 2). Od četrnaest lokacija dvije su na rastojanju od preko 8 km od obale dok su ostale lokacije priobalne. Ispitivani su prirodni radionuklidi torijumskog i uranovog niza, K-40 kao i vještački radionuklid Cs-137. Za analize korišćen je HPGe detektor relativne efikasnosti 40 %, a uzorci su bili spremljeni u bočice zapremine 50 ml. Rezultati dobijeni u ovom istraživanju mogu poslužiti kao važni osnovni podaci za buduće studije i inicijative za praćenje u oblasti radioekoloških istraživanja.

Uvod

Ispitivanje koncentracije aktivnosti radionuklida u morskom sedimentu se ne vrši u okviru *Programa monitoringa morskog ekosistema*, a ne ispituje se ni u okviru *Programa monitoringa radionuklida Crne Gore*. Međutim, iako se ispitivanje koncentracije radionuklida ne vrši ni u jednom od pomenutih monitoring programa uzorci morskog sedimenta su uzeti i analizirani na sadržaj radioaktivnih elemenata. U ovom radu prikazane su specifične aktivnosti prirodnih radionuklida Pb-212, Pb-214, Bi-214, Th-232, K-40, Be-7 kao i vještački proizvedenog Cs-137 analiziranih u laboratoriji za zaštitu od zračenja Centra za ekotoksikološka ispitivanja. Dobijeni rezultati su upoređeni sa specifičnim koncentracijama prirodnih radionuklida datim za Jadransko more tokom prethodnih istraživanja [2, 3, 4].

Materijali i metode

Uzorkovanje je urađeno u periodu od 20.04 do 28.04.2023. godine, u skladu sa propisanim procedurama korišćenjem „grab sampler“ uzorkivača sa čamca. Uzeti su uzorci sedimenta sa 14 lokacija i to od krajnjeg juga (Ada Bojana) do sjevernog dijela primorja (Mamula i Bokokotorski zaliv). Iz Bokokotorskog zaliva sediment je uzorkovan sa 5 lokacija, sa otvorenog mora – sjeverni dio sa 2 lokacije, sa otvorenog mora – centralni dio sa 3 lokacije i sa južnog dijela (otvoreno more) sa 4 lokacije. Na Slici 1 prikazane su lokacije sa kojih su uzeti uzorci, dok je na Slici 2 prikazano na koji način je vršeno prikupljanje uzoraka.



Slika 1: Lokacije na kojima je vršeno uzorkovanje sedimenta.



Slika 2: Fotografije sa uzorkovanja: a) izvlačenje „grab sampler“; b) uzorkovani sediment.

U Tabeli 1 su prikazane lokacije, koordinate, dubine morskog dna sa kog je izvršeno uzorkovanje kao i udaljenost od obale.

Tabela 1: Osnovni podaci lokacija sa kojih su uzeti uzorci morskog sedimenta

R. br.	Lokacija	Koordinate N	Koordinate E	Dubina morskog dna (m)	Udaljenost od obale (km)
1	Luka HN	42.449880°	18.532650°	16	0
2	Brodogradilište Bijela	42.447400°	18.652330°	22	0
3	Mamula 1	42.377620°	18.555970°	80	2.2
4	Mamula 2	42.313280°	18.514800°	120	10
5	Orahovac Ljuta	42.485630°	18.763330°	21	0.2
6	Luka Kotor	42.425120°	18.765570°	15	0.2
7	Tivatski zaliv	42.432930°	18.658930°	37	2.2
8	Luka Budva	42.27940°	18.83883°	6	0
9	Katič	42.19375°	18.93828°	35	0.9
10	Luka Bar	42.090730°	19.085700°	13	0
11	Stari Ulcinj	41.990150°	19.135720°	23	0.7
12	Port Milena	41.901570°	19.234770°	8	0.4
13	Ada Bojana 1	41.858630°	19.333780°	11	0.9
14	Ada Bojana 2	41.806700°	19.280970°	57	9

Merenja koncentracije aktivnosti, nakon standardne pripreme uzoraka i njihovog pakovanja u bočice od 50 ml, urađeno je pomoću ORTEC HPGe spektrometrijskog sistema (40190 – relativne efikasnosti 40%, FWHM – 1,80 keV na 1,33 MeV, FWHM – 840 eV na 122 keV) [1]. Kalibracija spektrometara urađena je pomoću standarda (matriks silikonska smola koja sadrži miks različitih radionuklida). Matriks je smješten u posudu od 50 ml (Czech Metrology Institute, type CBSS2 ukupne aktivnosti od 40,95 kBq), koja je istih dimenzija kao i posuda za mjerenje uzoraka. Koncentracije specifične aktivnosti osušenog materijala određene su preko pikova gama energija od 295,2 i 351,9 keV (za Pb-214); 609,31 keV (za Bi-214); 238,6 keV (za Pb-212); 911,07 keV (za Ac-228); 1462 keV (za K-40), 661,6 keV (za Cs-137) i 477,6 keV (za Be-7). Za Be-7 urađena korekcija na vrijeme poluraspada na dan uzorkovanja. Mjerenja su izvršena u periodu koji je kraći od 35 dana od dana smještanja uzoraka u bočice, tako da nije uspostavljena radioaktivna ravnoteža između Ra-226 i njegovih produkata raspada. Mase uzoraka se kreću oko 50 g (od 45,8 g do 52 g), zbog činjenice da su dobijene male količine uzorkovanog materijala. Mjerenja na HPGe spektrometrijskom sistemu trajala su od 95730 s do 250380 s živog vremena.

Rezultati i diskusija

Analizirano je četrnaest uzoraka sedimenta sa morskog dna Jadranskog mora koje pripada Crnoj Gori. Analizirano je sedam radionuklida u sedimentima podmorja Crne Gore. Sediment iz Luke Herceg Novi ima najniže koncentracije svih ispitivanih radionuklida, dok je najopterećeniji bio uzorak Ada Bojana 1. Mjerna pozicija u Budvi ima najniže vrijednosti za Pb-212, Pb-214 i Bi-214 ali je tu nađena najveća koncentracija Be-7 – 22,8 Bq/kg.

Srednje vrijednosti Pb-212, Pb-214, Bi-214, Cs-137, Th-232, K-40, Be-7 iznose 26,7 Bq/kg, 25,2 Bq/kg, 25,39 Bq/kg, 5,1 Bq/kg, 30,3 Bq/kg, 492 Bq/kg i 14,5 Bq/kg respektivno. Rezultati uzoraka sedimenta iz područja priobalnih voda Slovenije, Hrvatske i Albanije, pokazali su da je K-40 bio u opsegu od 87 Bq/kg do 593 Bq/kg [2]. U Bokotorskom zalivu nađeni su minimum i maksimum koncentracije K-40 (od 306 Bq/kg iz luke HN pa do 700 Bq/kg u Tivatskom zalivu). Iz tabele 2 se vidi da je srednja vrijednost K-40 492 Bq/kg što je četiri puta veća vrijednosti od površinskog sedimenta uzorkovanog 2017. godine, takođe, u Bokotorskom zalivu (područje Kotora – Dobrota) [3]. Tada je izmjerena vrijednost za K-40 u sedimentu iznosila 123 Bq/kg. Međutim, u zemljištu sa primorja Crne Gore nađeno je da su minimalna, maksimalna i srednja vrijednost, kao i medijana koncentracije aktivnosti K-40 258 Bq/kg, 665 Bq/kg, 442 Bq/kg i 403 Bq/kg [3].

Maksimalna vrijednost za Cs-137 je, takođe, detektovana u Boki Kotorskoj, odnosno na lokaciji Brodogradilište Bijela i iznosi 9,5 Bq/kg. Najniže vrijednosti za cezijum su na krajnjem jugu – u Port Mileni (1,2 Bq/kg). Rezultati dobijeni za Cs-137, tokom ispitivanja u primorju Slovenije Hrvatske i Albanije [3], kreću se od 0,8 Bq/kg do 7,3 Bq/kg. Generalno, koncentracije aktivnosti K-40 i Cs-137 iz podmorja susjednih zemalja su u skladu sa rezultatima za K-40 i Cs-137 crnogorskog priobalnog područja.

Dobijene vrijednosti za Th-232 (od 20,5 Bq/kg do 57,3 Bq/kg) su na nivou vrijednosti dobijenih prilikom mjerenja radionuklida u sedimentu Sacca di Goro lagune koja se nalazi u južnom dijelu delte rijeke Po [4]. Dobijeni rezultati nalaze se u opsegu od 24 Bq/kg do 50 Bq/kg.

U Tabeli 2 prikazani su rezultati ispitivanja sa svih lokacija za pomenutih 7 radionuklida.

Tabela 2: Specifične koncentracije aktivnosti radionuklida iz morskog sedimenta

R. br.	Lokacija	Bq/kg						
		212Pb	214Pb	214Bi	137Cs	232Th	40K	7Be
1	Luka HN	19,9 ± 0,8	18,5 ± 0,9	20,5 ± 1,1	3,5 ± 0,4	20,5 ± 1,6	306 ± 11	15,4 ± 2,6
2	Brodogradilište Bijela	22,7 ± 0,9	20,1 ± 1,0	20,9 ± 1,1	9,5 ± 0,5	25,0 ± 2,0	541 ± 19	< 5,4
3	Mamula 1	25,0 ± 1,1	19,9 ± 1,1	20,7 ± 1,2	5,4 ± 0,5	27,6 ± 2,4	550 ± 20	< 6,4
4	Mamula 2	28,2 ± 1,1	24,4 ± 1,1	25,1 ± 1,2	5,3 ± 0,4	26,6 ± 2,0	549 ± 20	< 5,4
5	Orahovac Ljuta	23,9 ± 1,1	34,9 ± 1,5	32,0 ± 1,5	8,7 ± 0,6	31,2 ± 2,2	480 ± 18	< 6,2
6	Luka Kotor	22,1 ± 1,1	21,3 ± 1,2	20,9 ± 1,3	7,5 ± 0,6	25,7 ± 2,6	547 ± 20	< 7,0
7	Tivatski zaliv	26,9 ± 1,1	21,2 ± 1,0	20,5 ± 1,1	6,3 ± 0,5	33,2 ± 2,2	700 ± 24	< 6,0
8	Luka Budva	18,4 ± 0,9	18,6 ± 1,1	18,8 ± 1,2	3,2 ± 0,5	21,1 ± 2,1	352 ± 14	22,8 ± 3,1
9	Katič	22,8 ± 0,9	22,6 ± 1,0	22,4 ± 1,1	5,5 ± 0,4	27,5 ± 1,8	517 ± 18	11,2 ± 2,3
10	Luka Bar	28,2 ± 1,0	25,2 ± 1,0	25,2 ± 1,1	1,7 ± 0,3	32,9 ± 1,8	488 ± 17	7,4 ± 2,2
11	Stari Ulcinj	24,3 ± 1,0	21,0 ± 1,0	20,0 ± 1,1	4,3 ± 0,4	25,5 ± 2,0	460 ± 17	< 6,2
12	Port Milena	30,8 ± 1,2	30,4 ± 1,4	28,2 ± 1,4	1,2 ± 0,4	41,2 ± 2,6	407 ± 16	< 6,8
13	Ada Bojana 1	45,9 ± 1,6	51,1 ± 1,8	52,9 ± 1,9	1,9 ± 0,4	57,3 ± 2,5	381 ± 14	21,0 ± 2,4
14	Ada Bojana 2	34,6 ± 1,4	24,4 ± 1,3	26,7 ± 1,4	6,8 ± 0,6	28,6 ± 2,8	616 ± 23	9,4 ± 3,3
	Minimum	18,4	18,5	18,8	1,2	20,5	306	7,4
	Maksimum	45,9	51,1	52,9	9,5	57,3	700	22,8
	Srednja vr.	26,7	25,2	25,3	5,1	30,3	492	14,5
	Medijana	24,6	21,9	21,7	5,4	27,6	503	13,3

ZAKLJUČAK

U radu su prikazana prva, početna istraživanja radionuklida u morskome sedimentu duž cijele crnogorske obale.

Najniže vrijednosti za specifične koncentracije aktivnosti su nađene u sedimentima luka Herceg Novi i luka Budva, dok su najveće vrijednosti detektovane na lokaciji Ada Bojana 1.

Buduća istraživanja treba da se detaljnije fokusiraju na lokacije Ada Bojana 1 i Brodogradilište Bijela koje pokazuju male varijacije u odnosu na druge lokacije.

Procijenjene vrijednosti u ovom radu mogu se koristiti kao osnova za buduća istraživanja, a podaci mogu biti korisni za radiološko mapiranje područja istraživanja.

Literatura

- [1] ORTEC: Gamma-vision 32, Gamma-ray spectrum analysis NCA emulator for Microsoft, 2003.
- [2] Branko Petrinc, Marko Štok, Zdenko Franić, Borut Smodiš i Dijana Pavičić-Hamer. Radionuclides in the Adriatic sea and related dose-rate assessment for marine biota, Radiation Protection Dosimetry (2013), Vol. 154, No. 3, pp. 320 –330
- [3] N. M. Antovića, I. Antović, N. Svrkota K-40 levels in the South Adriatic Sea environment (Montenegro), The Proceedings of the 14th International Congress of the International Radiation Protection Association, ISBN 978-0-9989666-4-9, 2017.
- [4] IChiara T, Antonietta R, Linda B, Paolo B, Carmela V. Evaluation of The Radionuclide Concentration in The Sediments of The Sacca Di Goro (Italy). Environ Anal Eco stud. 4(5). EAES.000598. 2019. DOI: 10.31031/EAES.2019.04.000598

CONCENTRATION OF RADIONUCLIDES IN THE SUBMARINE SEDIMENT OF MONTENEGRO

Nikola SVRKOTA¹, Ranko ZEKIĆ¹, Tomislav ANĐELIĆ¹

1) *Center for ecotoxicological research Podgorica, Montenegro*

ABSTRACT

The results of radionuclide testing in the marine sediment of the Montenegrin part of the Adriatic Sea are presented. The sediment was sampled at 14 locations, ranging from the southernmost point (Ada Bojana) to the northern coastal area (Mamula and Boka Kotorska Bay). From Boka Kotorska Bay, sediment samples were taken at 5 locations, from the open sea - northern part at 2 locations, from the open sea - central part at 3 locations, and from the southern part (open sea) at 4 locations. The sea depth varied from 6 m (near Budva) to 120 m (Mamula 2). Out of the fourteen locations, two were more than 8 km away from the coast, while the rest were near the coastline. The investigated natural radionuclides included thorium and uranium series, as well as ⁴⁰K and the artificial radionuclide ¹³⁷Cs. High Purity Germanium (HPGe) detector with a relative efficiency of 40 % was used for analysis, and the samples were stored in 50 ml bottles. The results obtained in this research can serve as important basic data for future studies and initiatives in the field of radioecological research.

SADRŽAJ RADIONUKLIDA I DOZA INGESTIJOM ZA ČAJEVE SPRAVLJENE OD LEKOVITOG BILJA SA TERITORIJE REPUBLIKE SRBIJE

Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹, Marija LUČIĆ², Milica RAJAČIĆ¹, Ivana VUKANAC¹,
Nataša SARAP¹, Marija JANKOVIĆ¹

- 1) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke Vinča, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Beograd, Srbija*
- 2) *Univerzitet u Kragujevcu, Fakultet medicinskih nauka, Integrisane akademske studije farmacije*

Autor za korespondenciju: Jelena KRNETA NIKOLIĆ, jnikolic@vinca.rs

SAŽETAK

U radu su prikazani rezultati ispitivanja sadržaja prirodnih radionuklida i ¹³⁷Cs u 15 uzoraka lekovitog bilja sa teritorije Republike Srbije. Uzorci su nabavljeni u Institutu za istraživanje lekovitog bilja "Dr Josif Pančić" u Beogradu. Izabrani su tako da sadrže različite delove (koren, stablo ili cvet) istih biljnih vrsta da bi se uočila eventualna različita distribucija radionuklida u različitim delovima biljke. Prirodni radionuklidi ²³⁸U, ²³⁵U i ²¹⁰Pb su bili ispod MDC u svim uzorcima, ²²⁶Ra je detektovan u 3, ¹³⁷Cs u 5 uzoraka a ²³²Th u jednom uzorku. Na osnovu dobijenih rezultata, izračunata je doza ingestijom koju bi primila osoba koja pije čaj spravljen od ispitivanog lekovitog bilja, pod pretpostavkom da popije 0,2 L čaja dnevno. Ustanovljeno je da se doza ingestijom kreće u rasponu od 13,8 μSv do 32,3 μSv za ¹³⁷Cs i 79,7 μSv za ²²⁶Ra, dakle daleko manje od doze od 0,1 mSv/god propisane Pravilnikom Sl. glasnik 36/18.

Uvod

Transfer radionuklida iz životne okoline na čoveka može se dogoditi putem lanca ishrane. Prenos radionuklida obavlja se preko kontaminiranih biljaka i životinja, najčešće sa kontaminiranih delova zemlje, kravljeg mleka, različitih vrsta jestivih trava i trava koje se koriste kao začinske biljke ili čajeva i drugih biljaka. [1]. Iz tog razloga, propisano je da se proverava sadržaj radionuklida u hrani za ljude i stoku. Pravilnikom o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet (Sl. glasnik 36/18), propisana je granična vrednost efektivne doze za hranu od 0,1 mSv/god[2].

U ovom radu analizirani su uzorci lekovitog bilja sa teritorije Republike Srbije koji se koriste za spravljanje čajeva. S obzirom na to da se lekovito bilje sakuplja sa uglavnom neperturbovanog zemljišta, sa šumskih i livadskih lokacija, postoji mogućnost da je došlo do transfera radionuklida iz zemljišta u biljku i da samim tim radionuklidi ulaze u lanac ishrane čoveka.

Rezultati

Ukupno 15 uzoraka čaja je kupljeno u Institutu za istraživanje lekovitog bilja „Dr, Josif Pančić“ u Beogradu i doneto u Laboratoriju za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine. Izabrani su tako da sadrže različite delove (koren, stablo ili cvet) istih biljnih vrsta da bi se uočila eventualna različita distribucija radionuklida u različitim delovima biljke. S obzirom na to da su u originalnom pakovanju čajevi već usitnjeni i osušeni, nije bilo potrebe za dodatnom

pripremom uzoraka. Uzorci čajeva su odmereni u cilindrične posude zapremine 125 ml, sa šlifovanim poklopcem. Masa uzoraka u geometriji merenja je bila reda veličine 10 - 20 g.

Gama spektrometrijska merenja su izvršena na dva High Purity Germanium (HPGe) detektora relativne efikasnosti 20 % i 50 %, proizvođača Canberra. Rezolucija detektora je 1,8 keV na energiji ^{60}Co od 1332 keV. Kalibracija efikasnosti detektora je izvršena laboratorijskim referentnim radioaktivnim materijalom, matriksa trave, u cilindričnoj geometriji zapremine 125 ml, dobijenim pomoću sertifikovanog radioaktivnog rastvora proizvođača Czech Metrology Institute, Praha, 1035-Se-40844-17, tip ERX, ukupne aktivnosti 79,89 kBq na dan 22.12.2017. godine. Radionuklidi sadržani u ovom sertifikovanom radioaktivnom rastvoru su ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{88}Y , ^{51}Cr , ^{85}Sr , ^{137}Cs i ^{210}Pb i njihova aktivnost je sledljiva do BIPM (Bureau International des Poids et Mesures). Pravljenje laboratorijskog referentnog radioaktivnog materijala je izvedeno u skladu sa međunarodnim preporukama [3].

Koncentracija aktivnosti za pojedinačne radionuklide je računata po poznatoj formuli:

$$(1) \quad A = \frac{N/t}{P_\gamma \varepsilon m}$$

gde je N broj detektovanih fotona u foto piksu, t je vreme merenja, P_γ je verovatnoća emisije fotona, ε je efikasnost detekcije i m je masa uzorka.

Budžet merne nesigurnosti je obuhvatao doprinos statistike brojanja detektovanih fotona u foto piksu, doprinos kalibracije efikasnosti, mernu nesigurnost faktora za korekciju na koincidentno sumiranje i mernu nesigurnost merenja mase uzorka. Merna nesigurnost kalibracije efikasnosti je definisana kao kombinovana relativna merna nesigurnost aktivnosti standardnog rastvora, merenja zapremine standardnog rastvora i mase laboratorijskog referentnog radioaktivnog materijala i faktora za korekciju na koincidentno sumiranje. Svi doprinosi mernoj nesigurnosti rezultata su uvršćeni u jednačinu (2) čime je dobijena kombinovana relativna merna nesigurnost sa faktorom pokrivanja 2:

$$(2) \quad u = 2 \sqrt{\sum_i u_i^2}$$

gde je u merna nesigurnost dobijene vrednosti a u_i su pojedinačni doprinosi.

U Tabeli 1 prikazani su rezultati merenja uzoraka čajeva, konkretno, koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K , ^{238}U , ^{235}U i ^{210}Pb i veštačkog radionuklida ^{137}Cs , izražena u Bq/kg.

Diskusija i zaključak

Kako se može videti iz Tabele 1, koncentracija aktivnosti ^{226}Ra je u većini uzoraka bila ispod minimalne detektabilne koncentracije (MDC). koja je iznosila od 3 Bq/kg do 15 Bq/kg. Vrednosti iznad MDC su detektovane u uzorku čaja od korena koprive, matičnjaka i rtanjskog čaja, gde je najviša vrednost od 78 Bq/kg zabeležena kod matičnjaka. S obzirom na to da se ovaj radionuklid prirodno nalazi u zemljištu u koncentracijama reda veličine 100 Bq/kg, kao i da je po ponašanju u hemijskim interakcijama radijum sličan kalcijumu, očekivano je prisustvo manje količine ovog radionuklida u planinskim biljkama koje rastu na neperturbovanom zemljištu, naročito u korenovom sistemu [4]. Takođe, druga istraživanja su pokazala korelaciju povišenog prisustva ovog radionuklida sa povišenim prisustvom drugih

radionuklida, kao što su ^{238}U i ^{232}Th [5]. To u ovom istraživanju nije slučaj, jer je u slučaju prisustva radijuma ^{226}Ra izmerena koncentracija aktivnosti ^{238}U i ^{232}Th bila ispod MDC.

Tabela 3: Rezultati gamaspektrometrijskih merenja uzoraka čajeva

Vrsta	Aktivnost [Bq/kg]						
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{137}Cs	^{238}U	^{235}U	^{210}Pb
List borovnice	< 10	<8	310 ± 40	6,8 ± 1,4	<50	<3	<90
Plod borovnice	< 3	<2	200 ± 17	1,4 ± 0,4	<11	<0,1	<20
Koren koprive	31 ± 3	<5	560 ± 50	<0,6	<31	<2	<20
List koprive	< 8	<8	1200 ± 90	<0,8	<40	<2	<74
Plod koprive	< 6	<6	630 ± 50	<0,5	<27	<2	<50
Koren čička	< 8	<8	660 ± 60	<0,7	<36	<3	<14
List čička	< 15	<10	1730 ± 140	<3	<60	<4	<45
Koren maslačka	< 4	<2	520 ± 40	<0,3	<20	<0,9	<30
List maslačka	< 7	<4	930 ± 70	<0,7	<30	<2	<60
Koren jagorčevine	< 7	<5	470 ± 40	6,5 ± 1,1	<30	<2	<20
Cvet jagorčevine	< 7	<5	680 ± 80	4 ± 1	<30	<2	<20
Majčina dušica	< 7	8 ± 3	420 ± 40	2,9 ± 0,7	<30	<2	<20
Rtanjski čaj	52 ± 4	<7	240 ± 30	<2	<41	<3	<31
Matičnjak	78 ± 6	<7	640 ± 60	<0,9	<40	<3	<80

Koncentracije aktivnosti ^{232}Th u svim uzorcima su bile ispod MDC, koja je iznosila do 10 Bq/kg. Ovaj radionuklid nije detektovan ni u jednom uzorku osim u uzorku čaja od majčine dušice, i to u niskoj koncentraciji. S obzirom na to da je torijum element male rastvorljivosti i da je njegova mobilnost u zemljištu mala, te da on nije esencijalni nutrijent za biljku, jasno je da se ne očekuje detekcija ovog radionuklida u uzorcima čaja.

U izmerenim uzorcima čaja, koncentracija aktivnosti radionuklida ^{40}K se kretala u rasponu od 200 Bq/kg do 1730 Bq/kg. Najviša vrednost zabeležena je kod uzorka korena maslačka, dok je najnižu vrednost dao koren koprive. Kalijum je esencijalni nutrijent potreban biljkama, tako da se prisustvo ^{40}K u uzorcima očekuje. Ove koncentracije aktivnosti ^{40}K su u skladu sa koncentracijama koje se uobičajeno nalaze u biljkama na prostorima Republike Srbije [6] i u skladu sa rezultatima dobijenim u drugim istraživanjima [7, 8].

Koncentracije aktivnosti prirodnih radionuklida ^{238}U , ^{235}U i ^{210}Pb su bile ispod MDC u svim merenim uzorcima. Minimalna detektabilna koncentracija za ^{238}U se kretala u rasponu od 11 Bq/kg do 60 Bq/kg, za ^{235}U u rasponu od 0,1 Bq/kg do 4 Bq/kg, dok je za ^{210}Pb MDC bila u rasponu od 14 Bq/kg do 90 Bq/kg. Relativno visoke vrednosti MDC za ove radionuklide su posledica male mase uzoraka i male efikasnosti detektora na niskom energijama (46 keV, 63 keV i 186 keV za ^{210}Pb , ^{238}U i ^{235}U , respektivno).

Najinteresantniji radionuklid za posmatranje u uzorcima čaja bio je ^{137}Cs . Njegovo prisustvo u prirodi je posledica atmosferskih nuklearnih proba izvođenih od 1950. do 1980. godine, rada nuklearnih elektrana i, u poslednje vreme, posledica nuklearnog akcidenta u Černobilju. Šumsko zemljište i drugi tipovi neobrađivog zemljišta mogu biti efikasni rezervoari ^{137}Cs , koji u takvom zemljištu ostaje mnogo duže nego u obrađivom zemljištu. S obzirom na to da se ^{137}Cs u hemijskim interakcijama ponaša isto kao kalijum (oba imaju valentno stanje +1), postoji veća verovatnoća ulaska ovog radionuklida u biljku a zatim i u lanac ishrane [9, 10]. Prisustvo ovog proizvedenog radionuklida je detektovano u 5 uzoraka, dok je u ostalim njegova koncentracija bila ispod MDC. Minimalna detektabilna koncentracija za ^{137}Cs bila je u rasponu od 0,3 Bq/kg do 3 Bq/kg. U uzorcima u kojima je detektovano prisustvo ^{137}Cs koncentracije aktivnosti su se kretale od 1,4 Bq/kg za koren koprive, do 6,8 Bq/kg za plod borovnice. Na osnovu Pravilnika o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i

drugoj robi koja se stavlja u promet (Službeni glasnik Republike Srbije 36/18), Član 12, Stav 2, granica sadržaja ^{137}Cs u lekovitom bilju i čajevima je 150 Bq/kg. Kako se vidi iz tabele 1, svi ispitivani uzorci zadovoljavaju kriterijum propisan ovim pravilnikom[2].

Na osnovu ovih rezultata može se proceniti rizik po zdravlje čoveka koji konzumira čaj napravljen od lekovitog bilja u kojem je detektovano prisustvo ovog radionuklida. Ova procena se vrši izračunavanjem individualne godišnje efektivne doze ingestijom – E_{ing} . Za odraslu osobu, ova veličina se izračunava korišćenjem jednačine 3[11].

$$(3) \quad E_{ing} = H \cdot A \cdot DF_{ing}$$

U ovoj jednačini H predstavlja godišnju količinu čaja koja se popije (u kg po osobi), A je koncentracija aktivnosti radionuklida, a DF_{ing} je dozni konverzioni faktor za ingestiju, za ^{137}Cs definisan kao doza koju primi odrasla osoba jediničnim unosom i iznosi $1.3 \cdot 10^{-8}$ Sv/Bq [12]. Da bismo izračunali ovu vrednost, potrebno je proceniti godišnji unos čaja za odraslu osobu. Ako pretpostavimo da osoba može da unese 2 dl (jednu šolju čaja) dnevno, to znači da je ukupna količina popijenog čaja u toku godine 0,2 L·365 dana, odnosno 73 L čaja godišnje. Ako uzmemo u obzir da je za pripremu jedne šolje čaja u proseku potrebna jedna supena kašika (6 g-10 g suve materije), dolazimo do količine od maksimalno 3,65 kg lekovitog bilja godišnje. Tada jednačina postaje:

$$(4) \quad E_{ing} = 3,65 \text{ kg} \cdot A \cdot 1.3 \cdot 10^{-8} \text{ Sv/Bq} = 3,65 \text{ kg} \cdot A \cdot 1.3 \cdot 10^{-2} \mu\text{Sv/Bq}$$

Табела 2. Procena doze ingestijom koja potiče od konzumiranja čaja od lekovitog bilja u kojem je detektovan ^{137}Cs

Vrsta	Aktivnost ^{137}Cs [Bq/kg]	E_{ing} [μSv]
List borovnice	6.8 ± 1.4	32,3
Plod borovnice	1.4 ± 0.4	6,64
Koren jagorčevine	6.5 ± 1.1	30,8
Cvet jagorčevine	4 ± 1	19,0
Majčina dušica	2.9 ± 0.7	13,8

Dakle, individualna godišnja efektivna doza ingestijom čaja se kreće od približno 7 μSv do 32 μSv po godini, što je daleko ispod propisane granice od 0,1 mSv po godini. Iz ovoga zaključujemo da konzumiranje čajeva napravljenih od lekovitog bilja koje sadrži ^{137}Cs ne predstavlja rizik po zdravlje čoveka.

Na osnovu Pravilnika o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet (Službeni glasnik Republike Srbije 36/18), Prilog 1, dozni konverzioni faktor za ingestiju za ^{226}Ra je $2,8 \cdot 10^{-7}$ Sv/Bq. Na osnovu ovoga i dobijenih koncentracija radijuma u pojedinačnim uzorcima čajeva, uz procenu da se godišnje popije 73 L čaja napravljenog od ukupno 3,65 kg lekovitog bilja, dolazimo do zaključka da bi maksimalna doza ingestijom za ^{226}Ra bila 79,7 μSv po godini, što je manje od propisanih 0,1 mSv po godini. S obzirom na to da drugi radionuklidi (^{238}U , ^{235}U i ^{210}Pb) nisu detektovani u uzorcima ili da je njihovo prisustvo u niskoj koncentraciji detektovano samo u jednom uzorku (^{232}Th), za njih nije rađena procena doze ingestijom.

Merenja koncentracije aktivnosti svih radionuklida ispitanih u ovom istraživanju pokazala su rezultate koji su u skladu sa granicama propisanim u Pravilniku o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima

опште upotrebe, грађевинском материјалу и другој роби која се ставља у промет (Службени гласник Републике Србије 36/18).

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/ 200017).

Literatura

- [1] M. Rakić, M. Karaman, S. Forkapić, J. Hansman, M. Kebert, K. Bikit, D. Mrdja. Radionuclides in some edible and medicinal macrofungal species from Tara Mountain, Serbia, *Environmental Science and Pollution Research* Vol.21, 2014, 11283-92.
- [2] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, грађевинском материјалу и другој роби која се ставља у промет, Sl. gl. RS 36/18, 2018.
- [3] IAEA, Measurement of Radionuclides in Food and Environment, A Guidebook. Technical Reports Series No. 295, IAEA, Vienna, 1989.
- [4] V.G. Escobar, F.V. Tome, J.C. Lozano. Procedures for the determination of ²²²Rn exhalation and effective ²²⁶Ra activity in soil samples, *Applied radiation and Isotopes* Vol.50 No.6, 1999, 1039-1047.
- [5] R.B. Rodríguez, F.V. Tomé, J.C. Lozano, M.P. Fernández. Transfer of ²³⁸U, ²³⁰Th, ²²⁶Ra, and ²¹⁰Pb from soils to tree and shrub species in a Mediterranean area, *Applied Radiation and Isotopes* Vol.68 No.6, 2010, 1154-1159.
- [6] <https://www.srbatom.gov.rs/srbatommm/monitoring-radioaktivnosti/>
- [7] Amin RM, Ahmed F. Estimation of annual effective dose to the adult Egyptian population due to natural radioactive elements in ingestion of spices. *Pelagia Research Library Advances in Applied Science Research*. 2013; 4(5):350-4.
- [8] H. Aziz. Determine the concentration of K40 potassium in tea samples using sodium iodide reagent, *Journal Of Education and Science* Vol.28 No.1, 2019, 121-131.
- [9] N. Sarap, D. Todorovic, M. Jankovic, J. Nikolic, M. Rajacic, IV International Symposium „Agrosym2013“, 10.7251/AGSY1303781S.
- [10] A. Abbasi, F. Mirekhtari. ¹³⁷Cs and ⁴⁰K concentration ratios (CRs) in annual and perennial plants in the Caspian coast, *Marine pollution bulletin* Vol.146, 2019, 671-677.
- [11] International Atomic Energy Agency (IAEA), Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive substances to the Environment, Safety Reports Series No. 19, IAEA, Vienna, 2001.
- [12] International Atomic Energy Agency (IAEA), (1999). Assessment of doses to the public from ingested radionuclides, Safety Reports Series No. 14, IAEA, Vienna

RADIONUCLIDE CONTENT AND INGESTION DOSE FOR TEA MADE FROM MEDICINAL HERBES FROM THE TERRITORY OF REPUBLIC OF SERBIA

Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹, Marija LUČIĆ², Milica RAJAČIĆ¹, Ivana VUKANAC¹,
Nataša SARAP¹, Marija JANKOVIĆ¹

- 1) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke Vinča, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Beograd, Srbija*
- 2) *Univerzitet u Kragujevcu, Fakultet medicinskih nauka, Integrisane akademske studije farmacije*

ABSTRACT

This manuscript presents the results of measurement of naturally occurring radionuclides and ¹³⁷Cs in 15 samples of medicinal herbes originating at the territory of Republic of Serbia. The samples were procured from the Institute for research of medicinal herbes “Dr Josif Pančić” in Belgrade. They were chosen so that they contain various parts (roots, stem or flower) of the same plant in order to assess different distribution of the radionuclides in various plant parts. The activity concentration of naturally occurring radionuclides ²³⁸U, ²³⁵U i ²¹⁰Pb was below the minimal detectable concentration (MDC), ²²⁶Ra was detected in 3, ¹³⁷Cs in 5 and ²³²Th in one sample. Based on the obtained values, ingestion dose was calculated taking into account that a person drinks 0.2L of tea per day. It is found that the ingestion dose is in the range of 13,8 μSv to 32,3 μSv for ¹³⁷Cs and 79,7 μSv for ²²⁶Ra. This is well below the limit of 0.1 mSv/year recommended by the Rulebook Official Gasette 36/18.

ANALIZA FRAKTALNE PRIRODE SPECIFIČNE AKTIVNOSTI BERILIJUMA-7 U PRIZEMNOM SLOJU ATMOSFERE MERENE U BEOGRADU, SRBIJA (1991-2022)

Darko SARVAN¹, Đorđe STRATIMIROVIĆ², Milica RAJAČIĆ³,
Jelena KRNETA NIKOLIĆ³, Ivana VUKANAC³, Jelena AJTIĆ¹

- 1) *Univerzitet u Beogradu, Fakultet veterinarske medicine, Beograd*
- 2) *Univerzitet u Beogradu, Stomatološki fakultet, Beograd*
- 3) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd*

Autor za korespondenciju: Darko SARVAN, darko.sarvan@vet.bg.ac.rs

SAŽETAK

U ovom istraživanju analizirana je fraktalna priroda vremenske serije specifične aktivnosti berilijuma-7 u površinskom sloju atmosfere u Beogradu, Srbija, sa ciljem da se prouči dinamika njene samosličnosti, a s posebnim fokusom na godišnji ciklus. Korišćene su metode vejevlet analize i vremenski zavisne detrendovane pokretne srednje vrednosti radi identifikacije karakterističnih intervala i procene Hurstovih eksponenata.

Podaci o specifičnoj aktivnosti berilijuma-7 preuzeti su iz GRAMON baze podataka, za lokaciju Beograd (44,88 °N; 20,58 °E; 95 m nadmorske visine). Vremenska serija obuhvata 362 mesečna merenja od 1991. do 2022. godine.

Rezultati ukazuju na postojanje izraženog godišnjeg ciklusa u ovoj vremenskoj seriji. Takođe, promene u lokalnom Hurstovom eksponentu otkrivaju varijacije u ponašanju vremenske serije – ona iz umereno korelisanog prelazi u izrazito antikorelisan proces između 2015. i 2020. godine.

Ovaj rezultat biće predmet šire analize koja uključuje i druge lokacije iz GRAMON baze podataka.

Uvod

Dugoročna merenja atmosferskih parametara pružaju dragocene informacije o promenama u atmosferi. Berilijum-7 (Be-7), prirodni radionuklid čiji je period poluraspada 53,28 dana, koristi se kao obeleživač kretanja vazдушnih masa. Njegova specifična aktivnost može posredno pružiti informacije o drugim procesima, kao što su količina dospelog kosmičkog zračenja [1], formiranje ozona u stratosferi [2], razmena vazдушnih masa između stratosfere i troposfere [3] ili učestalost padavina [4].

U našem istraživanju analizirana je fraktalna priroda specifične aktivnosti Be-7 u prizemnom sloju atmosfere u Beogradu, Srbija, tokom 32-godišnjeg perioda. Sa 362 podatka o srednjim mesečnim vrednostima, ovaj skup omogućava proučavanje dugodometnih korelacija u ponašanju specifične aktivnosti Be-7. Ove analize predstavljaju prvi takav rad za lokaciju Beograd.

Materijal i metode

U našem istraživanju, koristili smo specifične aktivnosti Be-7 u Beogradu, Srbija, od februara 1991. do decembra 2022. godine. Ovi podaci su deo GRAMON (Ground Air Radioactivity Monitoring) baze podataka koja obuhvata višegodišnja merenja specifične aktivnosti

pojedinih radionuklida, uključujući i Be-7, u prizemnom sloju vazduha na sedam lokacija zapadnog regiona Balkanskog poluostrva. Za našu analizu, koristili smo podatke sa lokacije u Beogradu (44,88 °N; 20,58 °E; 95 m nadmorske visine), koji obuhvataju 362 srednje mesečne vrednosti specifične aktivnosti Be-7.

Koristili smo metodu vejevlet transformacija (Wavelet Transform; WT) za indentifikaciju karakterističnih intervala, kao i time-dependent Detrended Moving Average (tdDMA) metodu za proučavanje dinamike lokalnog Hurstovog eksponenta, s ciljem istraživanja fraktalnih karakteristika vremenske serije.

Vejevlet analiza vremenskih serija

Vejevlet analiza je često korišćena tehnika za proučavanje vremenskih serija kompleksnih sistema koji pokazuju nestacionarno ponašanje na različitim vremenskim skalama [5]. Za razliku od Furijeovog spektra snage, vejevlet spektri su glatki za nestacionarne serije [6,7], što omogućava analizu karakterističnih vremena ili intervala unutar vremenskih serija.

U istraživanju smo dobili vejevlet spektar snage koristeći set Morlet vejevleta. Vrednosti dobijenog spektra snage signala rastu unutar intervala koji obuhvataju karakteristična vremena periodičnog ponašanja signala. Međutim, ova metoda ima svoja ograničenja, budući da vejevlet koristi informacije iz susednih tačaka u određenom trenutku u vremenu, zbog čega postaje manje tačna kako vejevlet doseže krajeve vremenske serije (ovaj deo se naziva konus uticaja). Kako bismo dobili statistički relevantne rezultate koji uzimaju u obzir dužinu analizirane vremenske serije, opseg vremenskih skala koji se koristi pri računanju vejevlet spektra ograničen je konusom uticaja [8].

Analiza dinamike lokalnog Hurstovog eksponenta

U ovom istraživanju takođe smo primenili tdDMA algoritam [9] koji procenjuje samosličnost i dugodometnu korelaciju putem generalizovane varijanse oko pokretne srednje vrednosti. Generalizovana varijansa oko pokretne srednje vrednosti često se koristi u analizi različitih kompleksnih sistema, kao što su finansijska tržišta, klima i atmosfera [10–12].

Funkcionisanje tdDMA algoritama bazira se na proceni varijanse dugodometno korelisane vremenske serije oko pokretne srednje vrednosti. Funkcija standardne devijacije σ_{DMA} pokazuje zavisnost sa eksponentom H na n ($\sigma_{DMA} \propto n^H$), gde je H Hurstov eksponent koji opisuje dugodometna korelaciona svojstva ispitivane vremenske serije, a n veličina prozora na kojoj je računata srednja vrednost i njena standardna devijacija.

Vrednosti lokalnog H dobijene su tako što smo na karakterističnom intervalu računali vrednosti Hurstovog eksponenta za pokretan prozor unutar vremenske serije [13].

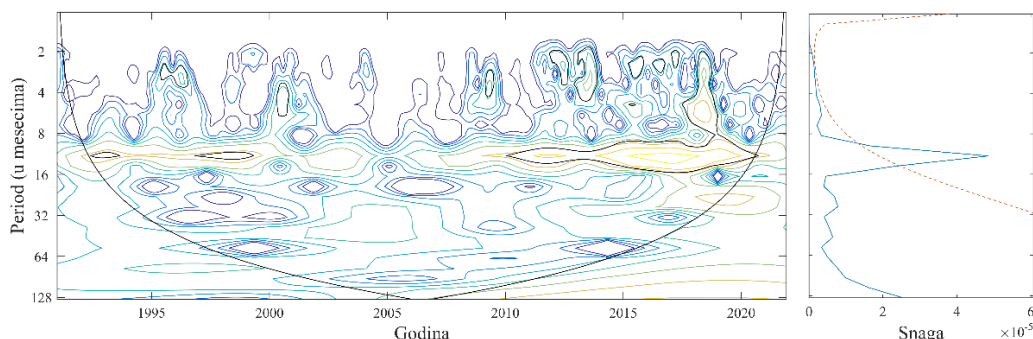
Proces je korelisan kada je vrednost Hurstovog eksponenta između 0,5 i 1, što ukazuje na pozitivnu dugodometnu korelaciju. Kada je vrednost Hurstovog eksponenta između 0 i 0,5, proces je antikorelisan, odnosno ima negativnu dugodometnu korelaciju. Kada je vrednost Hurstovog eksponenta jednaka 0,5, proces odgovara nekorelisanom Braunovom procesu.

Na osnovu vrednosti Hurstovog eksponenta razlikuju se tri režima rada vremenskih serija. Vremenska serija može se nalaziti samo u jednom režimu, na primer, imati samo pozitivnu dugodometnu korelaciju, ili može menjati režime rada. U tom slučaju, krossover predstavlja granicu promene procesa kada je vrednost Hurstovog eksponenta 0,5.

Rezultati

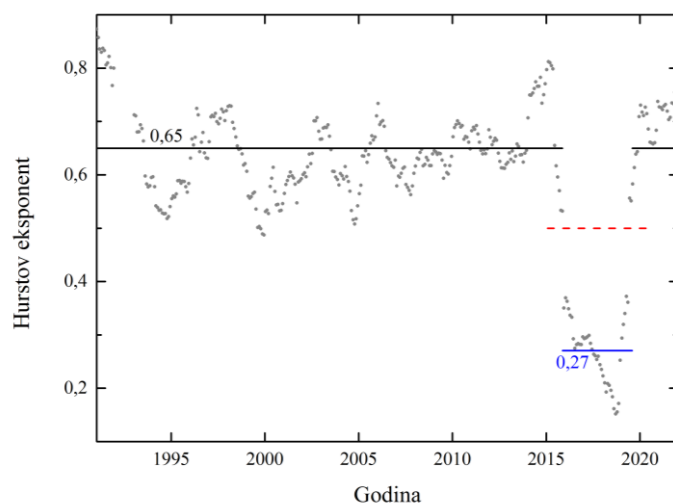
Na slici 1 prikazani su vejevlet spektar snage i globalni vejevlet spektar (raspodela snage signala na različitim skalama) specifične aktivnosti Be-7 merene u Beogradu. Oba grafika, sa

mesečnim podacima, pokazuju jasno postojanje godišnjeg karakterističnog perioda. Na grafiku vejevlet spektra snage on odgovara lokalnim maksimumima unutar spektara snage, što se na globalnom spektru manifestuje kao izražen pik na 12 meseci – karakteristični interval od jedne godine.



Slika 1: Levo – Vejevlet spektar snage specifične aktivnosti Be-7, koristeći Morlet vejevlet, normalizovan sa $1/\sigma^2$. Konusna linija predstavlja konus uticaja koji odvaja regiju od manje pouzdanih graničnih vrednosti. Desno – Globalni vejevlet spketar, konstruisan koristeći vejevlet spektar snage sa leve strane, na kojem se vidi izražen karakterističan period od jedne godine. Isprekidana crvena linija označava 95% značajnosti.

Na slici 2 prikazan je grafik lokalnih Hurstovih eksponenata dobijenih koristeći mesečne podatke specifične aktivnosti Be-7 na karakterističnom godišnjem periodu, zajedno sa srednjim vrednostima Hursta (horizontalne linije, crna i plava). Pozitivna korelisanost dobijena za dat karakteristični period predstavljena je crnom horizontalnom linijom čija je prosečna vrednost $H = 0,65$, i obuhvata ceo vremenski period izuzev od decembra 2015. do maja 2019. kada se uočava приметан пад u stepenu korelisanosti. Na slici 2 to vidimo kao horizontalnu plavu liniju čija je prosečna vrednost $H = 0,27$. Važno je naglasiti da ove vrednosti H ne odražavaju povećanje ili smanjenje specifične aktivnosti Be-7, već samo promenu režima dinamike vremenske serije – od umereno korelisanog ka izrazito antikorelisanom procesu i obrnuto, u zavisnosti od vrednosti Hurstovog eksponenta.



Slika 2: Lokalni Hurstovi eksponenti za karakteristični period od godinu dana kao funkcija vremena za mesečne podatke specifične aktivnosti Be-7 za prizemni sloj vazduha u Beogradu, Srbija, tokom 1991–2022. Razlikujemo dva perioda: crna linija sa pozitivnom dugodometnom korelacijom, i plava sa negativnom dugodometnom korelacijom. Isprekidana crvena linija pokazuje krossover za vrednost Hursta od 0,5.

Diskusija i zaključak

Analiza globalnog vejevlet spektra snage signala omogućila je identifikaciju karakterističnog jednogodišnjeg perioda unutar vremenske serije specifične aktivnosti Be-7. U okviru globalnog vejevlet spektra, nije se istakao nijedan drugi period sa statističkom značajnošću od 95%. Kako bismo identifikovali kraće periode, bilo bi potrebno koristiti podatke sa većom rezolucijom, kao što su dnevne ili nedeljne vrednosti. Za identifikaciju dužih perioda, potrebno je imati vremenske serije koje obuhvataju više godina. Prethodna istraživanja već su identifikovala sezonske promene ili periodičnosti u vremenskim serijama Be-7 [6,14,15]. Ove periodičnosti su rezultat uticaja transporta velikih vazдушnih masa na hemisferskom nivou.

Analiza vremenski zavisnog Hurstovog eksponenta pružila je dodatan uvid u kompleksnost dinamike koja karakteriše ponašanje specifične aktivnosti Be-7. Ove analize su prvi put sprovedene za merenja specifične aktivnosti Be-7 na lokaciji Beograd, Srbija. Vrednosti Hurstovog eksponenta za godišnji period pokazuju prisustvo umerene pozitivne korelacije skoro tokom celog ispitivanog perioda što sugeriše da su promene specifične aktivnosti Be-7 uglavnom spore, a ponašanje na godišnjem nivou gotovo identično. Međutim, primetan je krossover i prelazak vremenske serije iz umerene pozitivne korelisanosti u izrazito antikorelisan proces tokom perioda 2015–2020. godine.

Ipak, ova analiza ne pruža objašnjenje za uzroke navedenih promena u ponašanju vremenske serije specifične aktivnosti Be-7, niti da li je ovo specifično samo za lokaciju Beograd. Stoga bi dalja analiza mogla obuhvatiti više lokacija iz GRAMON baze podataka, kao i druge atmosferske parametre.

Zahvalnica

Rad je podržan sredstvima Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Ugovori broj 451-03-47/2023-01/200143, 451-03-47/2023-01/200129 i 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] D. Lal, B. Peters. Cosmic ray produced radioactivity on the earth, Handbook of Physics Vol. 46, 1967, 551–612.
- [2] E. F. Danielsen. Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity, Journal of Atmospheric Sciences Vol. 25, 1968, 502–518.
- [3] P. Cristofanelli, P. Bonasoni, L. Tositti, U. Bonafè, F. Calzolari, F. Evangelisti, S. Sandrini, A. Stohl. A 6-year analysis of stratospheric intrusions and their influence on ozone at Mt. Cimone (2165 m above sea level), Journal of Geophysical Research Vol. 111 No. D3, 2006.
- [4] L. Jiwen, V. N. Starovoitova, D. P. Wells. Long-term variations in the surface air ⁷Be concentration and climatic changes, Journal of Environmental Radioactivity Vol. 116, 2013, 42-47.
- [5] J. Lewalle, M. Farge, K. Schneider. "Wavelet transforms", in Handbook of Experimental Fluid Mechanics. Eds. C. Tropea, A. L. Yarin and J. F. Foss. Springer, 2007, 1378-1398.
- [6] C. Torrence, G. P. Compo. A Practical Guide to Wavelet Analysis, Bulletin of the American Meteorological Society Vol. 79, 1998, 61-78.

- [7] Dj. Stratimirović, S. Milošević, S. Blesić, M. Ljubisavljević. Wavelet analysis of discharge dynamics of fusimotor neurons, *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* Vol. 291, 2001, 13-23.
- [8] Lilly, J.M. Element analysis: A wavelet-based method for analysing time-localized events in noisy time series, *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* Vol. 473, 2017, 20160776.
- [9] A. Carbone, G. Castella, H. E. Stanley. Time-dependent Hurst exponent in financial time series, *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* Vol. 344, 2004, 267-271.
- [10] D. Sarvan, D. Stratimirović, S. Blesić, V. Miljković. Scaling analysis of time series of daily prices from stock markets of transitional economies in the Western Balkans, *European Physical Journal B: Condensed Matter and Complex Systems* Vol. 87, 2014, 297-304.
- [11] D. Sarvan, M. Tošić, M. Borovinić, S. Blesić. Classification of time series of temperature variations from climatically homogeneous regions based on long - term persistence, *International Journal of Climatology* Vol. 41 No. 4, 2021, 2660-2678.
- [12] D. Sarvan, Đ. Stratimirović, S. Blesić, V. Djurdjevic, V. Miljković, J. Ajtić, Dynamics of beryllium-7 specific activity in relation to meteorological variables, tropopause height, teleconnection indices and sunspot number, *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* Vol. 469, 2017, 813–823.
- [13] Dj. Stratimirović, D. Sarvan, V. Miljković and S. Blesić. Analysis of cyclical behavior in time series of stock market returns. *Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation* Vol. 54, 2018, 21-33.
- [14] J. V. Ajtić, D. J. Todorović, J. D. Nikolić, V. S. Đurđević. A multi-year study of radioactivity in surface air and its relation to climate variables in Belgrade, Serbia, *Nuclear Technology and Radiation Protection* Vol. 28, 2013, 381-388.
- [15] S. Bianchi, W. Plastino, E. Brattich, V. Djurdjevic, A. Longo, M. A. Hernández-Ceballos, D. Sarvan, J. Ajtić. Analysis of trends, periodicities, and correlations in the beryllium-7 time series in Northern Europe. *Applied Radiation and Isotopes* Vol. 148, 2019, 160–167.

ANALYSIS OF THE FRACTAL NATURE OF THE SPECIFIC ACTIVITY OF BERYLLIUM-7 IN THE NEAR-SURFACE LAYER OF THE ATMOSPHERE MEASURED IN BELGRADE, SERBIA (1991–2022)

Darko SARVAN¹, Đorđe STRATIMIROVIĆ², Milica RAJAČIĆ³,
Jelena KRNETA NIKOLIĆ³, Ivana VUKANAC³, Jelena AJTIĆ¹

- 1) *Belgrade University, Faculty of Veterinary Medicine, Belgrade*
- 2) *Belgrade University, Faculty of Dental Medicine, Belgrade*
- 3) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Radiation and Environmental Protection Department, Belgrade*

ABSTRACT

This research analyzes the fractal nature of the beryllium-7 specific activity time series in the near-surface layer of the atmosphere in Belgrade, Serbia. The aim was to study the dynamics of self-similarity in this series, with a particular focus on the annual cycle. Wavelet analysis and time-dependent detrended moving averages were used to identify characteristic intervals and estimate Hurst exponents.

The data on specific activity of beryllium-7 were obtained from the GRAMON database for the location of Belgrade (44.88 °N; 20.58 °E; 95 m a.s.l.). The time series comprises 362 monthly measurements between February 1991 and December 2022.

The results indicate a pronounced annual cycle in this time series. Moreover, changes in the local Hurst exponent reveal variations in the behavior of the time series, transitioning from moderately correlated to highly anti-correlated process between 2015. and 2020.

This finding will be a subject of a further analysis including other locations from the GRAMON database.

FLY-ASH FOR USAGE IN THE BUILDING MATERIAL INDUSTRY

Nataša MLADENOVIĆ NIKOLIĆ¹, Katarina TRIVUNAC², Miloš NENADOVIĆ³,
Sabina DOLENEC⁴, Maruša MRAK⁴, Ivana VUKANAC⁵, Snežana NENADOVIĆ¹,
Ljiljana KLJAJEVIĆ¹

- 1) „Vinča“ Institute of Nuclear Sciences – National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Materials, Belgrade, Serbia
- 2) Faculty of Technology and Metallurgy, University of Belgrade, Department of Analytical Chemistry and Quality Control, Belgrade, Serbia
- 3) „Vinča“ Institute of Nuclear Sciences – National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Atomic Physics, Belgrade, Serbia
- 4) Slovenian National Building and Civil Engineering Institute, Dimčevalica 12, 1000 Ljubljana, Slovenia
- 5) „Vinča“ Institute of Nuclear Sciences – National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Radiation and Environmental Protection, Belgrade, Serbia

Corresponding author: Ljiljana KLJAJEVIĆ, ljiljana@vin.bg.ac.rs

ABSTRACT

In this study, fly ash (FA) from the active and passive cassette TENT A (Nikola Tesla power plant, Obrenovac) is characterized from physicochemical and radiological aspects. Samples of FA consisted of amorphous phase followed by quartz, mullite, plagioclase, K-feldspar, hematite and calcite. As indicated by laser granulometry, the fraction D₅₀ of investigated samples are about 80µm, so based on the above, they belong to coarse ashes. Very important parameter which defines chemical composition of the fly ash as precursor material of clinker or alkali activated materials is presence of organic matter which is expressed by total organic content (TOC). Assessment of radiation exposure during coal combustion depends on the concentration of radioactive elements in the coal and in the resulting fly ash. Fly ash as industrial waste contains certain concentrations of natural radionuclides that are considered naturally occurring radioactive materials (NORM). The results showed that fly ash has satisfactory radiological properties and can be used as an addition to clinkers, but also as a potential precursor of a new class of alkaline activated materials that can be used in the construction sector.

Introduction

Fly ash is a by-product material produced in the combustion process of coal used in power stations. It is a fine grey coloured powder having spherical glassy particles that rise with the flue gases. As pozzolanic material fly ash is used in concrete, mines, landfills and dams. There has been an increasing attempt for fly ash utilization in different sectors. Loya and Rawani [1] identified top areas for the quantity of fly ash utilization as 44.19% in cement and concrete sectors, 15.25% of ash in roads, embankments and ash dyke raising, followed by 12.49% in reclamation of low lying areas and land filling, 8.84% in mine filling, 7.61% in bricks, blocks and tiles, 2.47% in agriculture and 9.14% in others. Since 316 individual minerals and 188 mineral groups are recognized in fly ash, it is one of the most complex materials in terms of characteristics [2]. However, all fly ash includes substantial amounts of

silicon dioxide (SiO_2) (both amorphous and crystalline), aluminum oxide (Al_2O_3) and calcium oxide (CaO), the main mineral compounds in coal-bearing rock strata. Fly ash can be classified according to the type of coal from which the ash was derived and depending on pH value and calcium/sulphur ratio, fly ashes are classified as acidic ash (pH 1.2 up to 7), mildly alkaline ash (pH 8–9), and strongly alkaline ash (pH 11–13) [3]. The chemical properties of fly ash depend not only on the type of coal used in a process but also on the techniques used to burn the coal. Specifically, properties of fly ash depend on: (a) boiler configuration, (b) burning condition and temperature of the boiler, (c) the particle size of the coal, and (d) the gas cleaning equipment [4]. The use of industrial by-products, fly ash of the coal combustion process, disposed in landfills near thermal power plants which represent a burden on the environment is nowadays an important task for scientists.

In the thermal power plants (TE) of "Elektroprivreda Srbije" (JP EPS) whose boilers burn lignite, around 6 million tons of fly ash are produced annually as a waste which is deposited in an open waste disposal, taking up an area of around 400 hectares. Depositing ash in open spaces can be very damaging to the environment due to the potentially deleterious effects of ash particles. Dispersal of ash particles by wind and water erosion and the leaching of substances such as salts and heavy metals can be hazardous for the surrounding terrain and underground waters. Fly and bottom ash are produced as a by-product in the process of burning Kolubara lignite (Coal mine basin Kolubara, Serbia) are the basic raw material in the technological process of collecting, preparing, transporting and disposing of ashes by their nature they belong to non-hazardous waste. A potential market for the use of fly ash exists and for now, it is used exclusively by cement factories [5]. The production of construction materials using or re-using local industrial waste alumina-silicate materials is a cost-benefit, environmental-friendly and sustainable technology [6, 7].

In order the ashes found in landfills to continue to be used as raw materials in the production of concrete, cement, clinker, and some new materials, for example alkaline-activated materials that would find their application in the construction sector, it is necessary to examine, among others, physico-chemical, mineralogical, and radiological characteristics of FA. The radioactivity of FA can be one of the important reasons against its wider use in the construction industry of Serbia [3]. The presented research is a contribution to the potential solution of environmental protection through the synthesis of potential construction materials based on FA or applications FA as Al-rich by-products in the building industry.

Materials and methods

Materials

Selected samples of FA were taken from ash dumps TENT A. Location of TENT A is on the right bank of the Sava river, about 40 km upstream of Belgrade between settlements of Krtinska and Urovci, about 3 km west of Obrenovac. Fly ash disposal: The cassette 1 of the ash dump of the TENT A in Obrenovac is covered with earth. The cassette 2 is active and the ash dumped into this cassette is mixed with water, while the cassette 3 is passive and recultivated, with planted grass [8].

The sample S1 was taken from the passive cassette number 1 from TENT A. The creation of a passive cassette differs from an active cassette in the part when the subject cassette ceases to be actively used. After the end of its active use, there is a period of aging of the cassette, which implies exposure exclusively to environmental influences. The sample is brownish with some impurities in it. Particle size and granulation are within expectations for the ash sample. Since it is a passive cassette, which has been inactive for several years, sampling was performed by the method of random sampling from several places. The composite sample

thus obtained was later mixed, dried and homogenized. The sample S2 was taken from active cassette from TENT A. The sample is dark almost black in color and shows the presence of impurities. The granulation of the powder is within the expected range. Since it was sampled from the active cassette, the reliability of the results may be better than that of the samples from the passive cassettes.

Due to the size of the active cassette, as well as the fact that part of the cassette is covered with water from the sprinklers, for sampling a representative part of the active cassette that can best represent the entire process that takes place in the active cassette was selected[8].

Methods

Among physical characteristics moisture content, granulometry, BET specific surface area, particle density were performed.

The specific surface area of the fly ash samples were determined using the BET (Brunauer-Emmet-Teller) method using Micromeritics ASAP-2020 analyser, by nitrogen adsorption measurements at 77 K. The samples were pre dried for 60 min at 105 °C. Specific density analysis of flyash samples was determined according to EN 1097-7 [9], by pycnometer method. Moisture measurements were determined by drying sample in an oven SP-440 (max. T 300 °C) on 105 °C for 24 h. Moisture content is given with the relation $\% mc_{wb} = (w_w - w_d / w_w) \times 100$ where mc is expressed on wet basis (w_w is wet weight and w_d is dry weight)

The X-ray powder diffraction (XRD) was performed to determine the phase composition of the FA samples using a PANalytical Empyrean X-ray diffractometer equipped with CuK α radiation with $\lambda = 1.54$ Å. The samples were scanned at 45 kV and a current of 40 mA, over the 2θ range from 4° to 70°, at a scan rate of 0.026° 2θ min⁻¹ and step time 172 seconds. The obtained XRD patterns were analysed using X'Pert High Score Plus diffraction software v. 4.8 from PANalytical, using PAN ICSD v. 3.4 powder diffraction files. All Rietveld refinements were performed using the PANalytical X'Pert High Score Plus diffraction software, using the structures for the phases from ICDD PDF 4+ 2016 RDB powder diffraction files. Amorphous content was determined using the external standard method (NIST SRM 676a) [10]. The chemical composition of FA was determined by X-ray fluorescence (XRF). The XRF analysis was performed with a wavelength dispersion (WD XRF) spectroscope ARL Perform X manufactured by Thermo Scientific with a power of 2500 W, 5 GN Rh X-ray tube, 4 crystals (AX03, PET, LiF200 and LiF220), two detectors (proportional and scintillation), and computer program UniQuant. The samples were quartered, dried at 105 °C and calcined at 950 °C.

Total organic compound (TOC) analyzed by Analyzer CW-800M "Multiphase", ELTRA by dry incineration method, detection of products with IR detector.

The contents of naturally occurring radionuclides in the FA were determined by gamma spectrometry. The samples of FA placed in PVC cylindrical containers (125 ml and 250 ml), sealed with beeswax and left for six weeks. The equilibrium between radon and its progenies realized in this way. Radiological analysis was performed by means of a coaxial semiconductor high purity germanium (HPGe) detector (Canberra 7229N-7500-1818 with 20% relative efficiency and 1.8 keV resolution for ⁶⁰Co at the 1332 keV line) associated with standard beam supply electronics units. The method has been shown previously and described by Nenadović, et al. [11] and Mirković et al. [12] Quoted uncertainties (the confidence level of 1 σ) were calculated by error propagation calculation. The combined standard uncertainties included the statistical uncertainties of the recorded peaks, efficiency calibration uncertainty and the uncertainty of measured mass.

European Commission [13] recommends that the reference level for building materials should be of the order of 1 mSv/y or less expressed as effective dose caused by external gamma radiation to members of the public. A common screening method the dose caused by building materials is the use of an Activity Concentration Index (I), the value of which is calculated on the basis of the concentrations of Ra-226, Th-232 and K-40. The index ACI is related to the gamma radiation dose in a building and was calculated according to equation 1 [14]:

$$(1) \quad ACI = \frac{A_{C_{Ra-226}}}{300} + \frac{A_{C_{Th-232}}}{200} + \frac{A_{C_{K-40}}}{3000}$$

where $A_{C,Ra-226}$, $A_{C,Th-232}$ and $A_{C,K-40}$ are the activity concentrations in Bq/kg.

Besides the activity concentration index, in order to estimate a possible health effect due to the exposure to natural radionuclides present in the measured samples, radium equivalent activity, Ra_{eq} [Bqkg⁻¹], the external hazard index, Hex [Bqkg⁻¹], total external absorbed gamma dose rate D [nGyh⁻¹], and annual effective dose EDR [mSv] can be calculated. The radium equivalent activity can be used to estimate the hazard associated with materials that contain 226-Ra, 232-Th, and 40-K. The external radiation hazard index reflects the external radiation hazard due to the emitted gamma radiation. The values of these indicators of exposure can be calculated according to eqs. from Vukanac et al. [15]. The value of this index must be less than unity to keep the radium equivalent activity and annual dose under the permissible limits of 370 Bqkg⁻¹ and 1 mSv, respectively.

The external absorbed gamma dose rate, \dot{D} (nGy/h), in air 1m above the ground due to radionuclides 226-Ra, 232-Th, and 40-K in measured samples was calculated [16]:

$$(2) \quad \dot{D} = 0.462A_{Ra} + 0.604A_{Th} + 0.0417A_K$$

In order to estimate the health risks, the annual effective dose rates was calculated using the conversion coefficient from the absorbed dose in air to the effective dose (0.7 Sv/Gy), the indoor occupancy factor (0.8) - assuming that people spend approximately 80% of the time indoors, and 8760 h (1 year) annual exposure time as proposed by UNSCEAR (1993). The annual effective dose (EDR) was calculated from the formula [17]:

$$(3) \quad EDR(\text{mSv}) = \dot{D}(\text{nGy/h}) \times 8760(\text{h/y}) \times 0.8 \times 0.7 (\text{Sv/Gy}) 10^{-6}$$

Results

Physico-chemical properties of FA

Table 1 shows the particle density, bulk density, BET and moisture content of FA samples.

Table 4: Particle density, bulk density, BET and moisture content of FA

Sample	Particle density (g/cm ³)	Bulk density (kg/m ³)	BET (m ² /g)	Moisture content (%)
S1	2.20	681	8.0	31.22
S2	2.05	659	17.9	25.92

The characteristic values D_{10} , D_{50} and D_{90} are shown in Table 2 and corresponding PSD curves are presented on Figure 1.

Table 2: Results of laser granulometry

Sample	D ₁₀ (μm)	D ₅₀ (μm)	D ₉₀ (μm)
S1	13.4	78.7	203.4
S2	21.5	85.9	144.1

XRD analysis

Table 3 shows phase composition of investigated samples determined by XRD analysis.

Table 3: Phase composition of ash samples

Sample	Amorphous (%)	Mineral composition (%)						
		Quartz	Mullite	Plagioclase	K-feldspar	Hematite	Calcite	SUM
S1	68.0	14.2	9.2	6.8	1.2	0.2	0.4	100.0
		16.5	6.5	4.6	0.7	0.1	/	100.0
S2	71.6	14.2	9.2	6.8	1.2	0.2	0.4	100.0
		16.5	6.5	4.6	0.7	0.1	/	100.0

XRF analysis

Table 4 shows chemical composition of all samples determined by XRF analysis.

Table 4: XRF results of chemical composition of all samples

Sample	L.O.I.	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	SO ₃	MnO	TiO ₂	P ₂ O ₅	Cr ₂ O ₃	SUM
	(%)													
S1	3.00	57.65	23.46	5.28	5.82	1.98	0.32	1.39	0.04	0.07	0.84	0.05	0.05	100.04
S2	5.90	57.92	22.72	6.30	2.99	1.43	0.30	1.29	0.34	0.06	0.72	0.05	0.03	100.10

Table 5 showstotal organic compounds (TOC) in samples of FA.

Table 5: Results of TOC measurements

Sample	TOC (%)
S1	0.56
S2	0.71

Radiological Characterizations

For assessing the specific dose rate, more elaborate methods need to be used in order to consider the actual concentrations and locations of a certain building material in a building. European Commission [13] recommends the model represents by Markkanen in reference [18]. A protection strategy should be established with the aim to promote building materials that do not exceed the reference level.

Radiological characteristics of the ash samples – specific activity (Bq/kg) were presented in Table 6.

Table 6: Activity concentration of natural radionuclides in the investigated samples with associated measurement uncertainties (k = 1).

Sample	Specific activity (Bq/kg)						
	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	²³⁸ U	²³⁵ U
S1	89±8	72±3	61±4	246±17	<0.1	81±8	5.5±0.4
S2	29±3	51±2	38±3	211±15	<0.1	47±5	2.8±0.2

Table 7 shows radium equivalent activity (Raeq), external radiation hazard index (Hex), the external gamma radiation absorbed dose rate (Ḑ) and effective dose rate (EDR) of fly ashes.

Table 7: Radium equivalent activity (Ra_{eq}), external radiation hazard index (H_{ex}), the external gamma radiation absorbed dose rate (\dot{D}) and effective dose rate (EDR) of fly ash samples

Sample	Ra_{eq} (Bq/kg)	H_{ex} (Bq/kg)	\dot{D} (nGy/h)	EDR (mSv/y)	ACI
S1	348.65	0.4813	80.4	0.394	0.627
S2	267.81	0.328	55.3	0.271	0.430

Discussion

Mineral composition of the samples was determined. Samples consisted of amorphous phase followed by quartz, mullite, plagioclase, K-feldspar, hematite, calcite. Quartz amount in both sample of FA from passive and active case is approximately the same. Also, amount of amorphous phase is slightly higher for S2 sample. Such a high % of the amorphous phase indicates a good reactivity of FA in further processes of use as a component in the production of clinker or alkali-activated materials. During the burning process, the mineral substances from the coal change into the crystalline and amorphous phases that make up the ash. For example, calcite is thought to mostly transition to CaO, which in some cases can react with SO_2 and CO_2 to form anhydrite and again calcite. Clay matter, like feldspar, melts and transforms into glass, sometimes with the action of solvents such as FeO and CaO. Kaolinite usually passes into mullite, glass and sometimes cristobalite, while the other types of clay and feldspar transition to glass [19]. Quartz partially melts, but some quartz grains remain. In this way, in addition to the amorphous phase that is characteristic of fly ash, crystalline mineral species mainly include quartz, mullite, K- and Ca-type feldspars, calcite, gelenite, hematite. The spherical particles that make up the glassy (amorphous) part of the ash are mostly thin, hollow, ceramic microspheres and are called cenospheres. These spheres are created under specific conditions, as molten drops of clay minerals, mica, feldspar and quartz. Spheres are usually charged gases resulting from combustion of organic matter, decomposition of carbonates, dehydration clay minerals and pore water evaporation. These are mainly CO_2 , N_2 , O_2 and H_2O . It is assumed that these spheres are formed at temperatures between 1230 and 1400°C [20].

According to particle size, ashes are divided into fine and coarse fraction. The fine fraction includes ash whose particle size is below 45 μm , while ashes with particle sizes above that belong to coarse ash. Ashes from bituminous coals have finer particles compared to ashes produced by burning lignite coals [19]. As a result of laser granulometry, the fraction D_{50} of both samples are about 80 μm , so based on the above, they belong to coarse ashes.

Among chemical parameters which are analyzed SiO_2 amount is almost the same (~58%) for the S1 and S2 sample. The values for CaO is lower for the S2—2.99 %-almost twice value of S1.

Very important parameter, which defines chemical composition of the fly ash as precursor material of clinker or alkali activated materials, is presence of organic matter. It is expressed by total organic content (TOC). It effects mainly emissions, as in unstable operating conditions the presence of TOC in clinker raw mixture can contribute to the CO_2 emissions.

The behavior of natural radionuclides in the process of burning coal depends on a number of factors, such as the type and characteristics of coal, ash content in coal, calorific value of coal, combustion temperature, chemical and physical form in which the radionuclides are found coal and others. In the combustion process, the organic component is eliminated thus that there is an increase in the concentration of radionuclides in ash compared to coal. Change in natural radioactivity as a consequence of the operation of thermal power plants it can also affect the food chain, soil-plant-animal-human. Considering that EDR , H_{ex} and ACI are less

than 1, FAs are safe from the aspect of external exposure with the limitation of the duration of exposure to less than 20% of hours per year.

Conclusion

Physico-chemical characteristics of samples led to conclusion that these ashes are heterogeneous materials.

Accordingly, the criteria $R_{a_{eq}} < 370$, $H_{ex} < 1$, FA from bouthcasete can be freely re-used as raw materials for building materials.

This researching offer a good basis for further investigations, considering possible utilization of these ash in production new materials which can be applied in the construction sector.

Acknowledgment

This work was financially supported by the Ministry of Science, Technological Development and Inovation of the Republic of Serbia on the research program, record number: 451-03-47/2023-01/200017, and grant No. 1702302 Vinča Institute of Nuclear Sciences, National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Serbia, and from the European Institute of Innovation and Technology (EIT), a body of the European Union, under Horizon 2020, the EU Framework Programme for Research and Innovation (RIS-ALiCE, project no. 18258). The Metrology Institute of the Republic of Slovenia is acknowledged for the use of XRF.

Reference

- [1] M.I.M. Loya, A.M. Rawani. A review: promising applications for utilization of fly ash, *Int. J. Adv. Technol. Eng. Sci.*, Vol.2, 2014, 143-149. ISSN:
- [2] S.V. Vassilev, C.G. Vassileva. A new approach for the classification of coal fly ashes based on their origin, composition, properties, and behaviour, *Fuel.*, Vol.86 No.10-11, 2007, 1490-1512. ISSN:
- [3] S. Gaffney, N.A. Marley. The impacts of combustion emissions on air quality and climate – from coal to biofuels and beyond, *Atmos. Environ.*, Vol.43, No.1, 2009, 23-36. ISSN:
- [4] A.B. Mukherjee, R. Zevenhoven, P. Bhattacharya, K.S. Sajwan, R. Kikuchi. Mercury flow via coal and coal utilization by-products: a global perspective *Resour. Conserv. Recycl.*, Vol.52, No.4, 2008, 571-591. ISSN:
- [5] D. M. Kisić, S. R. Miletić, V. D. Radonjić, S. B. Radanović, J. Z. Filipovic, I. A. Gržetić. Prirodna radioaktivnost uglja i letećeg pepela u termoelektrani „Nikola Tesla B“, *Hem. Ind.* Vol. 67, No.5, 2013, 729–738. ISSN:
- [6] Miloš T. Nenadović, Claudio Ferone, Ljiljana M. Kljajević, Miljana M. Mirković, Bratislav Ž. Todorović, Ivana S. Vukanac, and Snežana S. Nenadović, Alkali Activation of Different Type of Ash as a Production of Combustion Process Nuclear Technology & Radiation Protection, Vol. 36, No. 1, 2021, 66-73. ISSN:
- [7] S. S. Nenadović, Lj. M. Kljajević, S. B. Marković, M.O. Omerasević, U.D. Jovanović, V.Đ. Andrić, I.S. Vukanac, Natural diatomite (Rudovci, Serbia) as adsorbent for removal Cs from radioactive waste liquids, *science of Sintering*, Vol. 47 No. 3, 2015, 299-309. ISSN:

- [8] https://www.researchgate.net/publication/274826992_Potential_usage_of_fly_and_bottom_ash_from_thermal_power_plant_Nikola_Tesla_landfill_Serbia [accessed Jun20th2023].
- [9] EN 1097-7: Tests for mechanical and physical properties of aggregates. Determination of the particle density of filler. Pycnometer method (2008).
- [10] J. P. Cline, et al. Addressing the Amorphous Content Issue in Quantitative Phase Analysis: the Certification of NIST Standard Reference Material 676a. *Acta Cryst*, A67, 2011, 357-367.
- [11] S. Nenadović, C. Ferone, M. Nenadović, R. Cioffi, M. Mirković, I. Vukanac, Lj. Kljajević. Chemical, physical and radiological evaluation of raw materials and geopolymers for building applications, *J Radioanal Nucl Chem* Vol. 325 No.2, 435-445. ISSN:
- [12] M. Mirković, Lj. Kljajević, S. Nenadović, S. Dolenc, K. Šter, L. Žibret, M. Rajačić. Fly ash as a raw material for low-carbon cement clinkers and its radiological properties, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 328, 2021, 1391-1398. ISSN:
- [13] European Commission (EC), Radiation protection 112-Radiological Protection Principles concerning the Natural Radioactivity of Building Materials, Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection, 1999
- [14] Directive 2013/59/EUROATOM 5-December 2013, Official European Union 17/01/2014, 2013
- [15] I. Vukanac, et al. Assessment of Natural Radioactivity Levels and Radon Exhalation Rate Potential from Various Building Materials, *Nucl Technol Radiat* Vol.35, No.1, 2020, 64-73. ISSN:
- [16] R.C. Bhangare, M. Tiwari, P.Y. Ajmal, S.K. Sahu, G.G. Pandit. Distribution of natural radioactivity in coal and combustion residues of thermal power plants, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol.300, 2014, 17-22, ISSN: 0236-5731
- [17] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation (UNSCEAR) Report to the General Assembly with Annex A: Exposures from Natural Sources of Radiation; United Nations: New York, 1993.
- [18] M. Markkanen. Radiation Dose Assessments for Materials with Elevated Natural Radioactivity, Report STUK-B-STO 32, Radiation and Nuclear Safety Authority – STUK, 1995.
- [19] W.L. Daniels, B. Stewart, K. Haering, C. Zipper. 'The Potential for Beneficial Reuse of Coal Fly Ash in Southwest Virginia Mining Environments', 2002., Virginia Cooperative Extension, Knowledge for the Commonwealth.
- [20] S. Vassilev, R. Menendez. Phase-mineral and chemical composition of coal fly ashes as a basis for their multicomponent utilization. 4. Characterization of heavy concentrates and improved fly ash residues, *Fuel*, Vol. 84, No. 7-8, 2005, 973-991. ISSN:

UPOTREBA LETEĆEG PEPELA U INDUSTRIJI GRAĐEVINSKOG MATERIJALA

Nataša MLADENOVIĆ NIKOLIĆ¹, Katarina TRIVUNAC², Miloš NENADOVIĆ³,
Sabina DOLENEC⁴, Maruša MRAK⁴, Ivana VUKANAC⁵, Snežana NENADOVIĆ¹,
Ljiljana KLJAJEVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za materijale, Beograd, Srbija*
- 2) *Tehnološko-metalurški fakultet, Katedra za analitičku hemiju i kontrolu kvaliteta, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija*
- 3) *Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za atomsku fiziku, Beograd, Srbija*
- 4) *Slovenački nacionalni građevinski institut, Dimčeva ulica 12, 1000 Ljubljana, Slovenija*
- 5) *Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija*

REZIME

Procena izloženosti zračenju pri sagorevanju uglja zavisi od koncentracije radioaktivnih elemenata u uglju i u letećem pepelu koji nastaje. Uzorci letećeg pepela se sastoje od amorfne faze praćene kvarcom, mulitom, plagioklasom, K-feldspatom, hematinom, kalcitom. Kao rezultat laserske granulometrije, frakcija D50 za ispitivane uzorke je približno 80 µm, tako da na osnovu navedenog, leteći pepeli predstavljaju pepele krupnih čestica. Veoma važan parametar je prisustvo organske materije koje se izražava ukupnim organskim sadržajem. Leteći pepeli kao industrijski ostaci sadrže određene koncentracije prirodnih radionuklida koji se smatraju prirodnim radioaktivnim materijalima (NORM). U ovom istraživanju, leteći pepeo iz aktivne i pasivne kasete TENT A (termoelektrana Nikola Tesla, Obrenovac) karakteriše se sa radiološkog i fizičko-hemijskog aspekta. Rezultati su pokazali da leteći pepeo ima zadovoljavajuća radiološka svojstva i da se može koristiti kao dodatak klinkerima, ali i kao potencijalni precursor nove klase alkalno aktiviranih materijala koji se mogu primeniti u građevinskom sektoru.

IZBOR REFERENTNOG DATUMA ZA PREZENTOVANJE AKTIVNOSTI RADIONUKLIDA U VREMENSKI KOMPOZITNIM UZORCIMA

Milica RAJAČIĆ¹, Ivana VUKANAC¹, Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹, Nataša SARAP¹,
Marija JANKOVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke Vinča, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Mike Petrovića Alasa 12-14, 11351 Vinča, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Milica RAJAČIĆ, milica100@vinca.rs

SAŽETAK

Pitanje kojim se ovaj rad bavi je: “Kako predstaviti “dan uzorkovanja” kod vremenski kompozitnih uzoraka?”. Izbor referentnog datuma koji će predstaviti “dan uzorkovanja” je stvar dogovora, ali rezultati aktivnosti ispitivanog radionuklida dati na različite referentne datume suštinski nisu međusobno poredivi. Cilj je bio da se ispita na koji dan korigovana izmerena aktivnost (A_r) najpribližnije određuje ukupnu dnevnu aktivnost svih uzorka na dan njihovog uzorkovanja (A_u).

Ispostavlja se da dan kada je razlika ove dve aktivnosti (Δ) minimalna zavisi od više faktora: ukupne vrednosti dnevnih aktivnosti (A_u), vremenske raspodele dnevnih vrednosti (homogenost), dužine perioda sakupljanja (D) i vremena poluraspada posmatranog radionuklida ($T_{1/2}$). Shodno tome, u radu je praćeno kako promena navedenih parametara utiče na promenu optimalnog referentnog datuma za koji je vrednost Δ minimalna (dan r).

Rezultati pokazuju izvestan nivo pravilnosti kod homogenih uzoraka, međutim nehomogenost dnevnih aktivnosti, što je slučaj u realnosti, ima veliki uticaj na promenu optimalnog referentnog datuma, ali za sada bez utvrđenih pravilnosti.

Uvod

Kod određivanja aktivnosti radionuklida, vrlo je važno obratiti pažnju na vremenski period koji je protekao od referentnog datuma do dana merenja. Ukoliko je ova vremenska razlika uporediva sa vremenom poluraspada radionuklida, potrebno je izvršiti takozvanu “korekciju na raspad, na referentni datum” (Jednačina 1) [1].

$$(1) \quad A_0 = A_m \cdot \exp\left(\ln 2 \cdot \frac{\Delta t}{T_{1/2}}\right) = A_m \cdot e^{\lambda \cdot \Delta t}$$

gde A_0 i A_m predstavljaju aktivnosti na referentni datum i na dan merenja, redom, Δt vremenski period između uzorkovanja i merenja i $T_{1/2}$ vreme poluraspada ispitivanog izotopa (*obratiti pažnju da Δt i $T_{1/2}$ budu izraženi u istim jedinicama*).

Na primer, u slučaju kompozitnih mesečnih uzoraka aerosola, kada vremenska distanca između sakupljanja pojedinih delova uzorka (prvi dani u mesecu) i merenja celokupnog uzorka može biti i više od 45 dana, ova korekcija je značajana za radionuklide poput Be-7 ($T_{1/2} \approx 53$ dana) i I-131 ($T_{1/2} \approx 8$ dana) [2].

U suštini, za praćenje promene koncentracije izotopa je važno samo da se korekcija vrši uvek na isti dan u odnosu na početak uzorkovanja, pa je izbor "referentnog datuma" stvar dogovora (obično su to sredina, prvi ili poslednji dani perioda uzorkovanja).

Međutim, rezultati aktivnosti ispitanoг radionuklida dati na različite referentne datume suštinski nisu međusobno poredivi. Postavlja se pitanje: "Šta je najbolji izbor za referentni datum kod vremenski kompozitnih uzoraka?". Cilj je da aktivnost na referentni datum (A_r) što približnije određuje ukupnu vrednost dnevnih uzoraka na dan njihovog uzorkovanja (A_i), $\Sigma A_i = A_u$.

Ispostavlja se da dan kada je razlika ove dve aktivnosi (Δ) minimalna zavisi od više faktora: ukupne aktivnosti dnevnih uzoraka (A_u), vremenske raspodele dnevnih vrednosti, dužine perioda sakupljanja (D), vremena poluraspada posmatranog radionuklida ($T_{1/2}$).

U radu je praćena promena dana r za koji je vrednost Δ minimalna (poželjan referentni datum), pri pojedinačnom variranju navedenih parametara.

Rezultati

Na početku treba istaći da je potpuno identično da li se aktivnost meri u kompozitnom uzorku ili se sabiraju pojedinačne dnevne aktivnosti, određene na isti referentni datum, što Jednačine 2-7 i pokazuju [3].

$$(2) \quad A_0 = \sum_{i=1}^D A_{i,o} = \sum_{i=1}^D A_{i,m} \cdot e^{\lambda(T_m - T_i)} \cdot e^{-\lambda(T_o - T_i)}$$

$$(3) \quad A_0 = \sum_{i=1}^D A_{i,o} = \sum_{i=1}^D A_{i,m} \cdot e^{\lambda(T_m - T_i - T_o + T_i)}$$

$$(4) \quad A_0 = \sum_{i=1}^D A_{i,o} = \sum_{i=1}^D A_{i,m} \cdot e^{\lambda(T_m - T_o)}$$

$$(5) \quad A_0 = \sum_{i=1}^D A_{i,o} = e^{\lambda(T_m - T_o)} \sum_{i=1}^D A_{i,m}$$

$$(6) \quad \sum_{i=1}^D A_{i,m} = A_m = \frac{N}{E_{ff} \cdot P_{\gamma} \cdot t} \rightarrow \text{Izmerena vrednost}$$

$$(7) \quad A_0 = A_m e^{\lambda(T_m - T_o)}$$

gde je: A_0 -ukupna aktivnost za uzorkovani period na izabrani dan za prikazivanje rezultata; $A_{i,o}$ -aktivnost i -tog uzorka na referentni dan; $A_{i,m}$ -aktivnost i -tog uzorka na dan merenja (udeo u izmerenoj vrednosti); A_m -koncentracija ukupne aktivnosti za uzorkovani period na dan merenja (izmerena vrednost); D -broj dana uzorkovanja; T_m -dan merenja; T_i -dan uzorkovanja; T_o -referentni dan na koji se prikazuje aktivnost.

U Tabeli 1 su prikazane promene:

- r dana - dan sa minimalnom razlikom ukupne mesečne aktivnosti i izmerene aktivnosti korigovane na taj dan ($\Delta_r = \Delta_{\min}$);
- vrednosti Δ_{\min} ;
- $T_{1/2, sr}$ - minimalno vreme poluraspada radionuklida za koje je Δ minimalna pri korekciji na sredinu perioda uzorkovanja ($\Delta_{\min} = \Delta_{sr}$);
- $T_{1/2, 0}$ - minimalno vreme poluraspada radionuklida za koje je $\Delta = 0$;

pri variranju ukupne aktivnosti dnevnih uzoraka (A_u), perioda poluraspada radionuklida ($T_{1/2}$) i dužine perioda uzorkovanja (D).

Tabela 1: Promena referentnog datuma (r), Δ_r , $T_{1/2, sr}$ i $T_{1/2, 0}$ pri promenama A_u , $T_{1/2}$ i D

A_u	Period sakupljanja (D):	7 dana $\Delta_{sr} = \Delta_4$	23 dana $\Delta_{sr} = \Delta_{12}$	30 dana $\Delta_{sr} = \Delta_{15} = \Delta_{16}$
1 Bq	$T_{1/2} = 2$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_5 = 0,11$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{18} = 0,16$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{24} = 0,09$ Bq
	$T_{1/2} = 3$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,11$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,06$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{22} = 0,02$ Bq
	$T_{1/2} = 10$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,01$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{13} = \Delta_{14} = 0,03$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{18} = 0,00$ Bq
	$T_{1/2} = 200$ dana	$\Delta_{min} \in [\Delta_3 - \Delta_5] = 0,00$ Bq	$\Delta_{min} \in [\Delta_{11}, \Delta_{13}] = 0,00$ Bq	$\Delta_{min} \in [\Delta_{15} - \Delta_{17}] = 0,00$ Bq
	$\Delta_{min} = \Delta_{sr}$	za $T_{1/2} \geq 3$ dana	za $T_{1/2} \geq 31$ dana	za $T_{1/2} \geq 26$ dana
	$\Delta_{min} = 0$	za $T_{1/2} \geq 14$ dana	za $T_{1/2} \geq 47$ dana	za $T_{1/2} \geq 35$ dana
20 Bq	$T_{1/2} = 2$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_5 = 2,21$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{18} = 3,21$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{24} = 1,79$ Bq
	$T_{1/2} = 3$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 2,20$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 1,14$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{22} = 0,50$ Bq
	$T_{1/2} = 10$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,19$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{14} = 0,69$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{18} = 0,01$ Bq
	$T_{1/2} = 200$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,00$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,01$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,03$ Bq
	$\Delta_{min} = \Delta_{sr}$	za $T_{1/2} \geq 3$ dana	za $T_{1/2} \geq 31$ dana	za $T_{1/2} \geq 26$ dana
	$\Delta_{min} = 0$	za $T_{1/2} \geq 62$ dana	za $T_{1/2} \geq 206$ dana	za $T_{1/2} \geq 1333$ dana
50 Bq	$T_{1/2} = 2$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_5 = 5,54$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{18} = 8,03$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{24} = 4,48$ Bq
	$T_{1/2} = 3$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 5,51$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 2,85$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{22} = 1,25$ Bq
	$T_{1/2} = 10$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,48$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{14} = 1,72$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{18} = 0,03$ Bq
	$T_{1/2} = 200$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,00$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,01$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,06$ Bq
	$\Delta_{min} = \Delta_{sr}$	za $T_{1/2} \geq 3$ dana	za $T_{1/2} \geq 31$ dana	za $T_{1/2} \geq 26$ dana
	$\Delta_{min} = 0$	za $T_{1/2} \geq 99$ dana	za $T_{1/2} \geq 326$ dana	za $T_{1/2} \geq 3413$ dana
500 Bq	$T_{1/2} = 2$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_5 = 55,37$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{18} = 80,28$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{24} = 44,79$ Bq
	$T_{1/2} = 3$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 55,07$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{14} = 28,45$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{22} = 12,48$ Bq
	$T_{1/2} = 10$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 4,82$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 17,24$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{18} = 0,30$ Bq
	$T_{1/2} = 200$ dana	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,01$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,13$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,64$ Bq
	$\Delta_{min} = \Delta_{sr}$	za $T_{1/2} \geq 3$ dana	za $T_{1/2} \geq 31$ dana	za $T_{1/2} \geq 26$ dana
	$\Delta_{min} = 0$	za $T_{1/2} \geq 310$ dana	za $T_{1/2} \geq 1029$ dana	za $T_{1/2} \geq 34606$ dana

* Δ_d , d -redni broj dana tokom perioda uzorkovanja; $d = sr$ predstavlja sredinu perioda uzorkovanja, $d = r$ predstavlja dan za koji je $\Delta = \Delta_{min}$

Iz prikazanog u Tabeli 1 se može konstatovati:

- Za istu dužinu perioda uzorkovanja i istu ukupnu aktivnost, sa povećanjem $T_{1/2}$, Δ_{min} se približavala Δ_{sr} . Za periode uzorkovanja od 7 i 23 dana, Δ_{min} je bila obrnuto proporcionalna $T_{1/2}$, dok za $D = 30$, ovo nije važno u celom ispitanom opsegu perioda poluraspada, jer je $\Delta_{min}(T_{1/2} = 10 \text{ dana}) < \Delta_{min}(T_{1/2} = 200 \text{ dana})$.
- Za istu dužinu perioda uzorkovanja i isti period poluraspada, Δ_{min} je bila obrnuto proporcionalna A_u .
- Razlika između Δ_{min} za različite ukupne aktivnosti, istog radionuklida (isti period poluraspada) je obrnuto proporcionalna povećanju perioda poluraspada radionuklida.
Npr. $T_{1/2} = 2$ dana: $\Delta_{min}(A_u = 500 \text{ Bq}) - \Delta_{min}(A_u = 1 \text{ Bq}) = 55,26$ Bq;
dok je za $T_{1/2} = 200$ dana: $\Delta_{min}(A_u = 500 \text{ Bq}) - \Delta_{min}(A_u = 1 \text{ Bq}) = 0,01$ Bq.
- Za ispitane slučajeve, period poluraspada za koji je $\Delta_{min} = \Delta_{sr}$ se nije menjao sa promenom ukupne aktivnosti ($T_{1/2, sr} \neq f(A_u)$), ali se menjao sa promenom trajanja uzorkovanja (D).
- Period poluraspada za koji je $\Delta_{min} = 0$ Bq, je rastao i sa povećanjem ukupne aktivnosti ($T_{1/2, 0} \sim A_u$) i sa povećanjem perioda uzorkovanja ($T_{1/2, 0} \sim D$), osim u slučaju za $A_u = 1$ Bq, kada je $T_{1/2, 0}$ za $D = 30$ dana manje nego za $D = 23$ dana.
- Skraćivanjem perioda uzorkovanja (D), dan r se od kraja uzorkovanog perioda približava njegovoj sredini.

U Tabeli 2 je ispitano uticaj vremenske nehomogenosti uzorka i dužine perioda uzorkovanja na promenu parametra r .

Tabela 2: Uticaj vremenske nehomogenosti uzorka i dužine perioda uzorkovanja na promenu parametra r i vrednosti Δ_r

$T_{1/2} = 100$ dana			
Period sakupljanja:	7 dana $\Delta_{sr} = \Delta_4$	23 dana $\Delta_{sr} = \Delta_{12}$	30 dana $\Delta_{sr} = \Delta_{15} = \Delta_{16}$
Svaki dan: $A_i = 50$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,00$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,05$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,08$ Bq
1. dan: $A_1 = 30$ Bq Poslednji dan: $A_p = 70$ Bq Ostali dani: $A_i = 50$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,12$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{13} = 0,16$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,05$ Bq
1. dan: $A_1 = 70$ Bq Poslednji dan: $A_p = 30$ Bq Ostali dani: $A_i = 50$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,11$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,08$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{15} = 0,13$ Bq
1. dan: $A_1 = 500$ Bq Ostali dani: $A_i = 50$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_2 = 0,26$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_9 = 0,05$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,22$ Bq
Poslednji dan: $A_p = 500$ Bq Ostali dani: $A_i = 50$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_6 = 0,24$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{15} = 0,14$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{19} = 0,08$ Bq
Sredina perioda: $A_{sr} = 500$ Bq Ostali dani: $A_i = 50$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,00$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,05$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,08$ Bq
Sredina perioda: $A_{sr} = 1$ Bq Ostali dani: $A_i = 50$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_4 = 0,00$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,05$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,08$ Bq
$A_{sr-1} = 500$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_3 = 0,35$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,08$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,19$ Bq
$A_{sr-2} = 500$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_3 = 0,09$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,22$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{15} = 0,16$ Bq
$A_{sr+1} = 500$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_5 = 0,34$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{12} = 0,19$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,02$ Bq
$A_{sr+2} = 500$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_5 = 0,11$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{13} = 0,16$ Bq	$\Delta_{min} = \Delta_{16} = 0,13$ Bq

* Δ_d , d -redni broj dana tokom perioda uzorkovanja; $d = sr$. predstavlja sredinu perioda uzorkovanja, $d = r$ predstavlja dan za koji je $\Delta = \Delta_{min}$

Rezultati prikazani u Tabeli 2 ukazuju da nehomogenost dnevnih aktivnosti dovodi i do pomeranja optimalnog referentnog datuma na vremenskoj skali i do promene vrednosti Δ_{min} , ali za sada bez utvrđenih pravlnosti. Jedino je jasno da ekstremumi koji se dogode na dan d , ne utiču na vrednost Δ_d .

Na kraju će biti razmotreni slučajevi dva kratkoživeća radionuklida čije se aktivnosti posebno prate u uzorcima aerosola (Be-7 i I-131), a čija su vremena poluraspada 53 dana i 8 dana, redom.

Pri posmatranju Be-7 u sedmodnevnim uzorcima ($T_{1/2, sr} = 3$ dana), za vremenski homogene uzorke je sredina perioda uzorkovanja najpovoljniji referentni dan ($\Delta_{min} = \Delta_4 = \Delta_{sr}$). Takođe, do 15 Bq, što je i najčešći raspon aktivnosti, $\Delta_{min} = 0$.

Za I-131, čije je vreme poluraspada nešto kraće od Be-7, situacija je dosta slična i ispostavlja se da je za referentni datum takođe najpovoljnije izabrati sredinu perioda uzorkovanja, s tim što za homogene uzorke aktivnosti u intervalu (1-20) Bq, Δ_{min} ima vrednosti (0,02-0,30) Bq, dok je $\Delta_{min} = 0$ Bq za aktivnosti $< 0,3$ Bq.

Kod mesečnih uzoraka, za Be-7 se situacija ne menja osetno u odnosu na sedmodnevne uzorke. Naime, za period uzorkovanja od 30 dana, $\Delta_{min} = \Delta_{16} = \Delta_{sr}$. i za najčešći raspon aktivnosti (do 15 Bq) $\Delta_{min} = 0$ Bq. Za period od 31 dan, $\Delta_{min} = \Delta_{17}$, ali ni slučaj $\Delta_{min} = \Delta_{17} = \Delta_{16}$ nije retkost, a za najčešći raspon aktivnosti (do 15 Bq) $\Delta_{min} < 0,1$ Bq.

Za određivanje I-131, u homogenim mesečnim uzorcima $\Delta_{\min} = \Delta_{19}$. Za raspon aktivnosti (1-20) Bq, Δ_{\min} ima vrednosti (0,04-0,71) Bq, odnosno (0,02-0,49) Bq za 30-dnevne, odnosno 31-dnevne uzorke, redom.

Kao što je već utvrđeno, nehomogenost uzorka dovodi do promene optimalnog referentnog datuma i vrednosti Δ_{\min} , što je prikazano u Tabeli 3.

Tabela 3: Uticaj nehomogenosti u 30-dnenom uzorku

Period uzorkovanja: 30 dana			
Aktivnost prvih 15 dana	Aktivnost poslednjih 15 dana	Be-7	I-131
5 Bq	1 Bq	$\Delta_{\min} = \Delta_{11} = 0,01$	$\Delta_{\min} = \Delta_{13} = 0,01$
3 Bq	2 Bq	$\Delta_{\min} = \Delta_{14} = \Delta_{15} = 0,02$	$\Delta_{\min} = \Delta_{17} = 0,04$
4 Bq	2 Bq	$\Delta_{\min} = \Delta_{13} = \Delta_{14} = 0,02$	$\Delta_{\min} = \Delta_{16} = 0,04$
1 Bq	5 Bq	$\Delta_{\min} = \Delta_{21} = 0,01$	$\Delta_{\min} = \Delta_{22} = 0,08$

Iako se iz većine primera prikazanih u Tabeli 3 stiče utisak da se dan r pomera ka periodu veće aktivnosti, iz druge razmotrene situacije za I-131, kao i iz nekoliko slučajeva iz Tabele 2 se vidi takav trend nije pravilnost.

Zaključak

Na osnovu svega prikazanog u radu, može se zaključiti da dan r ($\Delta_r = A_u - A_r = \Delta_{\min}$) zavisi od više faktora: vrednosti ukupne aktivnosti dnevnih uzoraka (A_u), vremenske raspodele dnevnih vrednosti (homogenost), dužine perioda uzorkovanja (D), vremena poluraspada posmatranog radionuklida ($T_{1/2}$). Rezultati pokazuju izvestan nivo pravilnosti promene dana r i vrednosti Δ_{\min} kod homogenih uzoraka, međutim nehomogenost dnevnih aktivnosti, što je slučaj u realnosti, ima značajan uticaj na promenu optimalnog referentnog datuma, ali za sada bez utvrđenih pravlnosti.

Zahvalnica

Istraživanje je podržano od strane Ministarstva nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (broj aneksa 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] Technical Report Series No.295, IAEA, Viena, 1989.
- [2] <http://www.lnhb.fr/nuclear-data/nuclear-data-table/>
- [3] Rajačić M., Analiza uticaja aktivnosti Sunca i meteoroloških parametara na koncentraciju ^7Be u prizemnom sloju atmosfere, Doktorska disertacija, Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu, 14.02.2019.

SELECTION OF REFERENCE DATE FOR PRESENTATION OF RADIONUCLIDE ACTIVITY IN TIME-COMPOSITE SAMPLES

Milica RAJAČIĆ¹, Ivana VUKANAC¹, Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹, Nataša SARAP¹,
Marija JANKOVIĆ¹

- 1) *Vinča Institute of Nuclear Sciences, National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Radiation and Environmental Protection Department, Mike Petrovića Alasa 12-14, 11001 Belgrade, Serbia*

APSTRACT

The question that this paper deals with is: "How to present the "sampling day" in temporal composite samples?". The choice of the reference data that will represent the "sampling day" is a matter of agreement, but the results of the activity of the tested radionuclide given on different reference dates are essentially not mutually comparable.

The aim of the paper was to examine on which day the corrected measured activity (A_r) most closely determines the total daily activity of all samples on the day of their sampling (A_u). It turns out that the day when the difference between these two activities (Δ) is minimal depends on several factors: the total value of daily activities (A_u), the temporal distribution of daily values (homogeneity), the length of the collection period (D) and the half-life of the observed radionuclide ($T_{1/2}$). Accordingly, the influence of the variation of mentioned parameters on the change of the optimal reference date for which the value of Δ is minimal (day r) is presented in this paper.

The results show some level of regularity in homogeneous samples, however, the inhomogeneity of daily activities, which is the case in reality, has a great influence on the change of the optimal reference date, but for now, without established consistency.

SADRŽAJ RADIONUKLIDA I TEŠKIH METALA U OTPADNOM TALOGU OD PREČIŠĆAVANJA RASTVORA ZA ELEKTROLIZU CINKA U “ZORKI” ŠABAC

Predrag KUZMANOVIĆ^{1,2}, Jan HANSMAN¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹,
Sofija FORKAPIĆ¹, Dušan MRĐA¹, Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹

- 1) *Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet, Departman za fiziku, Novi Sad*
- 2) *Akademija strukovnih studija Šabac, Odsek za medicinske i poslovno-tehnološke studije, Laboratorija za fiziku, Šabac*

Autor za korespondenciju: Predrag KUZMANOVIĆ, predrag.kuzmanovic@df.uns.ac.rs

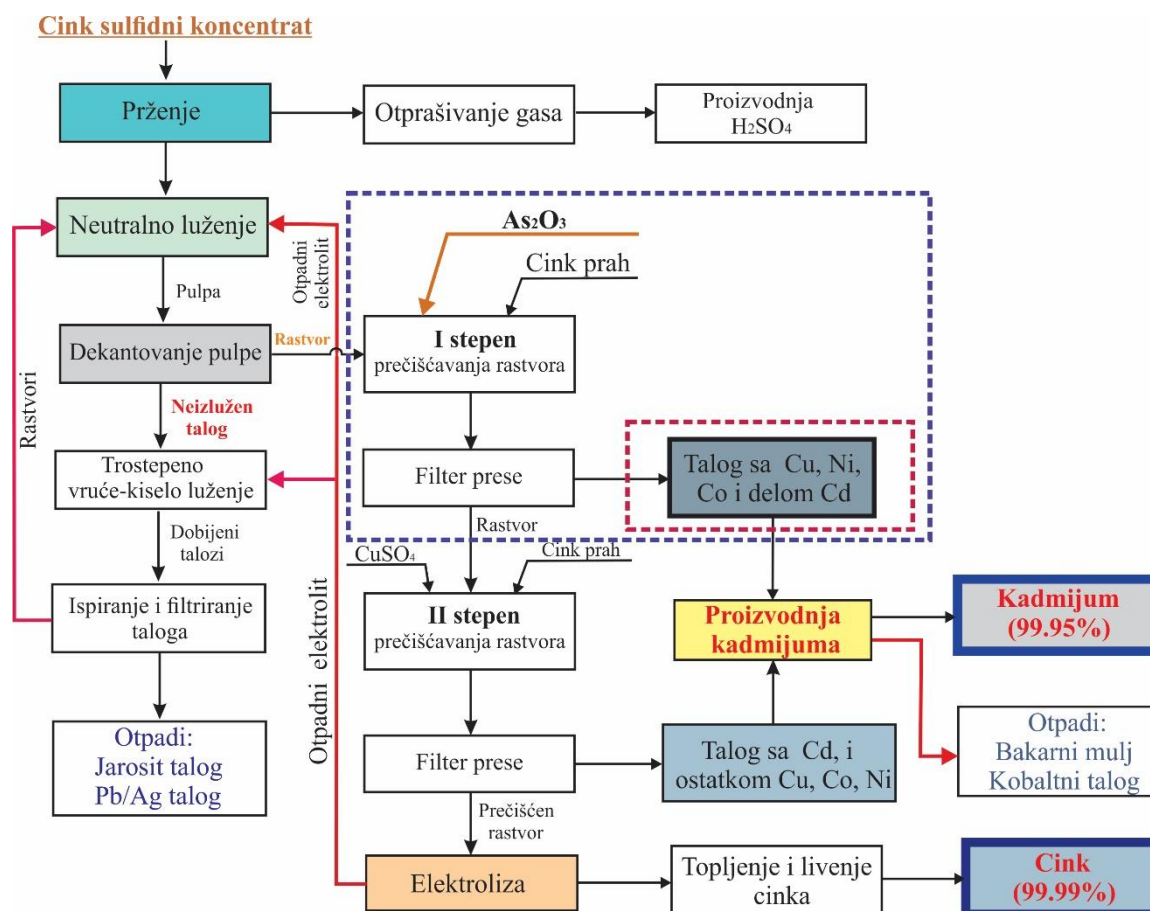
SAŽETAK

Hidrometalurška proizvodnja cinka predstavlja skup tehnoloških procesa koji obuhvataju: prženje cink sulfidnog koncentrata, neutralno luženje prženca, a zatim dvostepeno prečišćavanje dobijenog rastvora od pratećih elemenata Cd, Cu, Ni i Co pri čemu se dobijaju dva otpadna taloga. U ovom radu je analiziran talog iz prve faze prečišćavanja rastvora nastalog od neutralnog luženja prženca. Određene su vrednosti koncentracija aktivnosti U-238, U-235, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137, kao i sadržaj glavnih teških metala Zn, Cu i Cd. Dobijene vrednosti su oko i ispod prosečnih vrednosti za zemljište te se u pogledu radioaktivnosti njegovim odlaganjem u životnu sredinu ne vrši prekomerna kontaminacija radionuklidima. Dobijene vrednosti gama indeksa, jačine apsorbovane doze, godišnje efektivne doze i rizika od nastanka kancera tokom života za radnike koji su bili u kontaktu sa ovim materijalom su ispod preporučenih, odnosno prosečnih vrednosti u svetu. Takođe, u analiziranom talogu su ustanovljene visoke koncentracije teških metala: Zn, Cu i Cd koje kontaminiraju životnu sredinu.

Uvod

Cink (Zn) spada u grupu najvažnijih obojenih metala i ima dosta široku primenu: galvanizacija, proizvodnja mesinga, bronzе i drugih legura, limova, cevi, traka, cink-praha, hemijskih proizvoda i dr. [1, 2]. Prema podacima *International Lead and Zinc Study Group* u 2022. godini proizvedeno je 12.171 miliona tona cinka [3]. Cink se u Srbiji proizvodio elektrolitičkim putem u hemijskim industrijama „Trepča“ u Kosovskoj Mitrovici i „Zorka“ u Šapcu. Mesečna proizvodnja elektrolitičkog cinka u „Zorki“ Šabac je bila oko 2.400 tona uz utrošak između 4.700 i 5.200 tona prženca [4].

Poznato je da se cink u prirodi ne nalazi u svom elementarnom stanju. Cink ima osobinu, koja je slična i drugim obojenim metalima, da se najčešće sa olovom i bakrom koncentriše u rudama. Cink se obično nalazi u obliku polimetalčnih olovo-cinkanih ili olovo-cink-bakarnih ruda sulfidnog tipa. Sadržaj cinka u ovim rudama se obično kreće od 1 %–3 %, te ruda zahteva obogaćivanje flotacionim postupkom pri čemu nastaju koncentracije koji pored cinka sadrže i značajne količine pratećih metala: kadmijuma, olova, bakra, kobalta, nikla i drugih [4, 5]. Nakon procesa flotacije rude dobijeni koncentrat sadrži 44 %–56 % Zn i oko 31 % S [2]. Srbija ima više olovo-cinkovih rudnika čiji su koncentracije prerađivani u ovoj fabrici: Trepča, Rudnik, Vranje, Ljubovija kao i Srebrenica (BiH). Usled proširivanja proizvodnih kapaciteta tokom vremena prerađivani su i inostrani koncentracije jer domaći nisu mogli da podmiru kapacitete proizvodnje.



Slika 1: Šema elektrolitičke proizvodnje cinka u idustriji “Zorka” Šabac od 1976. do 2007. godine sa naznačenim delom (isprekidanom linijom) u kom nastaje analizirani talog.

Šematska proizvodnja elektrolitičkog cinka u hemijskoj industriji „Zorka“ Šabac prema „jarosit“ tehnologiji prikazana je na Slici 1. Hidrometalurški proces dobijanja cinka je kontinualan i izvodi se po zatvorenoj šemi u kojoj, u proizvodni proces ulazi prženac cinka, a izlaze komercijalni cink i kadmijum kao proizvodi i više otpadnih taloga i muljeva [4].

Prženac koji sadrži oko 50 % Zn podvrgava se neutralnom luženju, a dobijeni neizluženi talog, dalje, trostepenom vruće-kiselom luženju da bi što više cinka prešlo u rastvor, odnosno da bi što manje cinka otišlo na deponiju sa neizluženim talozima [2]. Pri neutralnom luženju prženca u rastvor prelaze kadmijum, bakar, arsen, antimon, nikl i kobalt. Dalji tok procesne proizvodnje zahteva prečišćavanje dobijenog rastvora (cink sulfata ($ZnSO_4$)) od ovih elemenata koji predstavlja izuzetano osetljiv hemijski proces, jer od čistoće rastvora zavisi elektrolitičko taloženje cinka i njegov kvalitet. Tipičan hemijski sastav dobijenog rastvora prikazan je u Tabeli 1 sa dozvoljenim vrednostima pratećih nečistoća u prečišćenom rastvoru. Zavisno od vrste primese, različit je i maksimalno dozvoljen sadržaj primesa. Zbog prisustva različitih primesa prečišćavanje rastvora se sprovodi dvostepeno, Slika 1. U prvom stepenu prečišćavanja rastvora kao reagensi se koriste cink-prah i oksid arsena (koncentrat arsena - As_2O_3), a u drugom stepenu cink prah uz dodatak bakar sulfata ($CuSO_4$). Pravilno razdvajanje faza nakon svakog stepena prečišćavanja veoma je bitan proces od kojeg zavisi ukupan efekat prečišćavanja.

Tabela 1: Tipičan hemijski sastav neprečišćenog rastvora od neutralnog luženja prženca [1].

Element	Sadržaj u rastvoru	Maksimalno dozvoljene nešistoće u prečišćenom rastvoru
Zn (g l^{-1})	150-160	-
Fe (mg l^{-1})	5-20	2,0
Cu (mg l^{-1})	100-500	0,2
Cd (mg l^{-1})	300-600	1,0
Ni (mg l^{-1})	5-30	0,05
Co (mg l^{-1})	10-30	1,0
As (mg l^{-1})	0,01-0,05	0,02
Sb (mg l^{-1})	0,05-0,1	0,02

U ovom istraživanju analiziran je talog od prvog prečišćavanja rastvora od neutražnog luženja prženca. Proizvodnja cinka je prekinuta 2007. godine nakon čega je u proizvodnim pogodinama zaostala određena količina ovog taloga. 2019. godine, nakon privatizacije i rušenja proizvodnih pogona, sav otpadni talog je odložen u krugu nekadašnje fabrike na otvorenom, na par stotina metada od reke Save, Slika 2, i predstavlja značajan ekološki problem. Na osnovu podataka iz procesne proizvodnje, analiziranog otpadnog taloga od prvog prečišćavanja rastvora proizvodilo se oko 275 tona mesečno, koji je predstavljao sirovinu za dalju preradu, odnosno elektrolitičku proizvodnju kadmijuma [1, 6], Slika 1.



Slika 2: Izgled otpadnog taloga od prečišćavanja rastvora od neutralnog luženja, odnosno sirovine za proizvodnju kadmijuma, odloženog na otvorenom.

Otpadna jalovina je identifikovana kao jedan od najvažnijih izvora zagađenja teškim metalima u mnogim zemljama. Teški metali su uporni i toksični zagađivači životne sredine, te otpadi ove vrste mogu uticati na povećan sadržaj teških metala u poljoprivrednom zemljištu, površinskim i podzemnim vodama i biljakama u okolnim područjima i predstavljaju veliki zdravstveni rizik za lokalno stanovništvo [5, 7].

Cilj ovog rada je ispitivanje sadržaja radioaktivnih elemenata (U-238, U-235, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137) u uzorcima taloga od prvog prečišćavanja rastvora neutralnog luženja prženca u hemijskoj industriji „Zorka“ Šabac. Cilj je i procena radijacionog rizika za radnike koji su bili u kontaktu sa ovim talogom u proizvodnim pogonima. Imajući u vidu da je među

talozima i rastvorima u procnoj proizvodnji neujednačena distribucija teških metala [4], od značaja je bilo utvrditi njihov sadržaj imajući u vidu da je ovaj otpadni talog odložen u životnu sredinu bez adekvatnih mera zaštite.

Materijal i metode

Sa gomile prikazane na Slici 2 uzeto je 10 uzorka otpodnog taloga. Uzorkovanje je izvršeno sa svih strana kako bi se dobili reprezentativni uzorci. Svi uzorci su sušeni 4 h–6 h na temperaturi od 105 °C do konstantne mase. Nakon sušenja i drobljenja uzorci su prosejavani kroz sito finoće čestica $\leq 0,5$ mm. Svi uzorci su upakovani u cilindrične plastične posude dimenzija 6,7 cm u prečniku i 6,2 cm visine i zapečaćeni voskom, kako bi se sprečio izlazak Rn-222 iz posude. Mase svih uzoraka su iznosile oko 300 g.

Metodom gama spektrometrije određene su koncentracije aktivnosti U-238, U-235, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137. Merenja svih uzoraka su vršena nakon mesec dana od zatvaranja posuda sa uzorcima, odnosno po uspostavljanju sekularne radioaktivne ravnoteže. Uzorci su analizirani IAEA TRS 295 metodom [8]. Koncentracije aktivnosti U-238 određene su na osnovu gama linija njegovih potomaka: Th-234 i Pa-234m na 63,3 keV i 1001,026 keV, respektivno. Koncentracija aktivnosti U-235 je određena iz njegovih gama linija na 143,8 keV i 163,2 keV. Koncentracije aktivnosti Ra-226 određene su na osnovu gama linija njegovih potomaka na 295,2 keV i 351,9 keV od Pb-214, zatim 609,3 keV 768,4 keV i 1764,5 keV od Bi-214. Koncentracije aktivnosti Th-232 određene su iz linija gama zračenja emitovane na 238,6 keV od Pb-212, 583,2 keV od Tl-208, i 911,2 keV i 969,1 keV od Ac-228. Koncentracije aktivnosti K-40 i Cs-137 određene su korišćenjem njihovih gama linija na 1460,8 keV i 661,7 keV, respektivno [9, 10]. Vreme prikupljanja gama spektara svih uzorka iznosilo je oko 65000 s.

Koncentracije aktivnosti analiziranih radionuklida u uzorcima taloga su izmerene pomoću HPGe gama spektrometra proizvođača Canberra, rezolucije 1,9 keV za gama liniju Co-60 na 1332 keV i relativne efikasnosti 36 %. Gama spektri su prikupljeni i analizirani korišćenjem Canberra Genie 2000 softvera. Kalibracija detektora je sprovedena u cilindričnoj geometriji korišćenjem referentnog radioaktivnog materijala homogeno distribuiranog u silikonskoj smoli zapremine $V=250$ cm³. Zaštita oko gama detektora je sačinjena od olova debljine 12 cm [9, 10]. Merne nesigurnosti date su na nivou poverenja od 95 %.

Na osnovu izmerenih vrednosti koncentracija aktivnosti radionuklida u uzorcima analiziranog taloga određene su vrednosti: gama indeksa (I_γ); jačine apsorbovane doze gama zračenja (D); godišnje efektivne doze (E) i rizika od nastanka kancera tokom života ($ELCR$) za radnike prema metodologiji opisanoj u našem prethodnom istraživanju [9]. Preporučena vrednost gama indeksa treba da bude manja od 1, što osigurava godišnju efektivnu dozu manju od 1 mSv y⁻¹ [11]. Prosečna vrednost jačine apsorbovane doze gama zračenja u svetu iznosi 59 nGy h⁻¹ [12]. Prema Direktivi Evropske unije preporučena godišnja efektivna doza iznosi 1 mSv y⁻¹ [11]. Prema izveštaju UNSCEAR prosečna vrednost $ELCR$ u svetu iznosi $0,29 \times 10^{-3}$ [12].

Nadalje su određene vrednosti glavnih teških metala: Zn, Cd i Cu koji su praćeni i tokom same procesne proizvodnje na isti način. Sadržaj Zn je određen standardnom volumetrijskom metodom SRPS B.G8.350:1986 [13], a sadržaj Cd i Cu atomskom apsorpcionom spektrofotometrijom prema standardima SRPS C.A1.363:1983 [14] i SRPS C.A1.364:1983 [15], respektivno.

Rezultati i diskusija

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti U-238, U-235, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 za 10 analiziranih uzoraka otpadnog taloga prikazane su u Tabeli 2. Izmerene vrednosti se kreću u rasponu od (5,6–17,7) Bq kg⁻¹; (27,4–42,6) Bq kg⁻¹; (5,2–8,6) Bq kg⁻¹ i (4,7–20,0) Bq kg⁻¹, za U-238, Ra-226, Th-232 i K-40, respektivno, dok su detektovane vrednosti, kod svih uzoraka, za U-235 i Cs-137: < 1 Bq kg⁻¹ i < 0,9 Bq kg⁻¹, respektivno.

Dobijene prosečne vrednosti iznose (10,7 ± 3,6) Bq kg⁻¹; (34,2 ± 5,6) Bq kg⁻¹; (6,3 ± 1,0) Bq kg⁻¹; (20 ± 5) Bq kg⁻¹ (srednja vrednost ± standardna devijacija); za U-238, Ra-226, Th-232 i K-40, respektivno. U poređenju sa prosečnim vrednostima za zemljište date u ref. [12] za U-238, Ra-226, Th-232 i K-40 dobijene prosečne vrednosti U-238 su ispod proseka; Ra-226 su oko prosečne vrednosti; Th-232 su 7 puta niže od proseka, a K-40 21 puta niže od prosečne vrednosti.

Tabela 2: Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti glavnih radionuklida u uzorcima taloga od prečišćavanja rastvora iz procesa neutralnog luženja.

Oznaka uzorka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)					
	U-238	U-235	Ra-226	Th-232	K-40	Cs-137
KT1	8,2 ± 2,4	< 1	27,4 ± 0,4	5,56 ± 0,29	13,6 ± 2,9	< 0,8
KT2	8,7 ± 2,4	< 0,8	32,2 ± 0,5	5,9 ± 0,5	11 ± 3	< 0,8
KT3	9,8 ± 2,2	< 0,6	30,2 ± 0,6	8,6 ± 0,4	4,7 ± 1,9	< 0,8
KT4	6,6 ± 2,4	< 0,7	29,3 ± 0,4	6,5 ± 0,4	20 ± 3	< 0,8
KT5	11,2 ± 2,1	< 1	38,4 ± 0,5	6,0 ± 0,3	13 ± 3	< 0,9
KT6	15,4 ± 2,8	< 0,7	41,9 ± 0,6	6,8 ± 0,8	15 ± 4	< 0,9
KT7	10,7 ± 2,1	< 0,6	30,5 ± 0,6	5,9 ± 0,5	9,5 ± 2,8	< 0,7
KT8	12,7 ± 2,5	< 0,6	40,1 ± 0,6	5,2 ± 0,4	18 ± 3	< 0,8
KT9	17,7 ± 2,9	< 0,7	42,6 ± 0,8	5,3 ± 0,4	7 ± 2	< 0,9
KT10	5,6 ± 2,7	< 0,5	29,5 ± 0,8	7,1 ± 0,4	8 ± 2	< 0,8
Raspon	5,6 - 17,7	< 1	27,4 - 42,6	5,2 - 8,6	4,7 - 20,0	< 0,9
Prosek ± SD	10,7 ± 3,6	-	34,2 ± 5,6	6,3 ± 1,0	20 ± 5	-
Prosek u zemljištu ^a	33	-	32	45	420	-

^adato u ref. [12]. SD= standardna devijacija.

Na osnovu izmerenih vrednosti za U-238 i Ra-226, uzimajući u obzir i njihove merne nesigurnosti, može se reći da ova dva radionuklida nisu u ravnoteži, što je direktna posledica tehnoloških procesa kroz koji su prethodno prošli u procesnoj proizvodnji. Izmerene vrednosti U-232 i Ra-226 su više u odnosu na vrednost u početnoj sirovini–cink sulfidnom koncentratu [9], što ukazuje na to da se u toku procesne proizvodnje akumulirala veća koncentracija aktivnosti ovih radionuklida, što može biti posledica dodavanja arsen-antimonovog (As-Sb) koncentrata u ovom stepenu prečišćavanja rastvora (Slika 1) koji ima znatno veću koncentraciju ovih radionuklida [9] i time je uticao da se to odrazi na njihov povećan sadržaj u ovom talogu. Cink-prah koji se takođe dodavao u ovom stepenu prečišćavanja rastvora sadrži koncentracije aktivnosti ovih radionuklida koje su manje od 4 Bq kg⁻¹ [9], te je mogao imati uticaj samo na snižavanje prosečne vrednosti U-238 i Ra-226, kao i Th-232 i K-40 u dobijenom talogu.

Izmerene vrednosti U-238, Ra-226, Th-232 i Cs-137 su uporedive sa vrednostima izmerenim u našem prethodnom istraživanju u otpadnom Pb-Ag talogu (Slika 1), dok su vrednosti K-40 znatno niže [9]. Izmerene vrednosti Ra-226 su znatno niže u poređenju sa sadržajem u bakarno-cinkovnoj jalovini iz Turske, dok su vrednosti za Th-232 i K-40 uporedive [16]. Izmerene vrednosti Ra-226, Th-232 i K-40 su znatno niže od izmerenih za jalovinu rude kalaja i zemljište iz Malezije [17]. U poređenju sa vrednostima za zemlju iz Indije, dobijene

vrednosti Ra-226, Th-232 i K-40 su znatno niže [18], dok su vrednosti za U-238 i Ra-226 uporedive sa sadržajem u zemljištu Vojvodine, a vrednosti Th-232 i K-40 znatno niže [19]. Izmerene vrednosti Cs-137 u talogu su niže od izmerenih za npr. zemljište u Mađarskoj [20] i Vojvodini [19].

Dobijene vrednosti: gama indeksa (I_γ), jačine apsorbovane doze gama zračenja (D), godišnje efektivne doze (E) i rizika od nastanka kancera tokom života ($ELCR$) za radnike koji su radili u pogonu lužionice sa analiziranim talogom prikazane su u Tabeli 3. Vrednosti gama indeksa za analizirane uzorke su u rasponu od 0,12 - 0,18 i daleko su niže od 1 [12].

Tabela 3: Dobijene vrednosti gama indeksa (I_γ), jačine apsorbovane doze (D), godišnje efektivne doze (E) i rizika od nastanka kancera tokom života ($ELCR$) za analizirani otpadni talog.

Oznaka uzorka	I_γ	D (nGy h ⁻¹)	E (μSv y ⁻¹)	$ELCR \times 10^{-3}$
KT1	0,124 ± 0,002	16,58 ± 0,43	20,34 ± 0,53	0,0712 ± 0,0019
KT2	0,141 ± 0,003	18,90 ± 0,52	23,18 ± 0,64	0,0811 ± 0,0022
KT3	0,145 ± 0,003	19,34 ± 0,46	23,72 ± 0,57	0,0830 ± 0,0020
KT4	0,137 ± 0,003	18,30 ± 0,47	22,44 ± 0,57	0,0785 ± 0,0020
KT5	0,162 ± 0,002	21,91 ± 0,46	26,87 ± 0,56	0,0940 ± 0,0020
KT6	0,179 ± 0,005	24,09 ± 0,69	29,54 ± 0,85	0,1034 ± 0,0030
KT7	0,134 ± 0,003	18,05 ± 0,53	22,14 ± 0,65	0,0775 ± 0,0023
KT8	0,166 ± 0,003	22,42 ± 0,51	27,49 ± 0,63	0,0962 ± 0,0022
KT9	0,171 ± 0,003	23,17 ± 0,53	28,42 ± 0,65	0,0995 ± 0,0023
KT10	0,137 ± 0,003	18,25 ± 0,53	22,38 ± 0,65	0,0783 ± 0,0023
Raspon	0,12 - 0,18	16,58 - 24,09	20,34 - 29,54	0,071 - 0,103
Prosek±SD	0,0149 ± 0,017	20,10 ± 2,43	24,7 ± 3,0	0,086 ± 0,010
Preporučena ili prosečna vrednost	< 1 ^b	59 ^c	< 1000 ^d	0,29 ^c

^bpreporučena vrednost data u ref. [12]; ^cprosečna vrednost u svetu data u ref. [12]; ^dpreporučena vrednost data u ref. [11].

Vrednosti jačina apsorbovanih doza (D) se kreću u rasponu od (16,58–24,09) nGy h⁻¹. Prosečna vrednost iznosi (20,10 ± 2,43) nGy h⁻¹ i oko 2,5 puta je niža od proseka u svetu, 59 nGy h⁻¹ [12]. Dobijene vrednosti godišnjih efektivnih doza (E) daleko su niže od preporučenih 1 mSv y⁻¹ [11] i kreću se u rasponu od (20,34–29,54) μSv y⁻¹ uz prosečnu vrednost od (24,7 ± 3,0) μSv y⁻¹. Vrednosti rizika od nastanka kancera tokom života ($ELCR$) pri radu sa ovim otpadom daleko su niže od prosečne vrednosti 0,29 × 10⁻³ [12] i kreću se u opsegu od (0,071–0,103) × 10⁻³ uz prosečnu vrednost od (0,086 ± 0,010) × 10⁻³.

Sve dobijene vrednosti (I_γ , D , E i $ELCR$) su uporedive sa onim procenjenim za izloženost otpadnom Pb-Ag talogu i EMCO mulju u istoj fabrici u našem prethodnom istraživanju [9], dok su u poređenju sa vrednostima za npr. bakarnu jalovinu iz turskog rudnika znatno niže [16]. Vrednosti jačine apsorbovane doze (D) i godišnje efektivne doze (E) su znatno niže od onih dobijenih za zemlju u blizini termoelektrane u Indiji [18] kao i za jalovinu rude kalaja i zemljište iz Malezije (što se može reći i za $ELCR$ vrednosti za uvorke iz ove zemlje) [17].

Sadržaj teških metala: Zn, Cu i Cd u analiziranom talogu prikazan je u Tabeli 4. Dobijene vrednosti Zn, Cu i Cd su u rasponu (42,0–56,1) %; (1,90–13,10) %; (2,44–5,44) %, respektivno. Prosečne vrednosti iznose 49,12 %; 6,36 %; 3,41 %, za Zn, Cu i Cd, respektivno. Prosečna vrednosti su 1.640, 630 i 11.370 puta veće od preporučenih vrednosti za zemljište od strane Svetske zdravstvene organizacije [21].

Tabela 4: Sadržaj Zn, Cu i Cd u talogu od prečišćavanja rastvora u mas. [%].

Element	Metod	Preporučena vrednoste	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Zn	Volumetrija	0,03	50,5	42,0	46,7	43,5	49,4	56,1	51,8	50,1	50,1	51,0
Cu	AAS	0,01	13,10	9,07	8,6	4,55	3,11	3,49	2,09	8,14	1,90	9,52
Cd	AAS	0,0003	5,44	2,44	2,84	2,81	3,50	3,64	3,67	2,64	3,96	3,20

AAS= Atomska apsorpciona spektrofotometrija. °preporučena vrednost za zemljište [21].

Dobijene vrednosti analiziranih teških metala su znatno više u poređenju sa njihovim sadržajem u npr. jalovini iz Cr-As-Sb rudnika iz Severne Makedonije [22] kao i jalovine olovo – cinkovne rude [5]; jalovine rude kalaja i zemljištu iz Malezije [17] i Cu-Ni jalovine iz Kine [23]. Vrednosti Cu i Zn su znatno više u poređenju izmerenim vrednostima u jalovini rude gvožđa [24]. Dobijene vrednosti su znatno više i od izmerenih vrednosti u poljoprivrednom zemljištu u blizini jalovine rudnika zlata [7], kao i od izmerenih vrednosti u jalovini polimetaličnih ruda (pirita, olovno-cinkovne rude i dr.), kao i okolnog zemljišta u Kini [25]. Drastično visoke vrednosti analiziranih teških metala u odnosu na vrednosti u drugim otpadima i zemljištu ukazuju na, potencijalno, veliko obogaćivanje zemljišta ovim metalnim zagađivačima usled spiranja tokom padavina.

Zaključak

Na osnovu izmerenih vrednosti radionuklida u otpadnom talogu od prečišćavanja rastvora za elektrolizu cinka, odloženom bez adekvatnih mera zaštite životne sredine, zaključeno je da su koncentracije aktivnosti U-238, U-235, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 bile oko, ispod ili daleko ispod prosečnih vrednosti za radionuklide u zemljištu, te se može zaključiti da ovaj otpad ne vrši prekomernu kontaminaciju zemljišta i podzemnih vodotokova radionuklidima. Radnici koji su bili u kontaktu sa ovim otpadom bili su izloženi dozi gama zračenja daleko ispod 1 mSv tokom godine. Nije ustanovljen značajan rizik od nastanka kancera tokom života pri radu sa ovim otpadom, što je posledica relativno niskog sadržaja radionuklida u ovom otpadu.

Slično kao i rudnička jalovina [5] i ova vrsta otpada se može kategorizovati kao hemijski opasan otpad usled visokog sadržaja teških metala (Zn, Cu i Cd) koji predstavljaju ozbiljnu pretnju da procesom ispiranja pod dejstvom atmosferskih padavina kontaminiraju zemljište i podzemne vodotokove i time ugroze životnu sredinu. Usled visokog sadržaja teških metala u poređenju sa drugim otpadima i vrednostima za zemljište potrebno je što pre pristupiti uklanjanju ovog otpada kako bi se rizik po životnu sredinu sveo na minimum i izvršila remedijacija zemljišta na kom se nalazi ovaj otpad.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev. br. 451-03-68/2023-14/ 200125).

Literatura

- [1] B. Nikolić. Monografija: Metalurgija cinka, Institut za hemiju, tehnologiju i metalurgiju, Beograd, 1996. ISBN:86-81405-02-0.
- [2] B. Nikolić, D. Vučurović, S. Ostojić. Monografija: Obojena metalurgija Jugoslavije na kraju XX veka. Monografija. Izdavač: Institut za hemiju, tehnologiju i metalurgiju, Beograd, 2002.

- [3] International Lead and Zinc Study Group, citirano 30.07.2023; Dostupno na: <https://www.ilzsg.org/free-access-data/>.
- [4] D. Stanojević, L.F. Petrović, M.A. Nikolić. Distribucija kobalta u procesu hidrometalurške proizvodnje cinka, *Zaštita materijala* Vol.53, No.3, 2015, 367-372, ISSN: 0351-9465.
- [5] P. Wang, Z. Sun, Y. Hu, H. Cheng. Leaching of heavy metals from abandoned mine tailings brought by precipitation and the associated environmental impact, *Science of The Total Environment* Vol. 695, 2019, 133893, ISSN:0048-9697.
- [6] D. Stanojević L. Filipović Petrović. Doprinis integrisanoj valorizaciji metala u hidrometalurgiji cinka, *Zaštita materijala* Vol.55, No.1, 2014, 11-25, ISSN: 0351-9465.
- [7] X. Hu, X. Liu, L. Qiao, S. Zhang, K. Su, Z. Qiu, X. Li, Q. Zhao, C. Yu. Study on the spatial distribution of ureolytic microorganisms in farmland soil around tailings with different heavy metal pollution, *Science of The Total Environment* Vol.775, 2021, 144946, ISSN:0048-9697.
- [8] Measurements of Radionuclides in Food and Environment, Method for Determining Gamma Emitters, IAEA Technical Reports Series No. 295, Vienna, 1989.
- [9] P. Kuzmanović, L. Filipović Petrović, J. Hansman, D. Mrđa, S. Forkapić, J. Knežević Radić. Radioactivity of raw materials and wastes from zinc production in Serbia and radiation risk for workers, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. Vol.332, 2023. 2103–2114. ISSN: 0236-5731
- [10] J. Knezevic, P. Kuzmanović, D. Mrdja, N. Todorovic, I. Bikit, J. Hansman. Estimation of absorbed gamma dose rate from granite by Monte Carlo simulation approach, *Journal of Radiological Protection* Vol. 40 No.2, 2020, 596–611, ISSN: 0952-4746.
- [11] Council Directive 2013/59/Euratom of 5 Dec. 2013. Laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom. L13, vol 57. 2014.
- [12] United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and effects of ionizing radiation. Exposures from Natural Radiation Sources, Annex B. United Nations Publication, New York, USA, 2000.
- [13] SRPS B.G8.350:1986 Ores and concentrates - Zinc concentrate - Determination of zinc content - Volumetric method, 1986.
- [14] SRPS C.A1.363:1983, Methods of chemical analysis of zinc and zinc alloys - Determination of cadmium by atomic absorption spectrophotometry, 1983.
- [15] SRPS C.A1.364:1983 Methods of chemical analysis of zinc and zinc alloys - Determination of copper by atomic absorption spectrophotometry, 1983.
- [16] A. Parmaksız, Y.Ö. Özkök, Y. Ağuş. Natural radioactivity of a copper–zinc mine with a production facility in Türkiye and radiological consequences of usage of the tailing as a concrete additive, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* Vol.332, 2023, 211–223, ISSN: 0236-5731.
- [17] M.A. Rahmat, A.F. Ismail, N.D. Rodzi, E.S. Aziman, W.M.R. Idris, T. Lihan. Assessment of natural radionuclides and heavy metals contamination to the environment: Case study of Malaysian unregulated tin-tailing processing industry,

- Nuclear Engineering and Technology, Vol.54, No.6, 2022, 2230-2243, ISSN:1738-5733.
- [18] M. Kumar, P. Kumar, R. Prajith, A. Agrawal, B.K. Sahoo. Radon exhalation potential and natural radioactivity in soil collected from the surrounding area of a thermal power plant, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* Vol.331, 2022, 2597–2607, ISSN: 0236-5731.
- [19] S. Forkapic, J. Vasin, I. Bikit, D. Mrdja, K. Bikit, S. Milić. Correlations between soil characteristics and radioactivity content of Vojvodina soil, *Journal of Environmental Radioactivity* Vol.166, 2017, 104–111, ISSN: 0265-931X.
- [20] K.Z. Szabó, B. Udvardi, Á. Horváth, Z. Bakacsi, L. Pásztor, J. Szabó, L. Laczkó, C. Szabó. Cesium-137 concentration of soils in Pest County, Hungary, *Journal of Environmental Radioactivity* Vol.110, 2012, 38–45, ISSN: 0265-931X.
- [21] World Health Organisation, Recommended health-based limits in occupational exposure to heavy metals: report of a WHO study group. Geneva, Switzerland, 1980.
- [22] T.M.C. Steiner, V.B. Erlandsson, R. Šajin, F. Melcher. Preliminary chemical and mineralogical characterization of tailings from base metal sulfide deposits in Serbia and North Macedonia, *Geologia Croatica* Vol.75, 2022, 291-302, ISSN: 1330-030X.
- [23] Z. He, Y. Xu, X. Yang, J. Shi, X. Wang, Z. Jin, D. Zhang, X. Pan. Passivation of heavy metals in copper–nickel tailings by in-situ bio-mineralization: A pilot trial and mechanistic analysis, *Science of The Total Environment*, Vol.838, No.4, 2022, 156504, ISSN:0048-9697.
- [24] G. Young, Y. Chen, M. Yang. Concentrations, distribution, and risk assessment of heavy metals in the iron tailings of Yeshan National Mine Park in Nanjing, China, *Chemosphere* Vol.271, 2021, 129546, ISSN: 0045-6535.
- [25] Z. Sun, X. Xie, P. Wang, Y. Hu, H. Cheng. Heavy metal pollution caused by small-scale metal ore mining activities: A case study from a polymetallic mine in South China, *Science of The Total Environment*, Vol.639, 2018, 217–227, ISSN:0048-9697.

**CONTENT OF RADIONUCLIDES AND HEAVY METALS IN THE WASTE
PRECIPITATE FROM THE PURIFICATION OF THE SOLUTION FOR THE
ELECTROLYSIS OF ZINC IN "ZORKA" ŠABAC**

Predrag KUZMANOVIĆ^{1,2}, Jan HANSMAN¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹,
Sofija FORKAPIĆ¹, Dušan MRĐA¹, Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹

- 1) *University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Novi Sad, Serbia*
- 2) *Academy of applied studies in Šabac, Department of medical and business-technological studies, Laboratory for Physics, Šabac, Serbia*

ABSTRACT

Hydrometallurgical production of zinc represents a set of technological processes that include: roasting of zinc sulfide concentrate, neutral leaching of the roasted concentrate, and then two-stage purification of the obtained solution from the accompanying elements Cd, Cu, Ni and Co, whereby two waste precipitates are obtained. In this paper, the precipitate from the first stage of the purification of the solution resulting from the neutral leaching of the roasted concentrate was analyzed. The activity concentration values of U-238, U-235, Ra-226, Th-232, K-40 and Cs-137 were determined, as well as the content of the main heavy metals Zn, Cu and Cd. The obtained values are around and below the average values for soil, and in terms of radioactivity, its disposal in the environment does not result in excessive contamination with radionuclides. The obtained values of the gamma index, the strength of the absorbed dose, the annual effective dose and the risk of cancer during their lifetime for workers who were in contact with this material are below the recommended, that is, the average values in the world. Also, high concentrations of heavy metals: Zn, Cu and Cd, which contaminate the environment, were found in the analyzed precipitate.

SOIL TO PLANT TRANSFER OF Cs-137, Sr-90, Ra-226, Pb-210 AND K-40 IN DIFFERENT AGRICULTURAL PRODUCTS IN CROATIA

Božena SKOKO¹, Gorana KARANOVIC¹, Tomislav ILIEVSKI¹, Ivana COHA¹,
Željko GRAHEK¹, Katja MAGDIĆ KOŠIČEK¹, Ivana SMIČIKLAS²,
Dijana PAVIČIĆ-HAMER³, Ivana TUCAKOVIC¹

- 1) *Ruđer Bošković Institute, Bijenička cesta 54, Zagreb, Croatia*
- 2) *University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences - National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, P.O. Box 552, Belgrade, Serbia*
- 3) *Ruđer Bošković Institute, G. Paliaga 5, Croatia*

Corresponding author: Božena SKOKO, bozena.skoko@irb.hr

ABSTRACT

In this study, we investigated the soil-to-plant transfer of Cs-137, Sr-90, Ra-226, Pb-210 and K-40 in different types of vegetables and fruits collected on family farms in Croatia. The difference in radionuclide distribution between different plant compartments was also investigated. Our results suggest that, in general, the transfer of selected radionuclides within studied soil/plant agricultural ecosystems is on the lower part of ranges reported by IAEA for the temperate environments. Nevertheless, for all studied radionuclides, the transfer to the fruits and vegetables peels was higher than to the pulp. Overall, observed differences in the transfer of radionuclides indicate other additional exposure pathways and mechanisms that affect radionuclide content in plants besides soil activity concentrations.

Introduction

The deposition of radionuclides on vegetation and soil represents the starting point of their transfer into the terrestrial environment and consequently food chains. For many radionuclides with medium and long half-lives, this initial deposition is the beginning of the long-term management and monitoring in the decades following nuclear and radiological accidents and incidents. Knowledge of radionuclide transfer pathways, their distribution in the environment and uptake by different plants and animals enable us to predict radionuclide fate, estimate potential exposure to humans and apply appropriate protective measures within the radiation protection system.

This study aimed to investigate differences in the soil-to-plant transfer of Cs-137, Sr-90, Ra-226, Pb-210 and K-40, as one of the key anthropogenic and naturally occurring radionuclides, to different crops (vegetables and fruits) collected on family farms located in different geographic Croatian regions. This research is conducted as a part of the Croatian Science Foundation project RiChFALL (Radioactivity in children food and novel methods for low-level activity determination, 2020. – 2024.).

Materials and Methods*Samples*

In Table 1 are presented the types of fruits and vegetables analyzed in the study and their categorization according to the plant groups and plant compartment division used by IAEA [1]. When appropriate, fruits and vegetables pulp and peel were analyzed separately.

Table 1: Type of fruits and vegetables analyzed in this study

Plant group	Plant type	Plant compartment studied	Plant group	Plant type	Plant compartment studied
Leafy vegetables	Chard Spinach Kale Cabbage	Leaves	Tubers	Potato Sweet potato	Tuber, tuber peel
Non-leafy vegetables	Zucchini Paprika Cauliflower	Fruit without peel Fruit with peel Flowers, leaves	Fruits	Apple Mandarin orange Hazelnut	Fruit, fruit peel Fruit, fruit peel Seed
Root crops	Carrot	Root, root peel	Herbs	Rosemary Immortelle	Leaves and stems Leaves and stems

Sampling and sample preparation

Soil samples were taken by auger at the same agricultural fields from which the crops were collected. Each soil sample consisted of 3-5 subsamples. The weight of collected crops ranged from several up to 10 kg (fresh mass). Crop samples were washed and where appropriate (e.g. fruit and tubers) were peeled off and cut into smaller pieces. Peeled material was kept for separate analysis. All samples were oven-dried at 80°C, milled, sieved and homogenized.

For gamma spectrometry samples were packed into cylindrical beakers (125 cm³), sealed with PVC tape and left for 3 weeks to achieve radiochemical equilibrium between ²²⁶Ra and its progenies. For the ⁹⁰Sr determination, approximately 50 g of soil and 1 kg (fresh weight) of crop samples were dried. Dried crop samples were ashed at 600°C to remove the organic matter.

Measurements

Activity concentrations of gamma emitters in soils were determined by gamma spectrometry, using the High Purity Germanium (HPGe) detector systems within a low background lead shield. For the measurements of activity concentrations in crops, the system was upgraded with active shielding (cosmic veto) to reach lower detection limits. Broad energy Germanium detector (BEGe) with a resolution of 1.95 keV at 1332 keV, and relative efficiency of 48% was used for the crop measurements. The spectra were analyzed using Genie 2000 software. Concentration activities were calculated from the 661.6 keV line for Cs-137, 1460.6 keV line for K-40, 46.5 keV for Pb-210 while Ra-226 is calculated from the lines of its progenies (Bi-214 and Pb-214). The counting time ranged from 80,000 s for soils, up to 250,000 s for crops. Efficiency calibrations were performed mathematically using Canberra's LabSOCS tool, and they were checked using gamma mix standards.

For the Sr-90 determination, Sr from soil samples was isolated by an ion exchanger, eluted with nitric acid and evaporated to dryness. The ashed residues of crops were dissolved in nitric acid, filtered and then evaporated to dryness. For both sample types, the precipitate was dissolved in 5M HNO₃ followed by strontium separation on Sr resin. After reaching radiochemical equilibrium with Y-90, Sr-90 was determined by Cherenkov counting on Quantulus GCT 6220 liquid scintillation counter (LSC) [2].

Transfer factor calculations

Transfer factors (TF) were calculated using the approach described in IAEA [1] for soil-to-plant transfer of radionuclides in temperate environments. Soil activity concentrations used for TF calculations were averages of the results for the first three upper soil layers (0-5 cm, 5-10 cm, 10-20 cm).

Results

Activity concentration was above the detection limits in 53 %, 32 %, 21 % and 100 % analysed vegetable and fruit samples, for Cs-137, Ra-226, Pb-210 and K-40, respectively. Sr-90 was above the limits of detection in all analysed samples. Differences in the transfer of radionuclides between pulp and peel fractions are shown in Figure 1 and Figure 2. In Table 2 are presented transfer factors calculated for 23 radionuclide/plant group (pulp fractions only) combinations. Where possible, calculated TF values were compared to those from different literature sources on radionuclide transfer to plants in temperate environments compiled by IAEA [1].

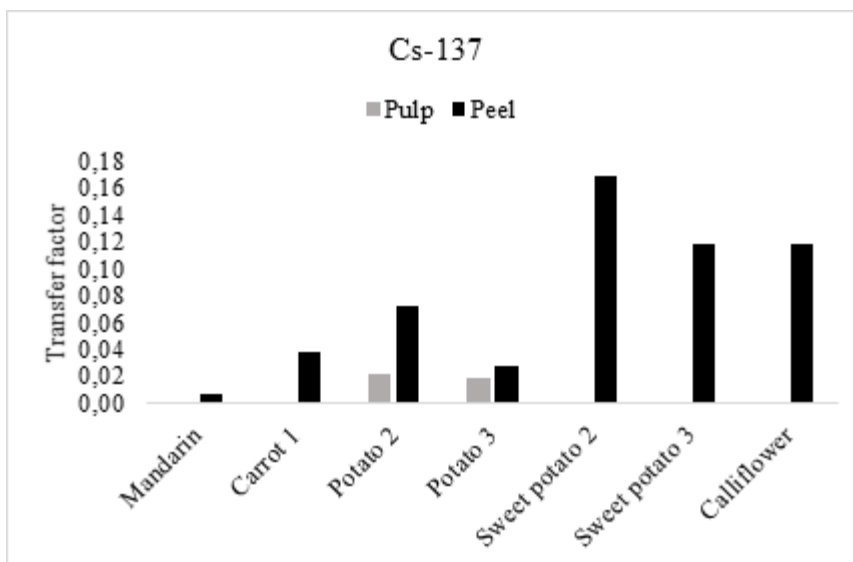


Figure 1: Comparison of Cs-137 transfer factors for pulp and peel parts of fruits and vegetables

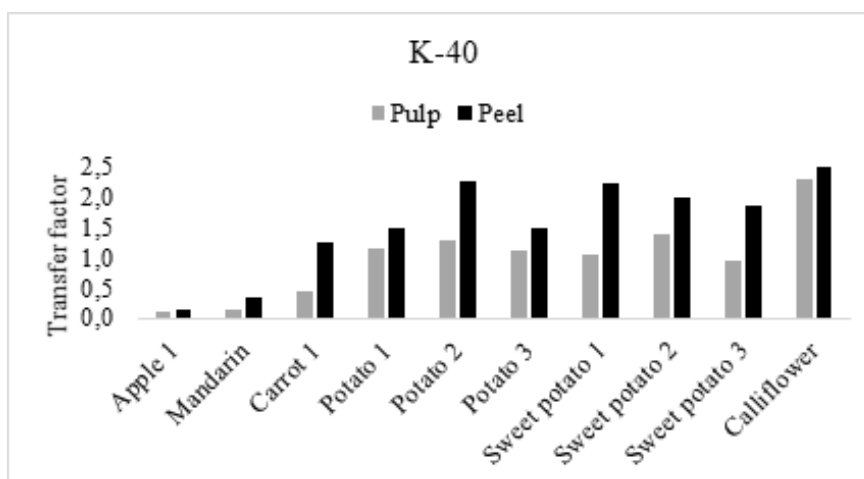


Figure 2: Comparison of K-40 transfer factors for pulp and peel parts of fruits and vegetables

Table 2: Transfer factors (TFs) of the fruits and vegetables (pulp fractions only) analysed in this study. TF values with a number of data (N) > 1 are presented by mean, minimum (Min) and maximum (Max) values. For comparison purposes mean values of TFs compiled by IAEA [1] for the radionuclide transfer to plants in temperate environments are also presentedb (soil type: all soils)

Element	Plant group	N	Our study			IAEA TRS 472	
			Mean	Min	Max	N	Mean
Cs	Leafy vegetables	2	1.09E-01	1.00E-01	1.18E-01	290	6.00E-02
	Non-leafy vegetables	2	1.75E-01	5.36E-02	2.96E-01	38	2.10E-02
	Root crops	1	5.11E-02			81	4.20E-02
	Tubers	4	1.78E-02	1.35E-02	2.17E-02	138	5.60E-02
	Fruit	1	4.26E-03			6	5.80E-03
Ra	Leafy vegetables	3	2.30E-02	9.45E-03	4.58E-02	77	9.10E-02
	Root crops	3	8.85E-02	1.99E-02	9.77E-01	60	7.00E-02
	Tubers	5	1.34E-02	7.92E-03	2.48E-02	45	1.10E-02
	Herbs	1	1.56E-02				n.d.
	Fruit	3	2.02E-03	8.38E-04	6.32E-03		n.d.
Pb	Leafy vegetables	3	1.47E-01	3.46E-02	4.16E-01	31	8.00E-02
	Herbs	2	2.17E-01	5.65E-02	3.78E-01		n.d.
K	Leafy vegetables	5	3.36E+00	1.76E+00	8.89E+00	2	1.30E+00
	Non-leafy vegetables	3	2.06E+00	1.94E+00	2.30E+00		n.d.
	Root crops	3	1.43E+00	4.52E-01	3.43E+00		n.d.
	Tubers	8	9.75E-01	4.27E-01	1.37E+00		n.d.
	Herbs	2	9.57E-01	8.78E-01	1.03E+00		n.d.
	Fruit	4	1.46E-01	7.76E-02	4.02E-01		n.d.
Sr	Leafy vegetables	3	8.44E-01	3.05E-01	1.77E+00	217	7.60E-01
	Non-leafy vegetables	3	1.46E-01	1.77E-02	5.02E-01	19	3.60E-01
	Root crops	2	6.86E-01	6.52E-01	7.20E-01	56	7.20E-01
	Tubers	4	7.10E-02	4.00E-02	1.93E-01	106	1.60E-01
	Fruit	2	1.23E-02	1.02E-02	1.49E-02	18	1.70E-02

n.d. no data

Discussion and conclusions

K-40 was the only radionuclide detected in all measured samples and also the radionuclide with the highest TFs, some of them being higher than unity. However, considering that potassium is a biogenic element, high TFs of K-40 are most likely a reflection of plant homeostasis and not bioaccumulation [3]. On the other hand, Pb-210 was below the limits of detection in the majority of samples. Therefore, for this radionuclide, it was possible to calculate TFs for only seven samples: three of them being characterized by larger surface leaves (chard, spinach and kale), two with "waxy" type of leaves (rosemary and immortelle), mandarin orange peel and sweet potato peel. These results are in line with the previous studies that indicated atmospheric deposition as the primary source of Pb-210 in plants which is usually the most pronounced in plants with significant aboveground green biomass [4,5]. However, this exposure pathway might not be significant only for Pb-210, but also for Cs-137 and Ra-226. In the cauliflower sample, these two radionuclides were below the limit

of detection in its flowers, but not in cauliflower leaves that were shadowing flowers. Another exposure pathway that might have been a cause of differences in radionuclide content in cauliflower leaves and fruits is the resuspension of soil particles.

Comparison of TF values between pulp and peels of fruits and vegetables indicated uneven radionuclide distribution between these plant compartments. These differences were observed for all studied radionuclides, except for Pb-210 due to the above-mentioned low number of available data. TF values of Cs-137, Ra-226, K-40 and Sr-90 for peels were up to 12 times higher than those for the pulp fraction (on average three times). Moreover, while the activity of Cs-137 and Ra-226 was detected in approximately 20 and 50 % of pulp samples, in peel samples they were detected in 60 and 80 % of samples, respectively (Figure 1). Discrepancies in the number of data between peel and pulp TFs were not observed for K-40 and Sr-90 (Figure 2). Causes of these differences in the radionuclide content of different plant compartments might be due to the different metabolism of these radionuclides (e.g. root epidermis might serve as a barrier for some radionuclides [6] or residual soil trapped in the peel pores which usually remains even in the case of vigorous washing after sampling (and can be also related to the size and type of soil particles) [7].

The majority of TF values obtained by our study were in the same order of magnitude as mean values reported by IAEA (Table 2). On the other hand, calculated TFs for Cs in leafy and non-leafy vegetables and Pb in leafy vegetables were approximately an order of magnitude higher than the related IAEA's mean values while TF for Sr in tubers was approximately an order of magnitude lower. Overall, calculated TF values were on the lower edge of ranges reported by IAEA [1] for studied radionuclide/plant group combinations.

Acknowledgement

This work was supported by the Croatian Science Foundation under the project IP-2019-04-1401 "Radionuclides in children's food and novel methods for low-level activity determination" (RiChFALL).

Literature

- [1] International Atomic Energy Agency, Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments, IAEA-TECDOC-1616, IAEA, Vienna (2009)
- [2] Grahek Z., Dulanska, S., Karanovic, G., Cocha, I., Tucakovic, I., Nodilo, M., Matel, L. (2018). Comparison of different methodologies for the ⁹⁰Sr determination in environmental samples. *J. Environ. Radioact.* 181, 18–31. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.10.0>
- [3] ICRP, 2009. Environmental Protection: Transfer Parameters for Reference Animals and Plants. ICRP Publication 114, Ann. ICRP 39(6)
- [4] Boryło A, Skwarzec B, Wiczorek J. (2022). Sources of Polonium ²¹⁰Po and Radio-Lead ²¹⁰Pb in Human Body in Poland. *Int. J. Environ. Res. Public Health.* 19(4):1984. doi 10.3390/ijerph19041984.
- [5] Persson BR, Holm E. (2011) Polonium-210 and lead-210 in the terrestrial environment: a historical review. *J. Environ. Radioact.* 102(5):420-9. doi: 10.1016/j.jenvrad.2011.01.005.

- [6] Černe, M., Smodiš, B., Štok, M., Jaćimović, R., (2018) Plant accumulation of natural radionuclides as affected by substrate contaminated with uranium-Mill Tailings. *Water. Air. Soil Pollut.* 229, 1–21. <https://doi.org/10.1007/s11270-018-4000-1>.
- [7] Sheppard, S.C., Evenden, W.G., 1992. Concentration enrichment of sparingly soluble contaminants (U, Th and Pb) by erosion and by soil adhesion to plants and skin. *Environ. Geochem. Health* 14, 121-131. <http://dx.doi.org/10.1007/BF01783487>
- [8] Černe, M., Smodiš, B., Štok, M., Jaćimović, R., (2018) Plant accumulation of natural radionuclides as affected by substrate contaminated with uranium-Mill Tailings.

**PRIJENOS Cs-137, Sr-90, Ra-226, Pb-210 I K-40 IZ TLA U BILJKU U RAZLIČITIM
POLJOPRIVREDNIM KULTURAMA U HRVATSKOJ**

Božena SKOKO¹, Gorana KARANOVIĆ¹, Tomislav ILIEVSKI¹, Ivana SOHA¹,
Željko GRAHEK¹, Katja MAGDIĆ KOŠIČEK¹, Ivana SMIČIKLAS²,
Dijana PAVIČIĆ-HAMER³, Ivana TUČAKOVIĆ¹

- 1) *Institut Ruđer Bošković, Bijenička cesta 54, Zagreb, Hrvatska,*
- 2) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke „Vinča” - Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Beograd, Srbija,*
- 3) *Institut Ruđer Bošković, G. Paliaga 5, Rovinj, Hrvatska*

SAŽETAK

U ovom smo radu istražili prijenos Cs-137, Sr-90, Ra-226, Pb-210 te K-40 iz tla u različite vrste povrća i voća sakupljenih na obiteljskim poljoprivrednim imanjima u Hrvatskoj. Istovremeno su istražene i razlike u prijenosu radionuklida u različite dijelove plodova. Rezultati ovog istraživanja ukazuju da je generalno prijenos radionuklida obuhvaćenih ovom studijom unutar raspona transfer faktora sugeriranih od strane IAEA za umjerena područja, ali na njihovom nižem dijelu. Unatoč nižem transferu, uočen je povišeni prijenos svih istraživanih radionuklida u kore plodova u odnosu na pulpu. Sveukupno, primjećene razlike u prijenosu radionuklida sugeriraju, osim sadržaja radionuklida u tlu, i druge mehanizme i puteve izlaganja radionuklidima, a koje utječu na njihove količine u biljkama.

РАДОН

RADON

MERENJE RADIOAKTIVNOSTI I EKSHALACIJE RADONA IZ KONCENTRATA ARSENA KORIŠĆENOG U INDUSTRIJI CINKA „ZORKA” ŠABAC

Predrag KUZMANOVIĆ^{1,2}, Sofija FORKAPIĆ¹, Jan HANSMAN¹,
Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹, Kristina DEMIRHAN¹,
Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹

- 1) *Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet, Departman za fiziku, Novi Sad*
- 2) *Akademija strukovnih studija Šabac, Odsek za medicinske i poslovno-tehnološke studije, Laboratorija za fiziku, Šabac*

Autor za korespondenciju: Predrag KUZMANOVIĆ, predrag.kuzmanovic@df.uns.ac.rs

SAŽETAK

Fabrika „Zorka“ Šabac je do devedesetih godina prošlog veka bila jedan od lidera u proizvodnji cinka čistoće 99,99 % u ovom delu Evrope po hidrometalurškom postupku. Hidrometalurški postupak obuhvatao je više složenih tehnoloških operacija i procesa, od kojih su najznačajniji neutralno luženje prženca, prečišćavanje dobijenog ZnSO₄ rastvora, a zatim elektrolitičko izdvajanje elementarnog cinka. U procesima prečišćavanja rastvora iz neutralnog luženja dodavao se arsenov koncentrat (As₂O₃) rudnika Lojane, Severna Makedonija, kako bi se taložili prateći elementi iz rastvora: Co i Ni. U ovom radu metodom gama spektrometrije izmerene su koncentracije aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 u 10 uzoraka koncentrata arsena. Imajući u vidu da su u uzorcima izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti U-238 i Ra-226 od oko 200 Bq kg⁻¹, za tri reprezentativna uzorka određene su brzine ekshalacije radona uređajem RAD7. Izmerene vrednosti Cs-137 su bile u rasponu od 0,9 – 2,4 Bq kg⁻¹, dok su vrednosti Th-232 i K-40 niže od prosečnih za zemljište.

Uvod

Arsen (As) kao element je klasifikovan kao jedan od najvećih zagađivača životne sredine od strane Američke Agencije za zaštitu životne sredine [1], koji je označen kao toksičan. Kako As, tako i antimon (Sb), kao pratilac rude arsena, je klasifikovan kao veliki zagađivač od strane iste agencije i svrstan je u grupu supstanci za koje sumnja da su kancerogene za ljude. Jedan od glavnih izvora As i Sb u životnoj sredini je otpad iz rudnika, koji sadrži znatno više od 10000 ppm arsena i antimona, oko 1000 ppm nikla, i 1700 ppm hroma kao i drugih elemenata koji svojim prisustvom kontaminiraju životnu sredinu [2 – 4].

Preradom rude primarnih minerala As i Sb, formiraju se sekundarni oksidi i oksisoli arsena i antimona. Prirodni As, sulfidi koji sadrže As (arsenopirit (FeAsS), realgar (AsS), orpiment (As₂S₃)) i sulfosoli koji sadrže As (npr. enargit (Cu₃AsS₄), tenantit (Cu₆[Cu₄(Fe,Zn)₂]As₄S₁₃)) su najrasprostranjeniji primarni minerali arsena u rudarskim područjima. Vremenske prilike kod ovih minerala arsena generalno oslobađaju arsen u životnu sredinu i na taj način potencijalno izazivaju značajnu kontaminaciju. Pored minerala arsena u rudama su prisutni i stibnit (Sb₂S₃), bravoit (((Fe, Ni, Co)S₂), vaesit (NiS₂), katijerit (CoS₂), pirit (FeS₂), markazit (FeS₂), molibdenit (MoS₂) i uraninit (UO₂) kao i raznih drugih primarnih i sekundarnih mineralnih faza [3 – 5].

Sada napušteno Sb-As-Cr ležište Lojane na severoistoku Severne Makedonije nalazi se u blizini granice sa Srbijom, između sela Lojane i Vaksince, 10 km od grada Kumanova. Rudnik je eksploatisao i prerađivao As-, Sb- i Cr rude u periodu između 1923. i 1979. godine.

Procenjuje se da je na lokaciji rudnika zaostalo oko 15.000 tona koncentrata arsena sa sadržajem arsena preko 50 % [3, 5]. U hemijskoj industriji „Zorka“ Šabac je usled njegove upotrebe u proizvodnji cinka takođe zaostala izvesna količina koncentrata arsena iz skladišta sirovina. Nakon privatizacije fabrike 2019. godine sav zaostali koncentrat arsena iz skladišta je odložen u krugu fabrike na otvorenom bez ikakvih mera zaštite kontaminirajući životnu sredinu, Slika 1. Koncentrat arsena je potpuno nezaštićen i njegova narandžasta boja ukazuje na visoku koncentraciju arsenovih sulfida. Koncentrat se sastoji pretežno od stibnita i rafinisanog „belog arsena“ (arsenolit, As_2O_3) [5].



Slika 1: Izgled gomile analiziranog koncentrata arsena (As) odloženog na otvorenom u okviru kompleksa „Zorka“ Šabac.

Cink (Zn) spada u grupu obojenih metala sa širokom primenom. U savremenoj proizvodnji cinka dominira hidrometalurški postupak. Sirovina za dobijanje cinka je uglavnom koncentrat sfaleritne rude (ZnS) koji postupkom prženja prelazi iz sulfidnog oblika u oksidni oblik ($\text{ZnS} \rightarrow \text{ZnO}$) [6]. Cink prženac se tretira u rastvoru sumporne kiseline u cilju rastvaranja najveće moguće količine cinka i ostalih korisnih metala kao što su kadmijum i bakar, a uz istovremeno odstranjivanje nečistoća. Dobijeni rastvor cink sulfata se prečišćava da bi se odstranile štetne nečistoće, kao i valorizovali metali kao što su bakar i kadmijum [6 – 8].

Sekcija prečišćavanja rastvora je dvostepena. U sekciji prvog prečišćavanja gde je doveden rastvor iz sekcije neutralnog luženja dodaje se Zn prah i koncentrat arsena (As_2O_3), koji sadrži i određen procenat antitimona (Sb_2O_3), kao suspenzije u cilju taloženja bakra, nikla i kobalta i jednog dela kadmijuma. Rastvor se zatim filtrira na ramskim filter presama. Talog sa presa se prebacuje u pogon kadmijuma, a rastvor se odvodi u sekciju drugog prečišćavanja gde se dodaje Zn prah kao suspenzija i rastvor CuSO_4 u cilju taloženja kadmijuma i ostatka kobalta, nikla i bakra. Rastvor se filtrira na ramskim filter presama [7]. Talog se dalje odvodi u pogon kadmijuma, a rastvor u skladišne tankove odakle ide na elektrolizu u halu ćelija.

U pogonu kadmijuma procesna proizvodnja započinje neutralnim luženjem taloga dobijenih iz pogona lužionice, zatim vruće-kiselim luženjem i filtriranjem dobijenih rastvora. Nakon taloženja Cd suđera i filtriranja nadalje se vrši prečišćavanje dobijenog rastvora od zaostalog Co i Ni upotrebom arsenovog koncentrata i dodatkom cink praha, dobijeni prečišćen rastvor vraća se u pogon lužionice, a talog na skladište kao otpad. Dobijenje elementarnog kadmijuma iz rastvora nakon luženja Cd suđera je takođe elektrolitičko [6, 7].

U poslednjim godinama vlada veliko interesovanje naučnika za istraživanje karakteristika rude, jalovine i arsenovog koncentrata rudnika Lojane kao velikog zagađivača životne sredine

u Severnoj Makedoniji [3, 4, 9 – 11]. Prema našim saznanjima koja se tiču koncentrata arsena poreklom iz ovog rudnika ne postoje podaci o nivou radioaktivnosti. U mnogim istraživanjima koncentrat arsena zajedno sa jalovinom iz rudnika Lojane označen je kao veliki ekološki problem se veoma ozbiljnim rizikom za zdravlje ljudi s obzirom na visoku koncentraciju otpada bogatog arsenom i antimonom i drugim pratećim elementima [3 – 5, 10], usled odlaganja na otvorenom prostoru, što predstavlja identičan ekološki problem i u Šapcu, ali manjeg obima usled manje količine otpadnog koncentrata arsena. Deponovani otpad u Šapcu se nalazi na par stotina metara od reke Save.

Cilj ovog rada je ispitivanje sadržaja glavnih radioaktivnih elemenata (U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137) u uzorcima arsenovog koncentrata koji se koristio u hemijskoj industriji „Zorka“ Šabac, a poreklom je iz rudnika i flotacije Lojane. Cilj je i procena godišnje efektivne doze za radnike i merenje ekshalacije radona iz reprezentativnih uzorka, kao i određivanje vrednosti koeficijenta emanacije radona. Ovaj rad predstavlja prvo istraživanje radioaktivnosti i ekshalacije radona arsenovog koncentrata iz rudnika Lojane, Severna Makedonija.

Materijal i metode

Merenje radioaktivnosti i procena doze

U ovom radu analizirano je 10 uzorka koncentrata arsena poreklom iz rudnika Lojane. Uzorkovanje je izvršeno sa svih strana gomile zaostalog koncentrata arsena u okvirima kompleksa „Zorka“ Šabac, prikazanog na Slici 1. Uzorci su sušeni 4-5 h na temperaturi od 105 °C do konstantne mase, zatim izdrobljeni i mleveni u kugličnom mlinu i prosejavani kroz sito granulacije $\leq 0,5$ mm nakon čega su upakovani u cilindrične plastične posude dimenzija 6,7 cm u prečniku i 6,2 cm visine i zapečaćeni voskom, kako bi se sprečio izlazak Rn-222 iz posude. Nadalje, metodom gama spektrometrije određene su koncentracije aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137. Merenja svih uzoraka su vršena nakon minimum mesec dana od zatvaranja posuda sa uzorcima. Uzorci su analizirani korišćenjem IAEA TRS 295 metode [12]. Vreme merenja svih uzorka iznosilo je oko 72000 s. Mase uzoraka su iznosile oko 300g.

Koncentracije aktivnosti U-238 određene su na osnovu gama linija njegovih potomaka: Th-234 i Pa-234m na 63,3 keV i 1001,026 keV, respektivno. Koncentracije aktivnosti Ra-226 određene su na osnovu gama linija njegovih potomaka na 295,2 keV i 351,9 keV od Pb-214, zatim 609,3 keV 768,4 keV i 1764,5 keV od Bi-214. Koncentracije aktivnosti Th-232 određene su iz linija gama zračenja emitovane na 238,6 keV of Pb-212, 583,2 keV od Tl-208, i 911,2 keV i 969,1 keV od Ac-228. Koncentracije aktivnosti K-40 i Cs-137 određene su korišćenjem njihovih gama linija na 1460,8 keV i 661,7 keV, respektivno [8, 13].

Koncentracije aktivnosti radionuklida u uzorku su izmerene korišćenjem HPGe gama spektrometra proizvođača Canberra, rezolucije 1,9 keV za gama liniju Co-60 na 1332 keV, relativne efikasnosti 36%. Kalibracija detektora je sprovedena u cilindričnoj geometriji korišćenjem referentnog radioaktivnog materijala homogeno distribuiranog u silikonskoj smoli zapremine $V=250$ cm³. Zaštita oko gama detektora je sačinjena od olova debljine 12 cm. Gama spektri su prikupljeni i analizirani korišćenjem Canberra Genie 2000 softvera [8].

Na osnovu izmerenih vrednosti koncentracija aktivnosti radionuklida u uzorcima određena je vrednost jačine apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu korišćenjem relacije (1) [14]:

$$(1) \quad D(\text{nGy h}^{-1}) = 0,462 \cdot C_{\text{Ra}} + 0,604 \cdot C_{\text{Th}} + 0,0417 \cdot C_{\text{K}}$$

gde su C_{Ra} , C_{Th} i C_K izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti Ra-226, Th-232 i K-40, respektivno, izražene u $Bq\ kg^{-1}$, dok 0,462; 0,604; 0,0417 predstavljaju specifične jačine doze gama zračenja izražene u $nGy\ h^{-1}$ po $Bq\ kg^{-1}$, za Ra-226, Th-232 i K-40, respektivno. Prosečna vrednost jačine apsorbovane doze gama zračenja u svetu iznosi $59\ nGy\ h^{-1}$ [14].

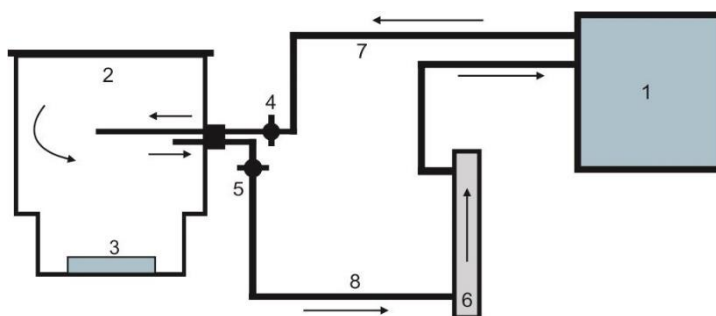
Po određenoj vrednosti jačine apsorbovane doze gama zračenja (D) može se odrediti godišnja efektivna doza za radnika koji je izložen gama zračenju iz koncentrata arsena tokom godine korišćenjem relacije (2) [8]:

$$(2) \quad E(mSv\ y^{-1}) = D(mGy\ h^{-1}) \cdot 8760(h) \cdot 0,2 \cdot 0,7 (Sv\ Gy^{-1})$$

gde je 8760 h ukupno vreme tokom jedne godine, 0,2 je faktor izloženosti (pretpostavlja se izloženost zračenju od 20 % vremena tokom godine) i $0,7\ Sv\ Gy^{-1}$ je konverzioni faktor doze. Prema Direktivi Evropske unije preporučena godišnja efektivna doza iznosi $1\ mSv\ y^{-1}$ [15].

Merenje ekshalacije radona

Nadalje su sprovedena merenja kako bi se odredio koeficijent emanacije (ε) i brzina masene ekshalacije radona (E_m) iz reprezentativnih uzoraka koncentrata arsena. Za ovu vrstu merenja odabrana su 3 uzorka sa različitim koncentracijama aktivnosti Ra-226. Korišćeni su identični uzorci kao i za gama spektrometrijska merenja. Veličina čestica sva tri uzorka je bila $\leq 0,5\ mm$. Sadržaj vlage u uzorcima je usled prethodnog sušenja bio manji od 1 %, čime je minimiziran uticaj vlage na ekshalaciju radona iz uzoraka [16]. Masa pripremljenih uzoraka bila je oko 300 g.



Slika 2: Eksperimentalna postavka korišćena za određivanje ekshalacije radona iz uzoraka arsenovog koncentrata. (1) uređaj RAD7; (2) merna komora; (3) posuda sa uzorkom; (4) i (5) slavine za puštanje radona iz komore u merni sistem; (6) apsorber vlage iz sistema i (7) i (8) plastične cevi nepropusne za radon.

Merenje ekshalacije radona izvršeno je korišćenjem aktivnog uređaja RAD7 i eksperimentalne postavke, prikazane na Slici 2. Uzorak je smešten u mernu komoru od debelog stakla sa staklenim zatvaračem i dve staklene cevi za puštanje radona u sistem. Korišćeni merni sistem je zatvorenog tipa, vazduh zajedno sa radonom cirkuliše brzinom od $0,7\ l\ min^{-1}$ zahvaljujući pumpi koja je integralni deo uređaja RAD7. Kao apsorber vlage iz sistema korišćena je kolona sa kalcijum-sulfatom ($CaSO_4$) (element broj 6 na Slici 2). Merenja su vršena u vremenskim intervalima od 96-115 h u ciklusima od po 1 h. Zapremina uzorka iznosila je oko 0,2 l, dok je efektivna zapremina sistema (računajući sve elemente sistema) bila 6,20 l, odnosno zapremina uzorka je bila manja od 10 % ukupne efektivne zapremine čime su minimizirani efekti povratne difuzije [16, 17].

Koncentracija radona $C_{Rn}(t)$ koja se akumulira tokom vremena u mernom sistemu može se izraziti pomoću relacije (3) [18]:

$$(3) \quad C_{\text{Rn}}(t) = C_0 e^{-\lambda_{\text{eff}} t} + C_{\text{eq}}(1 - e^{-\lambda_{\text{eff}} t})$$

gde je C_0 koncentracija aktivnosti ^{222}Rn (izražena u Bq m^{-3}) u mernoj komori u početnom trenutku merenja, λ_{eff} je efektivna konstanta raspada radona (koja predstavlja zbir: brzine curenja radona, povratne difuzije i konstante radioaktivnog raspada radona koja iznosi $7,6 \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$), t je vreme merenja (h), a C_{eq} je ravnotežna koncentracija radona (izražena u Bq m^{-3}) pri težnjoj vremenu merenja u beskonačnost. Funkcija iskazana relacijom (3) kao i parametri λ_{eff} i C_{eq} dobijaju se fitovanjem eksperimentalnih rezultata odnosno izmerenih koncentracija aktivnosti radona tokom vremena.

Na osnovu dobijenih vrednosti ravnotežne koncentracije radona (C_{eq}) i efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}) za dati uzorak može se odrediti koeficijent emanacije radona (ε) pomoću relacije (4) [18]:

$$(4) \quad \varepsilon = \frac{C_{\text{eq}} \cdot V_{\text{eff}}}{C_{\text{Ra}} \cdot m}$$

gde je V_{eff} efektivna zapremina vazduha u sistemu (koja obuhvata aktivnu zapreminu RAD7 uređaja i sve ostale sastavne delove mernog sistema); C_{Ra} je koncentracija aktivnosti Ra-226 izražena u Bq kg^{-1} i m je masa uzorka izražena u kg [18].

Vrednosti koeficijenta emanacije radona zavise od više parametara kao što su vrsta analiziranog materijala, gustina, veličina čestica, poroznost, kao i od temperature, atmosferskog pritiska, relativne vlažnosti i drugih fizičkih faktora [18].

Brzina masene ekshalacije radona (E_m) (izražena u $\text{Bq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}$) može se odrediti korišćenjem relacije (5) [18]:

$$(5) \quad E_m = C_{\text{Ra}} \cdot \lambda_{\text{eff}} \cdot \varepsilon$$

gde su C_{Ra} , λ_{eff} i ε : koncentracija aktivnosti Ra-226, efektivna konstanta raspada radona i koeficijent emanacije radona, respektivno.

Rezultati i diskusija

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 za 10 analiziranih uzoraka koncentrata arsena prikazane su u Tabeli 1. Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida: U-238, Ra-226, Th-232 i K-40 se kreću u rasponu od (160 - 220) Bq kg^{-1} ; (174 - 236) Bq kg^{-1} ; (3,0 - 6,5) Bq kg^{-1} i (27,8 - 43,3) Bq kg^{-1} , respektivno. Koncentracije aktivnosti veštačkog radionuklida Cs-137 se kreću u rasponu od (0,86 - 2,37) Bq kg^{-1} .

Tabela 1: Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti U-238, Ra-226, Th-232, K-40 i Cs-137 za 10 uzoraka koncentrata arsena.

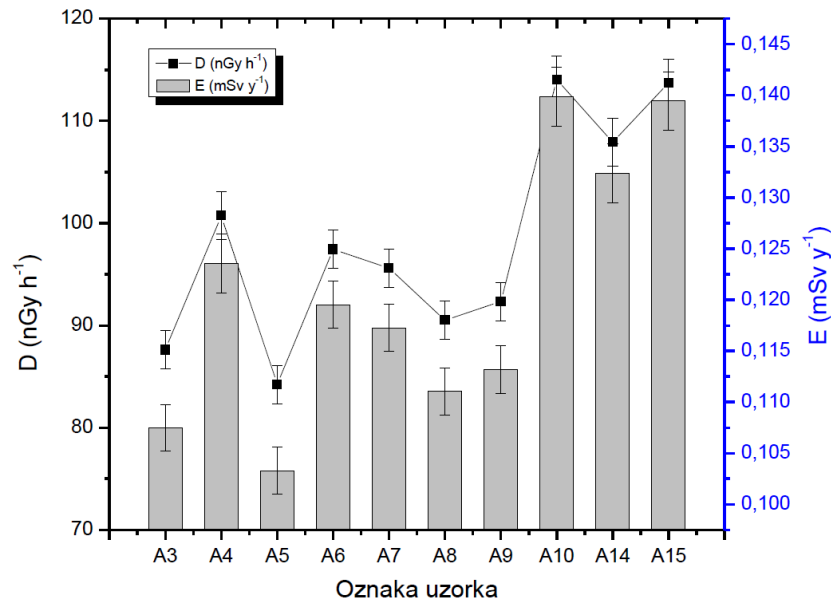
Oznaka uzorka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)				
	U-238	Ra-226	Th-232	K-40	Cs-137
A3	170 ± 20	181 ± 4	6,7 ± 0,3	38,2 ± 1,5	0,91 ± 0,09
A4	220 ± 20	210 ± 5	3,89 ± 0,20	27,8 ± 2,6	0,88 ± 0,08
A5	170 ± 20	174 ± 4	3,9 ± 0,3	31,2 ± 2,1	0,86 ± 0,08
A6	190 ± 20	203 ± 4	3,55 ± 0,25	31,5 ± 2,5	1,15 ± 0,09
A7	180 ± 30	196 ± 4	5,23 ± 0,21	40,7 ± 2,4	1,56 ± 0,09
A8	160 ± 30	188 ± 4	3,02 ± 0,29	40,0 ± 2,1	1,23 ± 0,08
A9	160 ± 30	191 ± 4	4,4 ± 0,5	29,4 ± 2,6	1,06 ± 0,09
A10	200 ± 30	234 ± 5	6,5 ± 0,3	42 ± 3	2,37 ± 0,12
A14	190 ± 30	224 ± 5	4,0 ± 0,5	43,3 ± 2,2	2,10 ± 0,08
A15	200 ± 20	236 ± 5	4,9 ± 0,3	35,7 ± 2,7	0,96 ± 0,09
Opseg	160 - 220	174 - 236	3,0 - 6,5	27,8 - 43,3	0,86 - 2,37
Srednja vr. ±SD	184 ± 19	204 ± 20	4,31 ± 0,95	36,0 ± 5,4	1,31 ± 0,51
Prosečna vr. za zemljište ^a	33	32	45	420	-

^adato u referenci [14].

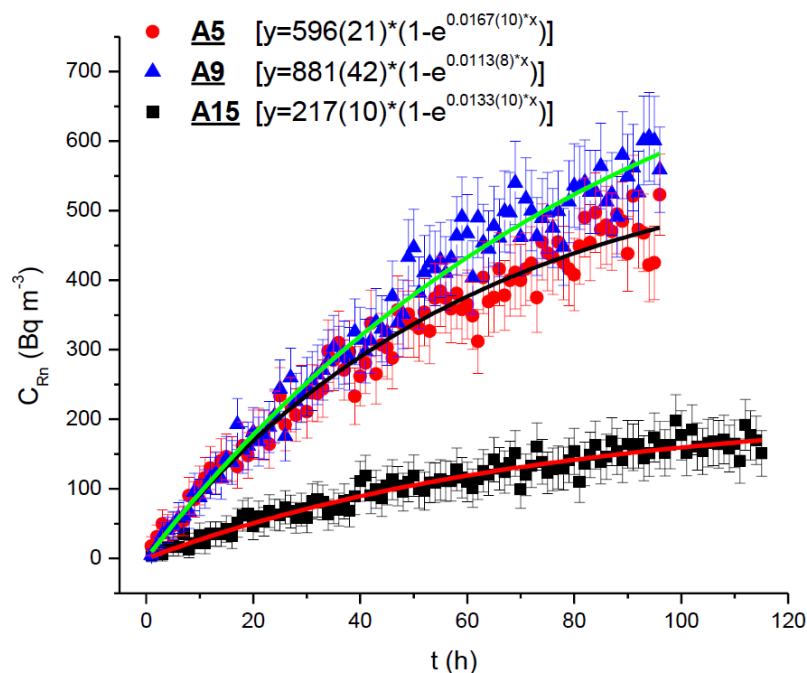
U poređenju sa prosečnim vrednostima za zemljište date u ref. [14] dobijene prosečne vrednosti U-238 i Ra-226 su 5,6 i 6,4 puta veće od prosečnih koje iznose 33 Bq kg⁻¹ i 32 Bq kg⁻¹, respektivno, dok je izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti Th-232 i K-40; 10,4 i 11,7 puta niže od prosečnih koje iznose 45 Bq kg⁻¹ i 420 Bq kg⁻¹, respektivno. Povećan sadržaj U-238 i Ra-226, se može dovesti u vezu sa već identifikovanim fazama minerala uraninita (pičblende – UO₂) u rudi Lojane [5], što je u saglasnosti sa vrednosti od 19,6 ppm uranijuma nađenog u prethodnom istraživanju jalovine [4]. Na osnovu izmerenih vrednosti za U-238 i Ra-226, uzimajući u obzir i njihove merne nesigurnosti, može se reći da su ova dva radionuklida u ravnoteži kod svih uzoraka. Izmerene vrednosti za U-238 i Ra-226 su drastično više u odnosu na ostale sirovine koje su se koristile u hemijskoj industriji „Zorka“ Šabac analizirane u našem prethodnom istraživanju [8]. Izmerene vrednosti Ra-226 su znatno više u poređenju sa sadržajem u npr. bakarno-cinkovnoj rudi iz Turske, dok su vrednosti za Th-232 i K-40 uporedive [19]. U poređenju sa vrednostima za zemlju iz Indije i Vojvodine, vrednosti Ra-226 su znatno više, dok su dobijene vrednosti Th-232 i K-40 znatno niže [20, 21]. Izmerene vrednosti Cs-137 su niže od onih izmerenih za npr. zemljište u Mađarskoj [22] i Vojvodini [21].

Dobijene vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja (*D*) prikazane su na Slici 3 i kreću se u rasponu (84 - 114) nGy h⁻¹. Prosečna vrednost iznosi (98 ± 10) nGy h⁻¹ i 1,7 puta je veća od prosečne vrednosti u svetu od 59 nGy h⁻¹ [14]. Dobijene vrednosti su uporedive sa vrednostima za zemlju u blizini termoelektrane u Indiji [20].

Vrednosti godišnjih efektivnih doza (*E*) se kreću u rasponu (0,10 - 0,14) mSv y⁻¹, Slika 3. Prosečna vrednost za 10 analiziranih uzoraka iznosi (0,121 ± 0,012) mSv y⁻¹. Sve dobijene vrednosti su ispod preporučene vrednosti u Direktivi Evropske Unije od 1 mSv y⁻¹ [15]. Dobijene vrednosti su više od procenjenih za spoljašnju izloženost radnika drugim sirovinskim materijalima korišćenim u istoj fabrici [8], a uporedive su sa vrednostima za zemlju u blizini termoelektrane u Indiji [20].



Slika 3: Vrednosti jačine apsorbovane doze gama zračenja (D) i godišnjih efektivnih doza (E) za 10 uzoraka koncentrata arsena.



Slika 4: Krive ekshalacije radona za tri reprezentativna uzorka koncentrata arsena: A5, A9 i A15.

Izmerene vrednosti akumuliranih koncentracija aktivnosti radona iz tri reprezentativna uzorka koncentrata arsena (uzorci sa oznakama A5, A9 i A15 iz Tabele 1) aktivnim uređajem RAD7 prikazane su na Slici 4. Fitovanjem dobijenih eksperimentalnih tačaka određene su ravnotežne koncentracije aktivnosti radona (C_{eq}) kao i efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}) koje su prikazane u Tabeli 2. Dobijene vrednosti koeficijenta emanacije (ε) radona pokazuju varijacije u rasponu (2,05 - 10,31) %, što je imalo uticaj i na dobijene vrednosti brzine masene ekshalacije radona (E_{m}), koje su u rasponu (64 - 222) $\text{mBq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}$, Tabela 2.

Tabela 2: Dobijene vrednosti ravnotežne koncentracije aktivnosti radona (C_{eq}), efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}), koeficijenta emanacije radona (ε), i brzine masene ekshalacije radona (E_m) za tri reprezentativna uzorka koncentrata arsena.

Oznaka uzorka	C_{eq} (Bq m ⁻³)	λ_{eff} (h ⁻¹)	ε (%)	E_m (mBq kg ⁻¹ h ⁻¹)
A5	596±21	0,0167±0,0010	6,07±0,26	176±14
A9	881±42	0,0113±0,0008	10,31±0,54	222±20
A15	217±10	0,0133±0,0010	2,05±0,10	64±6

Dobijene vrednosti koeficijenta emanacije radona su uporedive sa vrednostima dobijenim za fosfogips i prirodni gips u našem prethodnom istraživanju [23] kao i za zemlju iz Indije [20], dok su dobijene vrednosti bile više u poređenju sa vrednostima za druge vrste minerala analiziranih u istraživanju [24]. Dobijene vrednosti brzine masene ekshalacije radona (E_m) su niže od onih za fosfogips u istraživanju [25] i rude uranijuma [26], a više od vrednosti dobijenih za estonski crni pesak [27]. Takođe, dobijene vrednosti brzine masene ekshalacije radona su daleko iznad vrednosti datih za zemlju iz Indije [20, 28], a uporedive su sa rezultatima dobijenim za fosfatne stene [29].

Zaključak

U ovom radu analizirano je 10 uzoraka koncentrata arsena koji je korišćen u hemijskoj industriji. Izvršena gama spektrometrijska merenja koncentrata arsena ukazuju na povećane koncentracije aktivnosti U-238 i Ra-226 oko 6 puta u poređenju sa prosečnim vrednostima za zemlju. Pored arsena, antimona i drugih elemenata sadržanih u ovom koncentratu koji zagađuju životnu sredinu ustanovljen povećan sadržaj U-238 i Ra-226 takođe vrši dodatnu kontaminaciju životne sredine pre svega zemljišta i podzemnih vodotokova, uzimajući u obzir da je ovaj materijal trenutno odložen bez ikakvih mera zaštite. Ustanovljeno je da je ovaj sirovinski materijal imao najveći nivo radioaktivnosti u poređenju sa ostalim korišćenim u procesnoj proizvodnji cinka i kadmijuma [8].

Dobijene vrednosti godišnjih efektivnih doza ne ukazuju da je postojao povećan radijacioni rizik za spoljašnju izloženost radnika tokom godine pri radu sa ovom sirovinom. Dobijene vrednosti koeficijenta emanacije i brzine masene ekshalacije radona daju široke varijacije što ukazuje da na njihove vrednosti ne utiče samo koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra nego i njihov hemijski i mineraloški sastav koji je potrebno dodatno ispitati. Ustanovljena povećana ekshalacija radona u odnosu na zemlju mogla je doprineti nagomilavanju radona u skladištu gde se nalazio ovaj materijal i time povećati dozu zračenja za radnike od udisanja ovog gasa tokom godine.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev. br. 451-03-68/2023-14/ 200125).

Literatura

- [1] United States Environmental Protection Agency (USEPA), National primary drinking water regulations. EPA 816-F-09-004, Washington, 2009.
- [2] D. Kossoff, M.D. Welch, K.A. Hudson-Edwards. Scorodite precipitation in the presence of antimony, Chemical Geology Vol.406, 2015, 1–9, ISSN: 0009-2541
- [3] T. Đorđević, U. Kolitsch, T. Serafimovski, G. Tasev, N. Tepe, M. Stöger-Pollach, T. Hofmann, B. Boev. Mineralogy and Weathering of Realgar-Rich Tailings At a Former As-Sb-Cr Mine At Lojane, North Macedonia, The Canadian Mineralogist Vol. 57, 2019, 403-423, ISSN: 0008-4476

-
- [4] T.M.C. Steiner, V.B. Erlandsson, R. Šajin, F. Melcher. Preliminary chemical and mineralogical characterization of tailings from base metal sulfide deposits in Serbia and North Macedonia, *Geologia Croatica* Vol.75, 2022, 291-302, ISSN: 1330-030X
- [5] G. Tasev, T. Serafimovski, T. Djordjevic, B. Boev. Soil and groundwater contamination around the Lojane As-Sb mine, Republic of Macedonia. Conference proceedings of 17th International Multidisciplinary Scientific GeoConference SGEM 2017, 29 June-5 July, 2017, Albena, Bulgaria, 809–817.
- [6] D. Stanojević L. Filipović Petrović. Doprinosi integrisanoj valorizaciji metala u hidrometalurgiji cinka, *Zaštita materijala* Vol.55, No.1, 2014, 11-25, ISSN: 0351-9465
- [7] B. Nikolić. Monografija: Metalurgija cinka, Institut za hemiju, tehnologiju i metalurgiju, Beograd, 1996. ISBN:86-81405-02-0
- [8] P. Kuzmanović, L. Filipović Petrović, J. Hansman, D. Mrđa, S. Forkapić, J. Knežević Radić. Radioactivity of raw materials and wastes from zinc production in Serbia and radiation risk for workers, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. Vol.332, 2023. 2103–2114. ISSN: 0236-5731
- [9] T. Augé, G. Morin, L. Bailly, T. Serafimovsky. Platinum-group minerals and their host chromitites in Macedonian ophiolites, *European Journal of Mineralogy* Vol.29, 2017, 585–596, ISSN: 0935-1221
- [10] U. Kolitsch, T. Đordjevic, G. Tasev, T. Serafimovski, I. Boev, B. Boev, Supergene mineralogy of the Lojane Sb-As-Cr deposit, Republic of Macedonia: tracing the mobilization of toxic metals, *Geologica Macedonica* Vol.32, 2018, 95–117, ISSN: 0352-1206
- [11] D. Alderton, T. Serafimovski, L. Burns, G. Tasev. Distribution and Mobility of Arsenic and Antimony at Mine Sites in Fyr Macedonia, *Carpathian Journal of Earth and Environmental Sciences* Vol.9 No.1, 2014, 43 – 56, ISSN: 1842-4090
- [12] Measurements of Radionuclides in Food and Environment, Method for Determining Gamma Emitters, IAEA Technical Reports Series No. 295, Vienna, 1989
- [13] J. Knezevic, P. Kuzmanović, D. Mrdja, N. Todorovic, I. Bikit, J. Hansman. Estimation of absorbed gamma dose rate from granite by Monte Carlo simulation approach, *Journal of Radiological Protection* Vol. 40 No.2, 2020, 596–611, ISSN: 0952-4746
- [14] United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and effects of ionizing radiation. Exposures from Natural Radiation Sources, Annex B. United Nations Publication, New York, USA, 2000.
- [15] Council Directive 2013/59/Euratom of 5 Dec. 2013. Laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom. L13, vol 57. 2014.
- [16] P. Tuccimei, M. Moroni, D. Norcia. Simultaneous determination of ^{222}Rn and ^{220}Rn exhalation rates from building materials used in Central Italy with accumulation chambers and a continuous solid state alpha detector: Influence of particle size, humidity and precursors concentration, *Applied Radiation and Isotopes* Vol.64 No.2, 2006, 254–263, ISSN: 0969-8043

- [17] C. Samuelsson, The Closed-Can Exhalation Method for Measuring Radon, *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology* Vol.95 No.2, 1990, 167–169, ISSN: 1044-677X
- [18] P. Kuzmanović, B. Miljević, N. Todorović, S. Forkapić, I. Čeliković, L. Filipović Petrović, J. Knežević Radić. The influence of building material structure on radon emanation, *Journal of Radiological Protection* Vol.42 2022, 041508, ISSN: 0952-4746
- [19] A. Parmaksız, Y.Ö. Özkök, Y. Ağuş. Natural radioactivity of a copper–zinc mine with a production facility in Türkiye and radiological consequences of usage of the tailing as a concrete additive, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* Vol.332, 2023, 211–223, ISSN: 0236-5731
- [20] M. Kumar, P. Kumar, R. Prajith, A. Agrawal, B.K. Sahoo. Radon exhalation potential and natural radioactivity in soil collected from the surrounding area of a thermal power plant, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* Vol.331, 2022, 2597–2607, ISSN: 0236-5731
- [21] S. Forkapic, J. Vasin, I. Bikit, D. Mrdja, K. Bikit, S. Milić. Correlations between soil characteristics and radioactivity content of Vojvodina soil, *Journal of Environmental Radioactivity* Vol.166, 2017, 104–111, ISSN: 0265-931X
- [22] K.Z. Szabó, B. Udvardi, Á. Horváth, Z. Bakacsi, L. Pásztor, J. Szabó, L. Laczkó, C. Szabó. Cesium-137 concentration of soils in Pest County, Hungary, *Journal of Environmental Radioactivity* Vol.110, 2012, 38–45, ISSN: 0265-931X
- [23] P. Kuzmanović, N. Todorović, S. Forkapić, L.F. Petrović, J. Knežević, J. Nikolov, B. Miljević. Radiological characterization of phosphogypsum produced in Serbia, *Radiation Physics and Chemistry* Vol.166, 2020, 108463. ISSN: 0969-806X
- [24] S.K. Jha, P. Prusty, A. Sahu, V.S. Srivastava, M.S. Kulkarni. Study on radon (^{222}Rn) emanation coefficient and mass exhalation rate from heavy minerals of high specific gravity, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol.328 No.1, 2021, 339–346, ISSN: 0236-5731
- [25] P. Szajerski, J. Celinska, H. Bem, A. Gasiorowski, R. Anyszka, P. Dziugan. Radium content and radon exhalation rate from sulfur polymer composites (SPC) based on mineral fillers, *Construction and Building Materials* Vol.198, 2019, 390–398, ISSN: 0950-0618
- [26] I.A. Beg, P. Sahu, D.C. Panigrahi, Multivariate regression analysis to assess the ^{222}Rn exhalation rates from uranium ores and their relative contributions to the ^{222}Rn concentration in the underground uranium mine atmosphere, *Radiation Physics and Chemistry*, Vol.184, 109484, 2021, ISSN 0969-806X
- [27] A.H. Tkaczyk, R. Koch, C. Ipbüker, J.-I. Järvelill, A. Serv, Z. Sas. Correlation between radon release, radioactivity and mineralogy: a case study of Estonian black sands, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* Vol.326, 2020, 75–86, ISSN: 0236-5731
- [28] V. Duggal, R. Mehra, A. Rani. Study of radium and radon exhalation rate in soil samples from areas of northern Rajasthan, *Journal of the Geological Society of India*, Vol.86 No.3, 2015, 331–336, ISSN: 0016-7622
- [29] A. F. Saad. Radium activity and radon exhalation rates from phosphate ores using CR-39 on-line with an electronic radon gas analyzer “Alpha GUARD,” *Radiation Measurements*, Vol.43, 2008, S463–S466, ISSN: 1350-4487

**MEASUREMENTS OF RADIOACTIVITY AND RADON EXHALATION FROM
THE ARSENIC CONCENTRATE USED IN THE ZINC INDUSTRY "ZORKA"
ŠABAC**

Predrag KUZMANOVIĆ^{1,2}, Sofija FORKAPIĆ¹, Dušan MRĐA¹, Jan HANSMAN¹,
Danijel VELIMIROVIĆ¹, Kristina DEMIRHAN¹, Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹

- 1) *University of Novi Sad, Faculty of Science, Department of Physics, Novi Sad, Serbia*
- 2) *Academy of applied studies in Šabac, Department of medical and business-technological studies, Laboratory for Physics, Šabac, Serbia*

ABSTRACT

Until the 1990s, the "Zorka" Šabac factory was one of the leaders in the production of 99.99 % pure zinc in this part of Europe using the hydrometallurgical process. The hydrometallurgical process included a number of complex technological operations and processes, the most important of which are neutral leaching of the roasted zinc sulfide concentrate, purification of the obtained ZnSO₄ solution, and then electrolytic extraction of elemental zinc. Arsenic concentrate (As₂O₃) was added in the process of purifying the solution from neutral leaching in order to precipitate the following elements from the solution: Co and Ni. In this work, the activity concentrations of U-238, Ra-226, Th-232, K-40 and Cs-137 in 10 samples of arsenic concentrate were measured using the gamma spectrometry method. Bearing in mind that the measured values of U-238 and Ra-226 activity concentration in the samples were about 200 Bq kg⁻¹, the radon exhalation rates were determined for three representative samples with the RAD7 device. The measured values of Cs-137 were in the range of (0.9 – 2.4) Bq kg⁻¹, while the values of Th-232 and K-40 are lower than the average for the soil.

RADON U SREDNJIM ŠKOLAMA U CRNOJ GORIPerko VUKOTIĆ¹1) *Crnogorska akademija nauka i umjetnosti, ul. Rista Stijovića 5, Podgorica, Crna Gora**Autor za korespondenciju: Perko VUKOTIĆ, pvukotic@canu.ac.me***SAŽETAK**

Radon (Rn-222) je tokom školske godine mjereno pasivnim detektorima u 47 zgrada svih srednjih škola u Crnoj Gori. Uzorkovane su sve učionice i kancelarije u prizemlju svih škola (507 prostorija), kao i 40 prostorija na prvom spratu u 22 škole.

Na prvom spratu su koncentracije aktivnosti radona relativno niske (AM = 70 Bq/m³, MAX = 231 Bq/m³), i samo u šest prostorija veće su od 100 Bq/m³.

Statistika rezultata mjerenja u prizemlju škola pokazuje da je, za srednje vrijednosti koncentracija aktivnosti radona po zgradama škola, opseg (34 - 1053) Bq/m³, AM = 226 Bq/m³, MED = 160 Bq/m³, GM = 164 Bq/m³ i GSD = 2,14. U devet škola (19 %) je srednja koncentracija aktivnosti radona u prizemlju veća od 300 Bq/m³, dok 27 zgrada (57 %) ima bar jednu prostoriju sa koncentracijom iznad 300 Bq/m³, a pet zgrada (11 %) bar jednu prostoriju sa više od 1000 Bq/m³.

Urađena je i procjena efektivnih godišnjih doza za učenike od udisanja radona i njegovih potomaka.

Uvod

Radon i njegovi kratkoživeći potomci daju najveći doprinos efektivnoj dozi koju stanovništvo prima od prirodnih izvora zračenja [1]. Dugotrajna ekspozicija visokim nivoima radona povećava rizik nastanka kancera pluća [2].

Sa aspekta zaštite od zračenja, najvažniji radioizotop radona je Rn-222, jer predstavlja potencijalno najveći izvor radijacionog izlaganja u zgradama [3]. On potiče iz prirodnog lanca raspada U-238, koji je u životnoj sredini prisutan u stijinama, zemljištu, vodama i u građevinskom materijalu. Većina radona nastalog u tlu ostaje u mineralima stijena i tla, a manji dio emanira s mjesta nastanka, i vođen različitim transportnim mehanizmima (difuzijom, advekcijom, konvekcijom) kreće se kroz tlo prema površini, gdje ekshalira u atmosferu ili ulazi u zatvoreni prostor građevinskih objekata. U atmosferskom vazduhu on se razblažuje, i njegova koncentracija u prizemnim slojevima vazduha je tipično na nivou od 10 Bq/m³ [4]. Međutim, u vazduhu zatvorenih prostora, kao što su zgrade, radon se akumulira i može doseći koncentracije od više stotina, pa i hiljada Bq/m³.

Mnogi faktori imaju uticaja na koncentraciju radona u zgradi. Oni mogu biti svrstani u tri grupe: izvori radona, karakteristike zgrada, i navike stanara (grijanje i ventilacija prostorija, itd.). Prva grupa faktora zavisi uglavnom od geologije, zato što

su stijene i zemljište ispod zgrade obično glavni izvor radona u zgradi [3]. Druge dvije grupe faktora su antropogene, zbog čega se može reći da je hazardno izlaganje radonu u znatnoj mjeri zdravstveno pitanje antropogene životne sredine.

Materijal i metode

U okviru projekta "Istraživanje i redukcija radona u školama i vrtićima u Crnoj Gori" [5], kojeg su finansirale Međunarodna agencija za atomsku energiju i Vlada Crne Gore, radon (Rn-222) je mjereno pasivnim detektorima kontinuirano tokom čitave školske godine i u 47 zgrada svih srednjih škola u Crnoj Gori. Mjerenje je u svim učionicama, kabinetima i kancelarijama u prizemlju, ukupno u 507 prostorija. Radon je mjereno i na prvom spratu u 22 škole, u ukupno 40 prostorija. Zbog planiranog devet mjeseci dugog mjerenja i očekivanja da koncentracija aktivnosti radona u nekim prizemnim prostorijama može biti vrlo visoka, za mjerenje je odabran Radosys-ov detektor tipa RSFV. Taj detektor ima dva CR-39 čipa različitih osjetljivosti, tako da prema podacima proizvođača može mjeriti radon (Rn-222) do 80 MBq/m³, a nije osjetljiv na toron (Rn-220) i na gama zračenje. Na svakom desetom mjernom mjestu postavljana su po dva detektora u paru, jedan u blizini drugog, radi provjere tačnosti mjerenja. Tokom mjerenja izgubljeno je ili oštećeno 11 % detektora. Nakon devetomjesečnog izlaganja detektori su poslani proizvođaču, u čijoj laboratoriji je zatim rađeno nagrizanje detektora i brojanje tragova alfa čestica.

Rezultati i diskusija

Statistika rezultata mjerenja radona u 40 prostorija na prvom spratu, u 22 od 47 zgrada srednjih škola, je sledeća: AM = 70 Bq/m³, standardna greška 6,5 Bq/m³, opseg (17 - 231) Bq/m³, MED = 60 Bq/m³, GM = 60,8 Bq/m³, GSD = 1,69. Prema tome, ni u jednoj uzorkovanoj prostoriji na prvom spratu tih škola koncentracija radona nije veća od 300 Bq/m³, a samo u šest prostorija (ili 15 %) ona je veća od 100 Bq/m³. Stoga, a na osnovu podataka iz Tabele 1, može se zaključiti da problemi sa radonom postoje samo u prizemljima srednjih škola u Crnoj Gori. Tabela 1 pokazuje i da su, u prizemlju, srednje vrijednosti koncentracija radona u školama dvostruko veće nego u stambenim zgradama u Crnoj Gori [6].

Tabela 1: Karakteristike koncentracija aktivnosti radona u prizemlju srednjih škola i stanova u Crnoj Gori.

Tip zgrada	n	AM (Bq/m ³)	Stand. greška (Bq/m ³)	Medijana (Bq/m ³)	Opseg (Bq/m ³)	GM (Bq/m ³)	GMSD
Škole	47	226	32,2	160	34-1053	164	2,14
Stanovi	732	131	7,45	65	4-2321	71,4	2,88

Za škole AM u Tabeli 1 predstavlja aritmetičku sredinu srednjih devetomjesečnih koncentracija aktivnosti radona u prizemnim prostorijama pojedinačnih škola. U stambenim zgradama radon je mjereno tokom čitave godine samo u jednom stanu u prizemlju.

Tabela 2: Zgrade i prostorije škola u Crnoj Gori sa koncentracijama radona iznad 300 Bq/m³ i 1000 Bq/m³.

Zgrade sa C _{Rn,sr} ≥ 300 Bq/m ³	Zgrade sa prostorijama sa C _{Rn} ≥ 300 Bq/m ³	Zgrade sa C _{Rn,sr} > 1000 Bq/m ³	Zgrade sa prostorijama sa C _{Rn} ≥ 1000 Bq/m ³	Prostorije sa C _{Rn} > 300 Bq/m ³	Prostorije sa C _{Rn} > 1000 Bq/m ³
9 (19,1%)	27 (57,4%)	2 (4,2%)	5 (10,6%)	83 (16,4%)	12 (2,4%)

C_{Rn,sr} – srednja koncentracija aktivnosti radona za sve prostorije u prizemlju zgrade

C_{Rn} – koncentracija aktivnosti radona u prostoriji

Rezultati mjerenja pokazuju da od 47 srednjih škola u Crnoj Gori, u 27 njih (57%) postoji bar jedna prostorija u kojoj je tokom školske godine srednja koncentracija aktivnosti radona veća od 300 Bq/m³, i pet škola (11%) sa bar jednom prostorijom u kojoj je ona veća od 1000 Bq/m³ (Tabela 2).

U Tabeli 3 prikazani su podaci za devet školskih zgrada (19 %) u kojima je srednja koncentracija radona za sve prostorije u prizemlju veća ili jednaka 300 Bq/m^3 , zbog čega je u njima remedijacija radona prioritetno neophodna.

Poređenja radi, koncentracije radona u srednjim školama Crne Gore, prikazane u tabelama 1 i 2, značajno su veće od onih u geografski bliskim državama – u provinciji Leće u Italiji [7] u srednjim školama, na jugu Bugarske [8] u osnovnim i srednjim školama, kao i u osnovnim školama na jugu Srbije [9], u Republici Srpskoj [10] i u Makedoniji [11].

Tabela 3: Srednje škole sa srednjom koncentracijom radona $C_{Rn,sr} \geq 300 \text{ Bq/m}^3$.

Lokacija škole	N	$C_{Rn,sr}$ (Bq/m^3)	Opseg (Bq/m^3)	N_1	N_2
Bijelo Polje	7	299	73-931	1	0
Danilovgrad	14	1053	201-3374	13	5
Nikšić	8	353	133-970	3	0
Podgorica 1	9	728	274-2237	8	2
Podgorica 2	10	434	178-825	7	0
Podgorica 3	3	490	325-785	3	0
Podgorica 4	4	549	76-1158	2	1
Petnjica	1	396	396	1	0
Šavnik	6	1005	493-1332	6	3

N – broj prostorija u prizemlju zgrade u kojima je mjereno radon

N_1 – broj prostorija u prizemlju zgrade u kojima je $C_{Rn} > 300 \text{ Bq/m}^3$

N_2 – broj prostorija u prizemlju zgrade u kojima je $C_{Rn} > 1000 \text{ Bq/m}^3$

Godišnja efektivna doza za učenike zbog udisanja u školi radona Rn-222 i njegovih potomaka procjenjivana je prema formuli [4]:

$$(1) \quad E = C_{Rn} F d t$$

gdje je: E – efektivna doza (Sv/god), C_{Rn} – srednja devetomjesečna koncentracija aktivnosti radona (Bq/m^3); F – faktor ravnoteže (odnos ravnotežne ekvivalentne koncentracije radona i koncentracije radona), uzet sa tipičnom vrijednošću 0,4; d – dozni konverzioni faktor ($\text{Sv/Bqm}^{-3}\text{h}$); t – vrijeme (h) koje učenik provede u učionici tokom školske godine.

Na osnovu nastavnih planova za gimnazije i srednje stručne škole u Crnoj Gori, važećih za školsku 2016/17. godinu tokom koje je mjereno radon, u formuli (1) uzeto je $t = 940 \text{ h}$ godišnje za učenike gimnazija i $t = 910 \text{ h}$ godišnje za učenike srednjih stručnih škola. Za Tabelu 4, za sve srednje škole, i prosjek koncentracija radona od 226 Bq/m^3 u njima, u formuli (1) korišćeno je prosječno godišnje vrijeme koje učenik provede u školi $t = 915 \text{ h}$. Opseg E računat je za stručnu školu u Tivtu (34 Bq/m^3) sa 910 sati, a za gimnaziju u Danilovgradu (1053 Bq/m^3) sa 940 sati. U tabeli 5 date su posebno efektivne godišnje doze za učenike u školama kod kojih je srednja koncentracija radona u svim prostorijama u prizemlju zgrade $C_{Rn,sr} \geq 300 \text{ Bq/m}^3$.

Tabela 4: Efektivne godišnje doze za učenike od udisanja ^{222}Rn i njegovih potomaka u srednjim školama procijenjene na osnovu srednjih koncentracija radona $C_{\text{Rn,sr}}$ u zgradama škola.

N	$C_{\text{Rn,sr}}$ (opseg C_{Rn}) (Bq/m^3)	E_{sr} (opseg E) (mSv) UNSCEAR	E_{sr} (opseg E) (mSv) ICRP
47	226 (34 - 1053)	0,74 (0,11 - 3,56)	1,38 (0,21 - 6,63)

N – broj zgrada srednjih škola u Crnoj Gori

Za dozni konverzioni faktor UNSCEAR preporučuje vrijednost $d = 9 \text{ nSv}/(\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{h})$ [12], dok ICRP preporučuje gotovo dvostruko veću vrijednost, odnosno dozni koeficijent $Fd = 6,7 \text{ nSv}/(\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{h})$, uz pretpostavku da je $F = 0,4$ [13]. Zbog toga, procjena efektivne godišnje doze za učenike urađena je na osnovu preporuka i UNSCEAR-a i ICRP-a, a rezultati su dati u tabelama 4 i 5.

Iz Tabele 5 se vidi da u pojedinim učionicama srednje škole u Danilovgradu i škole u Podgorici 1 učenici primaju godišnju efektivnu dozu od udisanja radona i njegovih potomaka veću od 10 mSv, koju vrijednost ICRP preporučuje kao mjerilo (*benchmark*) za referentni nivo izlaganja radonu [14].

Tabela 5: Efektivne godišnje doze za učenike od ^{222}Rn u školama sa srednjom koncentracijom radona $C_{\text{Rn,sr}} \geq 300 \text{ Bq/m}^3$.

Lokacija škole	N	N_1	$C_{\text{Rn,sr}}$ (opseg C_{Rn}) (Bq/m^3)	E_{sr} (opseg E) (mSv) UNSCEAR	E_{sr} (opseg E) (mSv) ICRP
Bijelo Polje	7	1	300 (73 - 931)	1,01 (0,25 - 3,15)	1,88 (0,46 - 5,86)
Danilovgrad	14	13	1053 (201 - 3374)	3,56 (0,68 - 11,42)	6,63 (1,26 - 21,25)
Nikšić	8	3	353 (133 - 970)	1,16 (0,44 - 3,12)	2,15 (0,81 - 5,91)
Podgorica 1	9	8	728 (274 - 2237)	2,38 (0,90 - 7,33)	4,44 (1,67 - 13,64)
Podgorica 2	10	7	434 (178 - 825)	1,42 (0,58 - 2,70)	2,65 (1,08 - 5,03)
Podgorica 3	3	3	490 (325 - 785)	1,60 (1,06 - 2,57)	2,99 (1,98 - 4,79)
Podgorica 4	4	2	549 (76-1158)	1,80 (0,25-3,79)	3,35 (0,46-7,06)
Petnjica	1	1	396	1,30	2,41
Šavnik	6	6	1005 (493 - 1332)	3,29 (1,62 - 4,36)	6,13 (3,00 - 8,12)

N – broj prostorija u prizemlju zgrade u kojima je mjereno radon

N_1 – broj prostorija u prizemlju zgrade u kojima je $C_{\text{Rn}} > 300 \text{ Bq/m}^3$

Zaključak

Crna Gora ima ozbiljan problem sa radonom u srednjim školama. U 27 od ukupno 47 zgrada srednjih škola postoje prostorije u prizemlju u kojima su srednje godišnje koncentracije aktivnosti radona iznad 300 Bq/m^3 , a u pet škola neophodne su hitne intervencije u cilju smanjenja veoma visoke izloženosti radonu učenika i nastavnog osoblja u pojedinim prostorijama sa $C_{\text{Rn}} > 1000 \text{ Bq/m}^3$.

Direktori škola i ministarstva prosvjete i zdravlja morali bi imati zakonsku odgovornost za zdravlje učenika i zaposlenih u školama [14].

Zahvalnica

Mjerenja radona u školama u Crnoj Gori finansirale su Međunarodna agencija za atomsku energiju i Vlada Crne Gore. Autor je zahvalan finansijerima i svojim saradnicima na realizaciji mjerenja.

Literatura

- [1] UNSCEAR, 2006. Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. UNSCEAR 2006 Report, Volume 2, Annex E: Sources-to-effects assessment for radon in homes and workplaces. United Nations, New York.
- [2] WHO, 2009. WHO Handbook on Indoor Radon. A Public Health Perspective. World Health Organization, Geneva.
- [3] IAEA, 2015. Protection of the Public Against Exposure Indoors Due to Radon and Other Natural Sources of Radiation. IAEA Specific Safety Guide No. SSG-32. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [4] UNSCEAR, 2000. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2000 Report, Volume 1, Annex B: Exposures from natural radiation sources. United Nations, New York.
- [5] P. Vukotic, *et al.* Radon on the ground floor in the buildings of pre-university education in Montenegro. *Nukleonika*, Vol.65 No2, 2020, 53-58.
- [6] P. Vukotic, *et al.* Influence of climate, building and residential factors on radon levels in ground-floor dwellings in Montenegro. *Nucl. Technol. Radiat.* Vol36, 2021, 74-84.
- [7] R. Trevisi, *et a.* Indoor radon levels in schools of South-East Italy. *J. Environ. Radioact.*, Vol112, 2012, 160-164.
- [8] K. Ivanova, *et al.* Exposure due to radon in Bulgarian schools. *Aerosol Air Qual. Res.*, Vol22 No12, 2022, 220279.
- [9] Z.S. Zunic, *et al.* Some results of a radon survey in 207 Serbian schools. *Rom. Journ. Phys.*, Vol. 58, 2013, S320-S327.
- [10] Z. Ćurguz, *et al.* Long-term measurements of radon, thoron and their airborne progeny in 25 schools in Republic of Srpska. *J. Environ. Radioact.*, Vol148, 2015, 163-169.
- [11] Z. Stojanovska, *et al.* Results of radon CR-39 detectors exposed in schools due two different long-term periods. *Nukleonika*, Vol61, 2016, 385–389.
- [12] UNSCEAR, 2019. Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2019 Report, Annex B: Lung cancer from exposure to radon. United Nations, New York 2020.
- [13] ICRP, 2017. Occupational intakes of radionuclides: Part 3. ICRP Publication 137. *Ann. ICRP* 46(3/4).
- [14] ICRP, 2014. Radiological protection against radon exposure. ICRP Publication 126. *Ann. ICRP* 43(3).

RADON IN SECONDARY SCHOOLS IN MONTENEGROPerko VUKOTIĆ¹1) *Montenegrin Academy of Sciences and Arts, Rista Stijovića 5, Podgorica, Montenegro***ABSTRACT**

During the school year, radon (^{222}Rn) was continuously measured with passive detectors in 47 buildings of all secondary schools in Montenegro. All classrooms and offices on the ground floor (507 rooms) were sampled, as well as 40 rooms on the first floor in 22 schools.

On the first floor, the radon concentrations are relatively low (AM = 70 Bq/m³, MAX = 231 Bq/m³), and only in six rooms above 100 Bq/m³.

The statistics of the average radon concentrations on the ground floor by buildings show that it is: AM = 226 Bq/m³, range (34 - 1053) Bq/m³, MED = 160 Bq/m³, GM = 164 Bq/m³ and GSD = 2,14. The average radon concentration is higher than 300 Bq/m³ in nine schools (19 %), while 27 school buildings (57 %) have at least one room with radon concentration above 300 Bq/m³, and five buildings (11 %) have at least one room with more than 1000 Bq/m³.

An assessment of the effective annual doses for students from inhalation of radon and its progeny was also made.

RAZVOJ METODOLOGIJE ZA BRZU DIJAGNOSTIKU POVIŠENIH NIVOVA RADONA I ANALIZU GEOLOŠKIH FAKTORA U RADONOM UGROŽENIM PODRUČJIMA

Milka ZEČEVIĆ¹, Sofija FORKAPIĆ², Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ², Robert LAKATOŠ¹,
Danijel VELIMIROVIĆ², Jan HANSMAN², Dušan MRĐA², Kristina DEMIRHAN²,
Selena SAMARDŽIĆ¹, Kristina KALKAN³

- 1) *Fakultet tehničkih nauka, Univerzitet u Novom Sadu, Departman za opšte discipline u tehnici, Trg Dositeja Obradovića 6, Novi Sad*
- 2) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Departman za fiziku, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*
- 3) *Institut Biosens, Univerzitet u Novom Sadu, dr Zorana Đinđića 1, Novi Sad*

Autor za korespondenciju: Milka ZEČEVIĆ, milkaves@uns.ac.rs

SAŽETAK

Radonom ugrožena područja (Radon Priority Areas RPA) su područja u kojima se očekuje povišen radijacioni rizik od izlaganja radonu u značajnom broju boravišnih i radnih prostorija. Definisane RPA podrazumeva široku interpretaciju velikog broja podataka (za zavisnu promenljivu se uzima koncentracija radona u zatvorenom prostoru, a za nezavisne varijable izloženost gama zračenju i geološke karakteristike). U cilju razvijanja metodologije za identifikovanje RPA sproveden je veliki broj analiza u kućama Niške Banje koja potencijalno predstavlja radonom ugroženo područje na osnovu rezultata prethodnih nacionalnih programa merenja radona i naučnih istraživanja. Na osnovu geološke mape područja odabrane su lokacije na rasedima između aluvijalne i bigrene terase. Koncentracije aktivnosti radona u zatvorenom prostoru određene su metodom adsorpcije na aktivnom uglju, uzeti su uzorci zemljišta za analizu sadržaja radionuklida gama-spektrometrijskom metodom i određivanje granulacije i izvršena su dozimetrijska merenja. Izmerene su i koncentracije radona i radioaktivnost geotermalnih voda u Niškoj Banji u neposrednoj blizini ispitivanih lokacija.

Uvod

Radon je radioaktivni plemeniti gas, bez boje, mirisa i ukusa, koji nastaje alfa raspadom Ra-226 i postoji u zemljištu, vodi i vazduhu. Produkti raspada radona su kratkoživeći radioaktivni elementi alfa i beta emiteri (Po-218, Pb-214, Bi-214).

Dominantan izvor radona u kućama je geogeni radon koji potiče iz Zemlje i konstantan je u geološkom vremenskom okviru. Geološka mapa je stoga nezavisna od antropogenih faktora i može poslužiti da se identifikuju područja gde se mogu očekivati povišene koncentracije radona u zatvorenom boravišnom prostoru iz prirodnih izvora.

Osim geologije, na koncentraciju radona u boravišnom prostoru, koja je vremenski promenljiva, utiče ljudska aktivnost. Varijabilnost potiče od životnih navika, tipa konstrukcije kuće, vreme izgradnje, građevinskih materijala, spratnost i slično. Antropogeni faktori su karakteristika svake kuće pojedinačno.

Izloženost radonu je posledica akumulacije unutar ograničene zapremine, uz smanjenu ventilaciju ili bez razmene vazduha, što dovodi do inhalacije potencijalno opasne količine alfa emitera, u obliku gasa i čestica. Radon se najviše akumulira u nivoima najbližim zemljištu, kao

што su prizemlje i podrum. Na otvorenom radon se brzo razređuje što dovodi do niske koncentracije aktivnosti u atmosferi.

Merenja radioaktivnosti se prevashodno sprovode da bi se procenio nivo izloženosti stanovništva zračenju. Važno je da se odrede područja sa povećanim rizikom izlaganja radonu zbog njegovog uticaja na zdravlje. Značajna doza dolazi od kratkoživećih potomaka radona koji se deponuju na unutrašnjoj strani pluća i izazivaju oštećenja ćelija.

Da bi se odredila radonom ugrožena područja RPA neophodno je napraviti prostornu distribuciju koncentracija radona u zatvorenom prostoru i procenu njegovog potencijala na osnovu geoloških faktora. Geološki faktori uključuju: geohemijske podatke npr. sadržaj uranijuma i radijuma u zemljištu, permeabilnost zemljišta, poroznost i procent vlage u zemljištu, razlike u pritisku između zemljišta i atmosfere, temperature, itd. Oni određuju pokretljivost radona i njegov transport od izvora do površine zemlje. Direkna dozimetrijska merenja i indirektna merenja koncentracije aktivnosti radona u vazduhu, vodi i zemljištu, koja uz geološke karakteristike daju integrisane informacije koje su optimalan instrument za klasifikaciju radonom ugroženih područja.

Cilj ovog rada je procena moguće veze između različitih geoloških faktora i izmerene koncentracije aktivnosti radona, kao i razvoj metode za brzo merenje nivoa radona kako bi se predvidela dugoročna izlaganja visokim koncentracijama. Potencijalni radiološki rizik procenjen je merenjem koncentracije radona u zatvorenom i doze u vazduhu koja potiče od spoljašnje gama radijacije.

Istraživano područje

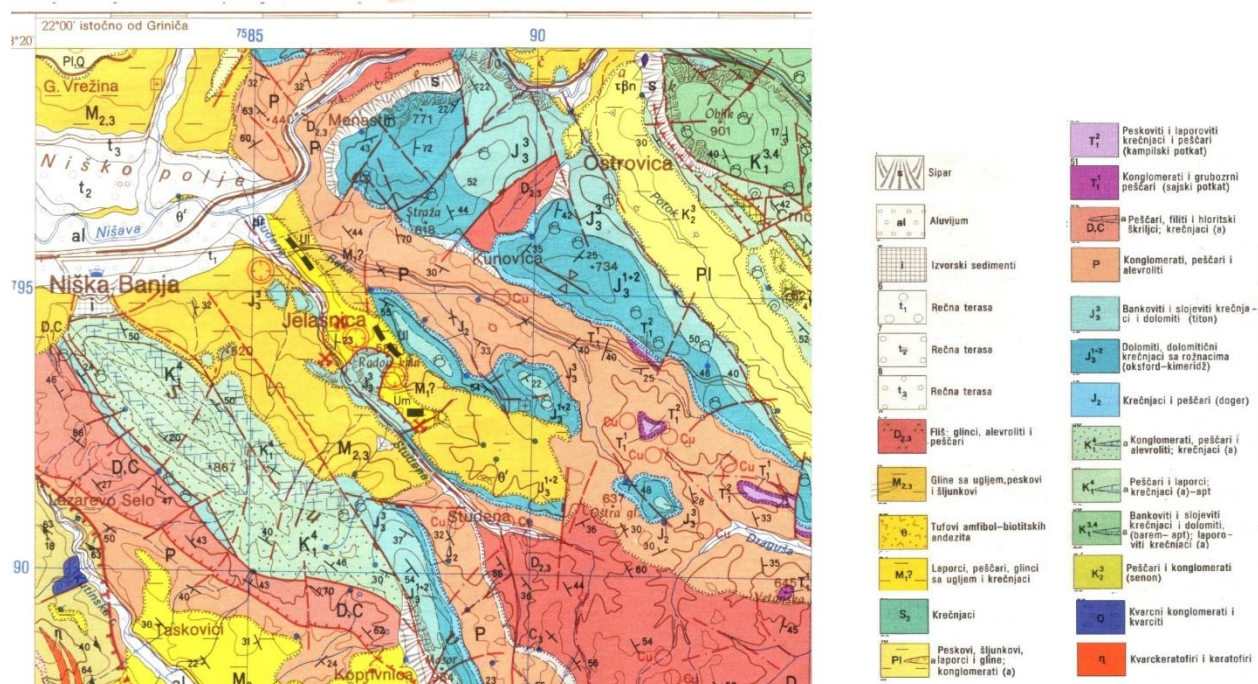
Niška Banja je dobro poznato lečilište u jugo-istočnoj Srbiji, jedina radonska banja. Niška Banja je locirana između dve geotektonske celine. Zapadni deo basena nalazi se području Srpsko-makedonske mase, a istočni na području Karpato-balkanida.

U geološkoj građi terena učestvuju metamorfne stene kambrijske i prekambrijske starosti, kao i sedimenti devonske, karbonske, permske, jurske, miocenske i kvartarne starost.

Izvori Niške Banje pripadaju karstnom tipu vrela. U sastav akvifera ulaze krečnjaci, stene koje sadrže Ca, Mg i CaCO₃.

Na osnovu geoloških i hidrogeoloških istraživanja, pretpostavlja se da termalna voda Niške banje nastaje poniranjem vode sa sliva Suve planine u litosferu gde se zagreva i ponovo izbija na površinu kroz Nišavski rased.

Na osnovu geoloških, geohemijskih, struktunih i geomorfoloških podataka kao i rezultata prethodnih istraživanja, ispitivano područje je povezano sa visokom koncentracijom aktivnosti radona.



Slika 1. Geološka mapa ispitivanog područja sa legendom [1]

Materijali i metode merenja

Koncentracije aktivnosti radona u zatvorenom merene su pasivnom metodom adsorpcije na aktivnom uglju. Ugljeni kanisteri su izlagani oko 2 dana i postavljeni uglavnom u dnevne i spavaće sobe gde ljudi provode najviše vremena. Kuće u kojima su vršena merenja pripadaju istom tipu stare gradnje, sa različitim tipovima prozora, grejanjem ili stepenom ventilacije. Nakon izlaganja kanisteri se zatvaraju i u vremenu od 3 sata uspostavlja se ravnoteža sa potomcima. Merenja su izvršena gama-spektrometrijskom metodom na osnovu intenziteta post-radonskih linija radonovih potomaka Bi-214 i Pb-214, uz korišćenje kalibracionih krivi za prinos vlage i određene efikasnosti detekcije na osnovu sertifikovanog izvora Ra-226 u istoj geometriji kanistera. Radon u zemljištu je meren aktivnom alfa-spektrometerskom metodom pomoću radonskog detektora RAD7, proizvođača Durrige USA. Čelična sonda je ubadana u zemljište do dubine od 80 cm i vazduh iz zemljišta usisavan u aktivnu zapreminu detektora. Korišćeni Grab protokol podrazumeva prikupljanje odbroja u alfa liniji prvog potomka Po-216 u četiri ciklusa po 5 min.

Korišćenje gama spektrometrije za merenje prirodne radioaktivnosti tla i vode ima višestruku primenu u ekološkom monitoringu i geološkom mapiranju. Izvršena su uzorkovanja zemljišta za određivanje sadržaja radionuklida u laboratorijskim uslovima. Uzorkovano zemljište je sušeno na 105 °C do konstantne mase. Nakon uklanjanja sitnog kamenja ili delova biljaka, uzorci su usitnjeni i homogenizovani i pakovani u cilindrične posude za merenje prečnika 67 mm i visine 30 mm. Posude se hermetički zatvaraju i merenja vrše nakon uspostavljanja radonske ravnoteže, odnosno nakon 40 dana od zatvaranja. Kako bi se postigle niske granice detekcije za pripremu uzoraka vode korišćena je jonoizmenjivačka smola Lewatit koja uklanja katjone radijuma sa efikasnošću do 100% [2].

Uzorci voda uzeti su sa javnih česmi i izvora u banji u neposrednoj blizini ispitanih kuća. Pri uzimanju uzorka potrebno je da uzorak što manje dolazi u kontakt sa vazduhom i da u bočici ne ostanu mehurići vazduha. U vodi koncentracija radona koja ne sme biti prekoračena je 100 Bq/l [3]. Koncentracija radona u vodi određena je aktivnim radonskim detektorom RAD7

korišćenjem Wat-250 protokola sa 5 min bablovanja i usisavanja radona u aktivnu komoru detektora i 4 ciklusa brojanja u A prozoru koji se odnosi na alfa čestice prvog potomka ^{216}Po . Podaci su skinuti i obrađeni pomoću CAPTURE programa sa proračunom korekcije na vlažnost unutar komore. Izvršena je korekcija na raspad za vreme proteklo od trenutka uzorkovanja do trenutka merenja i na kalibraciju instrumenta.

Dozimetrijska merenja su dobar indikator geogenog radonskog potencijala. Merenja jačine ambijentalnog ekvivalenta doze u vazduhu vršena su GM brojačem, model „Inspector Alert“ – Surface Contamination Monitor i rezultati su prikazani u $\mu\text{Sv/h}$. Spoljašnja merenja vršena su iznad relativno kompaktnog zemljišta na visini 1 m, u vreme stabilnih atmosferskih uslova i ne u ranim jutarnjim satima kada potomci radona mogu da povećaju emisiju i do 15 %. Unutrašnja merenja vršena su u zatvorenim prostorijama, na visini 1 m od poda na sredini prostorije kako bi se uočio efekat gama-zračenja od radonovih potomaka u vazduhu.

Radiaktivnost geotermalnih voda potiče dominantno od prirodnih radionuklida, ali može biti posledica antropogenog faktora (nuklearni akcidenti i testiranje nuklearnog oružja sredinom 20. veka). Merenje ukupne alfa/beta aktivnosti, aktivnosti tricijuma i stroncijuma u vodi sprovode se na niskofonskom scintilacionom brojaču Quantulus. Korišćenje LSC tehnike dozvoljava simultano merenje alfa i beta emitera sa niskim granicama detekcije. Zakonske granice za alfa i beta aktivnost u vodi su 0,1 Bq/l i 1 Bq/l, respektivno [4]. Tricijum se kontinualno stvara u životnoj sredini u interakcijama kosmičkih zraka sa atmosferskim azotom i kiseonikom, ali se ispušta u životnu sredinu kao rezultat ljudskih aktivnosti, dominantno putem nuklearnih reaktora. Gornja granica za tricijum u vodi je 100 Bq/l [3]. Stroncijum ^{90}Sr je beta emiter, koji se može naći u prirodnom okruženju, a nastaje u procesu nuklearne fisije i ima period poluraspada 28,79 godina. Određivanja sadržaja ^{90}Sr podrazumeva da se merenje vrši putem detekcije Čerenkovljevog zračenja tečnim scintilacionim brojačima [5].

Obzirom da rastvorljivost radioelemenata u vodi prati sledeći red $Ra > U > Th$ i zbog dugog perioda polu-raspada i izražene radiotoksičnosti ovog elementa, u uzorcima vode [6] analiziran je sadržaj radijuma ^{226}Ra gama-spektrometrijskom metodom i upoređen sa koncentracijom radona. Propisana granica u Srbiji za radijum u pijaćoj vodi je 0,5 Bq/l [3].

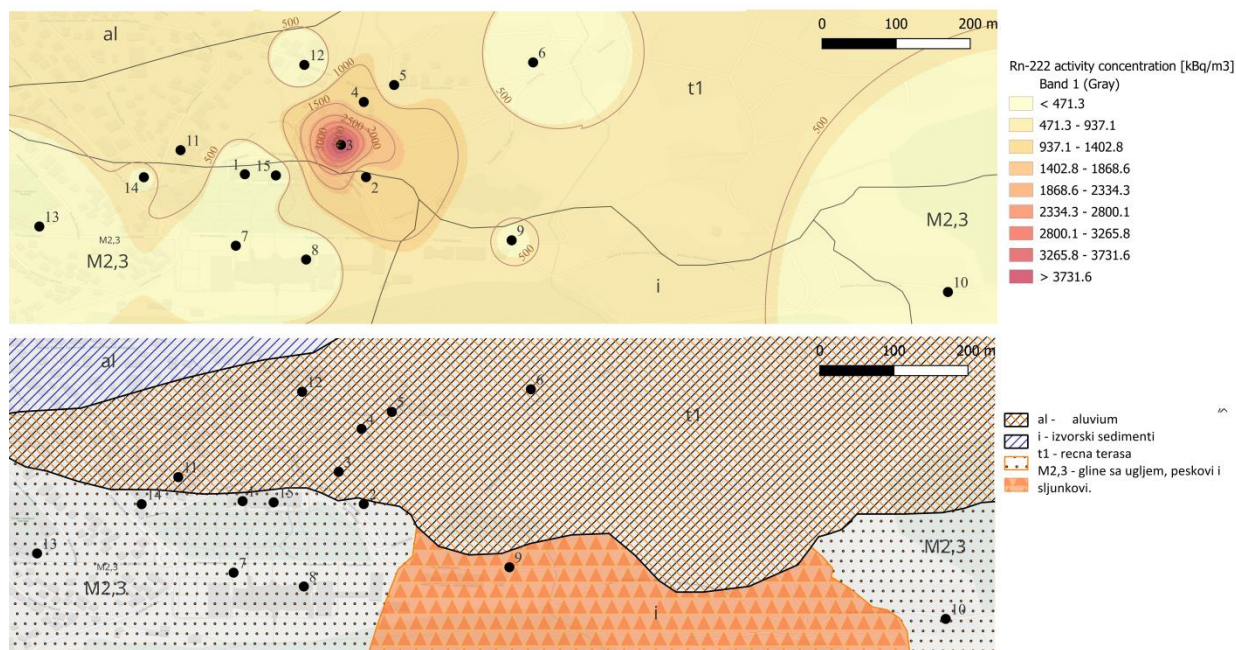
Rezultati

Rezultati merenja koncentracije aktivnosti radona u zatvorenim prostorijama u 15 ispitivanih objekata u Niškoj Banji dati su u Tabeli 1.

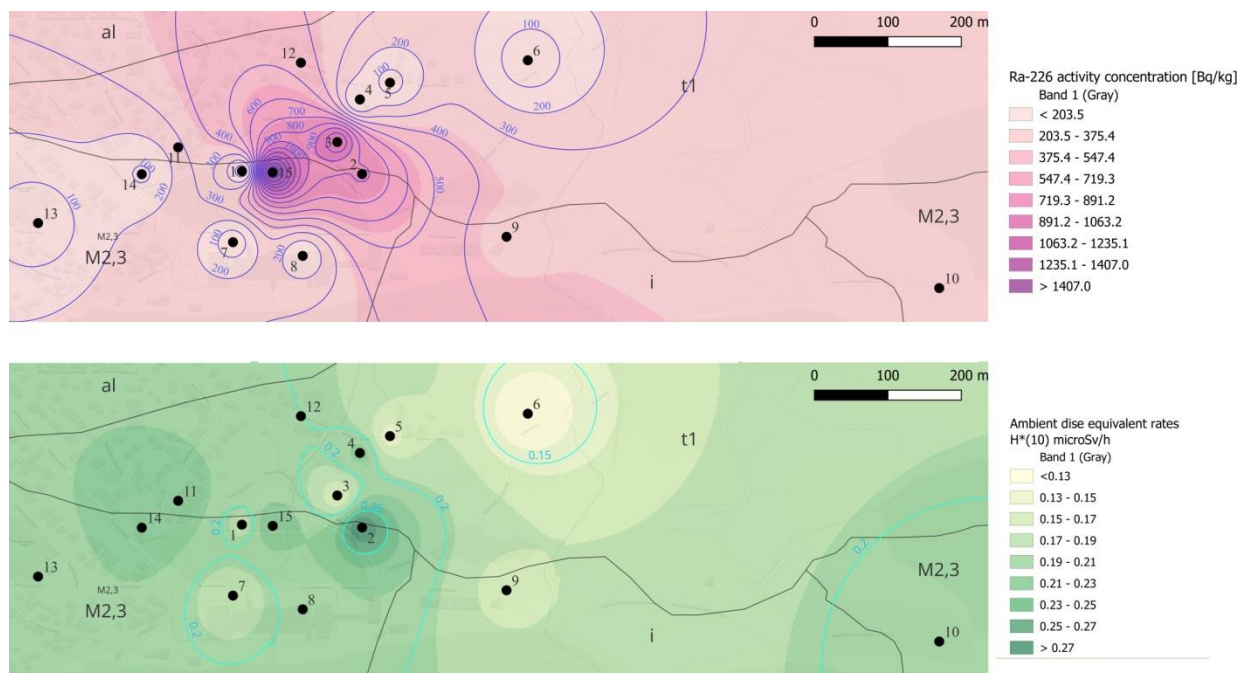
Tabela 1. Koncentracije aktivnosti radona i spoljašnja gama doza u vazduhu zatvorenih prostorija

Redni broj lokacije	H*(10) unutra [$\mu\text{Sv/h}$]	Rn-222 unutra [Bq/m^3]
1	0,168	164 \pm 5
2	0,206	1898 \pm 27
3	0,305	6798 \pm 72
4	0,181	2970 \pm 39
5	0,117	1299 \pm 24
6	0,146	683 \pm 16
7	0,173	1162 \pm 83
8	0,216	169 \pm 8
9	0,359	1720 \pm 26
10	0,221	178 \pm 7
11	0,185	1407 \pm 25
12	0,173	83 \pm 7
13	0,161	141 \pm 7
14	0,140	72 \pm 3

Prostorna distribucija koncentracije radona u zemljištu, sadržaja Ra-226 u zemljištu i jačine ambijentalnog ekvivalenta doze u vazduhu na 1 m od zemljišta prikazane su na slikama 2 i 3 i upoređene sa geološkom kartom područja u istoj rezoluciji. Mape prostornih distribucija sa naznačenim lokacijama predstavljene su primenom IDW metoda interpolacije pomocu QGIS 3.32 softvera.



Slika 2. Rn-222 u zemljištu (gore) i geološka mapa područja (dole)



Slika 3. Ra-226 u zemljištu i spoljašnja doza

U Tabeli 2 prikazani su rezultati merenja ukupne alfa i beta aktivnosti, aktivnosti tricijuma i stroncijuma, kao i aktivnost radona i radijuma u uzorcima voda.

Tabela 2. Rezultati merenja ukupne alfa i beta aktivnosti, aktivnosti tricijuma i stroncijuma, kao i aktivnost radona u uzorcima voda

Merna pozicija	A_{α} [Bq/l]	A_{β} [Bq/l]	A_{H-3} [Bq/l]	A_{Sr-90} [Bq/l]	A_{Rn-222} [Bq/l]	A_{Ra-226} [Bq/l]
Školska česma	$0,46 \pm 0,07$	$0,131 \pm 0,019$	$2,9 \pm 0,7$	$< 0,39$	380 ± 13	$0,24 \pm 0,05$
Suva banja	$0,82 \pm 0,12$	$0,101 \pm 0,015$	$< 2,1$	$< 0,39$	31 ± 3	$0,54 \pm 0,05$
Tri kralja	$0,018 \pm 0,003$	$< 0,04$	$< 2,1$	$< 0,39$	$6,9 \pm 1,6$	$< 0,015$
Kraljeva česma	$2,3 \pm 0,3$	$0,48 \pm 0,07$	$< 2,1$	$< 0,39$	100 ± 6	$1,63 \pm 0,08$

Diskusija i zaključak

Izmerene koncentracije aktivnosti radona u zemljištu u opsegu od $(5,5 \pm 1,7)$ kBq/m³ do $(4,15 \pm 0,07)$ MBq/m³ ukazuju na visok stepen varijabilnosti i pojava radonskih anomalija verovatno zbog prisutnih raseda između geoloških formacija. Visoka koncentracija radona u kućama na lokacijama je u korelaciji sa visokim geogenim potencijalom, odnosno koncentracijom radona i sadržajem radijuma u zemljištu. Prostorne distribucije geoloških faktora pokazuju dobro slaganje i ukazuju na poreklo radona. Nastavak ovog istraživanja obuhvatiće ispitivanje granulacije zemljišta i izradu geogene mape područja sa većim brojem merenja i jasnom identifikacijom RPA. Pokazano je da metoda adsorpcije na aktivnom uglju može da se koristi za brzo dijagnostifikovanje povišenih nivoa radona u kućama. Dobra korelacija sa izmerenim jačinama ambijentalnog ekvivalenta doze u vazduhu zatvorenih prostorija potvrđuje povišeno prisustvo radonovih potomaka koji su kao pozitivno naelektrisane čestice prilepljeni na aerosole i ravnomerno raspoređeni u vazduhu.

Povišena vrednost alfa aktivnosti u vodi 2,3 Bq/l potiče od povišenog sadržaja radijuma u vodi i nije u korelaciji sa koncentracijom radona u vodi. Maksimalna koncentracija aktivnosti radona izmerena je u uzorku sa Školske česme i prelazi parametarsku vrednost za radon u vodi od 100 Bq/l koja odgovara indikativnoj dozi od 0,1 mSv/god [3]. U okviru određivanja kontaminacije termalnih voda, očekuje se nizak sadržaj tricijuma. U jednom uzorku izmerena

je aktivnost tricijuma 2,9 Bq/l dok je u ostalim uzorcima ispod donje granice detekcije od 2,1 Bq/l.

U svim uzorcima aktivnost stroncijuma je ispod donje granice detekcije od 0,39 Bq/l.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev.br. 451-03-47/2023-01/200125)

Literatura

- [1] <https://geoliss.mre.gov.rs/> - Geološka mapa Srbije
- [2] W. Fan, B. Liberati, M. Novak, M. Cooper, N. Kruse, D. Young, J. Trembly: Radium-226 Removal from Simulated Produced Water Using Natural Zeolite and Ion-Exchange Resin, *Ind. Eng. Chem. Res.* Vol.55 2016, 12502–12505
- [3] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, premetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet („Službeni glasnik RS“, br.36 od 10.05.2018.godine), član 6.
- [4] Pravilnik o higijenskoj ispravnosti vode za piće („Službeni glasnik RS“, br.28 od 17.04.2019.godine), član 14.
- [5] K.C. Stamoulis, K.G. Ioannides, D.T. Karamanis, D.C. Patiris, Rapid screening of ^{90}Sr activity in water and milk samples using Čerenkov radiation, *J. Environ. Radioact.*, Vol.93, 2007, 144-156
- [6] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, *The Environmental Behavior of Radium*, IAEA Technical Reports Series 476, Vienna (2014)

**DEVELOPMENT OF METHODOLOGY FOR RAPID DIAGNOSTIC OF
ELEVATED RADON LEVELS AND ANALYSIS OF GEOLOGICAL FACTORS IN
RADON PRIORITY AREAS**

Milka ZEČEVIĆ¹, Sofija FORKAPIĆ², Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ², Robert LAKATOŠ¹,
Danijel VELIMIROVIĆ², Jan HANSMAN², Dušan MRĐA², Kristina DEMIRHAN²,
Selena SAMARDŽIĆ¹, Kristina KALKAN³

- 1) *Faculty of Technical Sciences, University of Novi Sad, Department of Fundamentals Sciences, Trg Dositeja Obradovića 6, Novi Sad*
- 2) *Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*
- 3) *Biosens Institute, University of Novi Sad, dr Zorana Đinđića 1, Novi Sad*

ABSTRACT

Radon Priority Areas RPA are areas where an increased radiation risk from exposure to radon is expected in a significant number of living and working places. Defining RPA implies a broad interpretation of a large number of data (the dependent variable is the concentration of radon indoor, and the independent variables are exposure to gamma radiation and geological characteristics). In order to develop a methodology for identifying RPA, a large number of analyzes were carried out in the houses of Niška Banja, which potentially represent a radon prone area based on the results of previous national radon measurement programs and scientific research. Based on the geological map of the area, the locations on the faults between the alluvial and bigrene terraces were selected. Concentrations of radon activity indoors were determined by the adsorption method on activated carbon, soil samples were taken for radionuclide content analysis by gamma-spectrometric method and determination of granulation, and dosimetric measurements were performed. Radon concentrations and radioactivity of geothermal waters in Niška Banja in the immediate vicinity of the investigated locations were also measured and discussed.

MERENJE KONCENTRACIJE RADONA U ZATVORENOM PROSTORU – PRIKAZ JEDNOG SLUČAJA

Vesna ARSIĆ¹, Igor ČELIKOVIĆ², Irena TANASKOVIĆ¹, Suzana BOGOJEVIĆ¹,
Jovana ILIĆ¹

- 1) *Institut za medicinu rada Srbije “Dr Dragomir Karajović”, Deligradska 29, Beograd*
- 2) *Institut za nuklearne nauke “Vinča”, Institut od nacionalnog interesa za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*

Autor za korespondenciju: Vesna ARSIĆ, vesna.arsic@institutkarajovic.rs

SAŽETAK

Laboratorija za merenje radioaktivnosti Instituta za medicinu rada Srbije “Dr Dragomir Karajović” je prvobitnim merenjem koncentracije radona pomoću kanistera sa aktivnim ugljem, u privatnoj kući na Bežanijskoj Kosi u Beogradu, ustanovila povišenu koncentraciju u novom delu kuće. U cilju utvrđivanja razloga povišene koncentracije radona, nova merenja su organizovana u još tri navrata (etape), u različitim periodima, pokrivajući sva četiri godišnja doba. Rad predstavlja prikaz ovog slučaja u kom je pored pomenute laboratorije učestvovala i Laboratorija za nuklearnu i plazma fiziku Instituta “Vinča” uz kombinovanje većeg broja metoda: merenje koncentracije radona pomoću kanistera sa aktivnim ugljem, pomoću aktivnog uređaja – alfaspektrometra, određivanje koncentracije radona na osnovu ekshalacije radona iz poda prostorije i građevinskog materijala, na osnovu merenja koncentracije radona u zemljištu, na osnovu gamaspektrometrijske analize zemljišta uzorkovanog iz dvorišta ispred kuće. Analizom dobijenih rezultata potvrđena su dosadašnja saznanja o dnevnim i sezonskim varijacijama koncentracije radona.

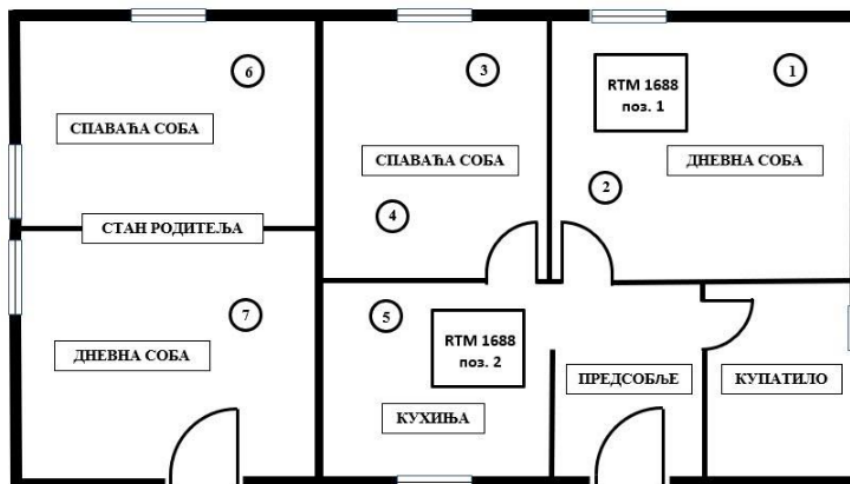
Uvod

Ovaj rad obrađuje merenja koncentracije radona u porodičnoj kući na Bežanijskoj Kosi, sprovedenih sa ciljem da se ustanove razlozi prvobitno otkrivenih povišenih vrednosti. Merenja su izvršena saradnjom dve laboratorije: Laboratorije za nuklearnu i plazma fiziku Instituta za nuklearne nauke „Vinča“ (u daljem tekstu Laboratorija NPF) i Laboratorije za ispitivanje radioaktivnosti (Odeljenje za radioekologiju), Instituta za medicinu rada „Dr Dragomir Karajović“ (u daljem tekstu Laboratorija RE). Ispitivanja su obavljena u četiri etape. U prvoj i drugoj etapi, merenja je izvršila Laboratorija RE, samostalno. U trećoj i četvrtoj etapi, merenja su izvršena saradnjom pomenute dve laboratorije. Ukupni period u kome su vršena merenja trajao je od 17.12.2021. do 02.11.2022.

Etape 1 i 2

Prvo merenje je izvršeno na zahtev vlasnika kuće M:J., 17.12.2021. Deo kuće u kome žive roditelji M.J., sagrađen je 1968. godine, a 2018. godine dozidan je novi deo kuće (skica donjeg sprata prikazana je na Slici 1). Kuća je jednospratna, bez podruma, zidana od standardnog građevinskog materijala (cigla, cigla-blok, šljaka-blok, beton, malter), sa izolacijom. Kuća je izmalterisana i zidovi su okrečeni. Pod je prekriven pločicama, parketom i laminatom. Sobe imaju PVC prozore dimenzija (2,0 X 1,5) m. Grejanje je električno. Koncentracija radona merena je pomoću kanistera sa aktivnim ugljem isključivo u prizemnim prostorijama. Za prvo merenje, izbrani su uslovi maksimalnog opterećenja, tj. sa vlasnikom je dogovoreno izlaganje ugljenih kanistera u sobama zatvorenih prozora i vrata, bez dodatne ventilacije i uz slabu upotrebu prostorija. Korisnik je postavio kanistere u 4 prostorije i nakon zatvaranja, dopremio ih je u Laboratoriju RE radi očitavanja. Pregled svih izvršenih merenja

sa rasporedom postavljanja dat je u Tabeli 1. Rezultati su pokazali povišene vrednosti u novom delu kuće (Tabela 2) i to je bio razlog za organizovanje druge faze merenja. U drugoj etapi, kanisteri su izloženi u periodu od 01.01. - 04.01.2022. Ovaj put, sa korisnikom je dogovoren manje konzervativan pristup merenju - kanisteri su izloženi uz normalno korišćenje prostorija, ali bez forsirane ventilacije. Postavljena su tri kanistera u dve prostorije (2 kanistera postavljena su u dnevnoj sobi u kojoj je, pri prethodnom merenju, izmerena povišena koncentracija). Ponovljena merenja su potvrdila prethodni nalaz – povišene vrednosti u novom delu kuće (Tabela 2) i pružila su razlog za nastavak ispitivanja.



Slika 1: Skica donjeg sprata kuće sa pozicijama postavljanja detektora i uređaja RTM 1688-2

Етапа 3

Sa kolegom iz Laboratorije NPF, dogovorena je ova faza merenja, uz kombinovanje metoda za određivanje koncentracije radona. Postavljeno je šest kanistera u tri prostorije (raspored postavljanja dat je u Tabeli 1) dok su aktivnim uređajem, RPM 1668-2 (SARAD GmbH, Nemačka) izvršena merenja brzine ekshalacije radona iz poda. Kanisteri su izloženi, po dogovoru, uz normalno korišćenje prostorija. Izvršeno je i uzorkovanje zemljišta iz dvorišta i građevinskog materijala od koga je sagrađen objekat (blok šljaka). U Laboratoriji RE, u uzorku zemljišta, određen je sadržaj radionuklida, a u Laboratoriji NPF izvršeno je merenje brzine ekshalacije radona iz uzorka građevinskog materijala.

Етапа 4

U ovoj fazi merenja, izlaganje ugljenih kanistera, izvedeno je u periodu 02.11. – 04.11.2022. godine dok je merenje alfaspektrofotometrom izvedeno 02.11.2022. godine, prilikom postavljanja kanistera. U ovoj fazi, kanisteri su bili izloženi pri zatvornim pozorima i vratima uz što manju upotrebu prostorija. Postavljeno je pet kanistera u tri prostorije (raspored prikazan u Tabeli 1). Izvršena su merenja brzine ekshalacije radona iz poda u dve prostorije novog dela kuće: dnevnoj sobi - instrument je postavljen na poziciju koja je označena kvadratom 1, na Slici 1 i u kuhinji - instrument je postavljen na poziciju koja je označena kvadratom 2 na istoj slici. Merenje koncentracije radona u zemljištu izvršeno je istim uređajem - RPM 1668-2 uz dodatak neophodne opreme, u dvorištu iza kuće.

Табела 1: Pregled svih izvršenih merenja i raspored postavljanja detektora

Lab.	Vrsta ispitivanja	Lokacija	Pozicija (Slika 1)	Lab.	Vrsta ispitivanja	Lokacija	Pozicija (Slika 1)
Prva etapa merenja (17.12.-20.12.2021.)				Druga etapa merenja (01.01.-04.01.2022.)			
RE	Adsorpcija na aktivnom uglju	Dnevna soba	1, 2	RE	Adsorpcija na aktivnom uglju	Dnevna soba	1, 2
		Spavaća soba	3, 4			Spavaća soba	3
		Stan roditelja	6,7				
Treća etapa merenja (31.05.-02.06.2022.)				Četvrta etapa merenja (02.11.-04.11.2022.)			
RE	Adsorpcija na aktivnom uglju	Dnevna soba	1	RE	Adsorpcija na aktivnom uglju	Dnevna soba	1, 2
		Spavaća soba	3, 4			Spavaća soba	3, 4
		Kuhinja	5			Kuhinja	5
		Stan roditelja	7				
	Uzorkovanje	Zemljiše			Brz. ekshalacije iz poda sobe	Dnevna soba	Kvadrat 1
NPF	Brz. ekshalacije iz poda sobe	Dnevna soba	Kvadrat 1	NPF	Brz. ekshalacije iz građ. materijala	Kuhinja	Kvadrat 2
		Kuhinja	Kvadrat 2			Laboratorija NPF	-
	Uzorkovanje	Građevinski materijal			Konc. Rn u zemlji	Dvorište	-

Metodologija i oprema

Za ispitivanje koncentracije radona u prostorijama kuće korišćena je **EPA metoda pomoću detektora sa aktivnim ugljem** [1]. Ugljeni filteri su, u skladu sa referentnim dokumentom [1], izlagani u zatvorenim prostorijama (48-72) h, postavljeni na 1 m visine od poda i zidova. Po završetku perioda izlaganja, kanisteri su zatvoreni a merenje je izvršeno nakon uspostavljanja radioaktivne ravnoteže između radona i njegovih kratkoživećih potomaka (posle 3 časa od zatvaranja) na NaI detektoru. Kalibracija detektora je vršena standardom Ra-226 uniformno raspoređenim u kanisteru standardizovanih dimenzija (proizvođač: EG&G Instruments, Cert.No. 236-4-1-2).

Gamaspektrometrijsko ispitivanje uzorka zemljišta vršeno je uz pomoć poluprovodničkog HPGe detektora proizvođača ORTEC, efikasnosti 40 % i rezolucije 1,85 na energiji 1,33 MeV (Co-60). Uzorak je pripremljen i meren po ISO metodi [2]. Kalibracija efikasnosti detektora izvršena je snimanjem spektra standardnog kalibracionog izvora - mešavina radionuklida Češkog metrološkog instituta (Cert.No. 931-OL-422/12) homogeno raspoređena u istoj geometriji u kojoj je meren i uzorak (Marinelli 0,5 l).

Brzina ekshalacije radona iz građevinskog materijala izvršena je metodom zatvorene komore [3]. Unutrašnjost komore je preko dva ventila povezana sa aktivnim uređajem RTM1688-2 koji je kontinualno merio koncentraciju radona u komori sa uzorkom. Građevinski materijal uzet sa terena, u vidu ploče, stavljen je u komoru, koja je hermetički zatvorena, nakon čega je u ravnomernim vremenskim intervalima meren porast koncentracije radona u komori. Nagomilavanje radona u komori usled ekshalacije radona iz građevinskog materijala, u slučaju dobro zatvorene komore, opisuje se [3], [4] jednačinom:

$$(1) \quad C_{Rn}(t) = \frac{E_S S}{\lambda V} (1 - e^{-\lambda t}) + C_0 e^{-\lambda t}$$

gde su: C_{Rn} - koncentracija radona u zatvorenom prostoru ($Bq\ m^{-3}$), E_S - brzina površinske ekshalacije radona iz građevinskog materijala ($Bq\ m^{-2}\ h^{-1}$), S - površina zidova prekrivena građevinskim materijalom (m^2), λ – konstanta radioaktivnog raspada radona, V - zapremina sistema koja obuhvata ukupnu zapreminu komore (korigovana na aktivnu zapreminu komore, zapreminu cevčica i zapreminu uzorka) (m^3), C_0 - spoljašnja koncentracija radona ($Bq\ m^{-3}$). Za kratak interval merenja, površinska brzina ekshalacije radona se dobija linearnim fitom krive nagomilavanja

Za merenja koncentracije radona u zemljištu, korišćen je, takođe uređaj RTM 1688-2, uz dodatak šuplje čelične šipke tj. sonde dužine 1,5 m, koja se čeličnim čekićem pobija u zemlju na dubinu od 1 m. Gornji kraj šipke se sa gumenim crevom povezuje sa uređajem. Uz pomoć pumpe, vazduh se isisava i ubacuje u mernu komoru detektora. Posle završenog jednog ciklusa merenja dobija se odbroj u svim kanalima detektora ponaosob.

Rezultati i diskusija

Merenje koncentracije aktivnosti radona pomoću kanistera sa aktivnim ugljem

Tabela 2 prikazuje rezultate merenja koncentracije radona ($Bq\ m^{-3}$) u prostorijama tokom prve dve etape merenja. Pokazalo se da su povišene koncentracije aktivnosti izmerene u dnevnoj sobi. Dok se u prvoj etapi merenja, razlog tome mogao tražiti u načinu izlaganja (forsirano nakupljanje radona zbog zatvorenih prozora i vrata), u drugoj etapi merenja prostorije su se koristile normalno, i veća vrednost u dnevnoj sobi nije se mogla rastumačiti. Maksimalna vrednost od $451\ Bq\ m^{-3}$ izmerena je kanisterom na polici bliže vratima (pozicija 2, Slika 1). Osim pretpostavke, da je slaba “tačka” za ulazak radona pregradni zid između novog i starog dela kuće, drugi uzročnici za povišene koncentracije nisu uočeni. Da bi se problem razrešio, kao što je rečeno, dogovoreno je ponavljanje merenja uz uključivnje aktivnog uređaja i saradnika iz NPF Laboratorije.

Tabela 2: Koncentracije aktivnosti radona ($Bq\ m^{-3}$) u prve dve etape merenja

Etapa 1*			Etapa 2**		
Lokacija	Pozicija na Slici 1	C_{Rn} ($Bq\cdot m^{-3}$)	Lokacija	Pozicija na Slici 1	C_{Rn} ($Bq\cdot m^{-3}$)
Dnevna soba	2	760 ± 10	Dnevna soba	1	374 ± 6
	1	807 ± 10		2	451 ± 7
Spavaća soba	4	250 ± 7	Spavaća soba	3	253 ± 5
	3	146 ± 5		/	/
Dnevna soba roditelja	7	95 ± 5	-	-	-
Spavalca soba roditelja	6	81 ± 5	-	-	-

* - zatvoreni prozori i vrata, ** - normalno korišćenje prostorija.

Tabela 3 prikazuje rezultate merenja koncentracije radona u trećoj i četvrtoj etapi. U trećoj etapi, uz normalno korišćenje prostorija tokom izlaganja kanistera, rezultati merenja pokazuju da se vrednosti koncentracije radona kreću unutar granica dozvoljenog. Samo je u kuhinji izmerena blago povišena vrednost ($311\ Bq\ m^{-3}$). Stan roditelja, pod istim uslovima, imao je ponovo značajno niže vrednosti. U spavaćoj sobi, na poziciji 4 (Slika 1), bliže kuhinji,

izmerena je veća vrednost, pa se iz ta dva razloga, sumnjalo da je kuhinja kritično mesto za propuštanje radona. Postavljen je uređaj RPM 1668-2 na poziciju 2 (Slika 1) u kuhinji (i na poziciju 1, u dnevnoj sobi) i merena je brzina ekshalacije radona iz poda. Ovo merenje pokazalo je niske vrednosti i nije potvrdilo iskazanu pretpostavku. Da bi se došlo do odgovora o razlozima, dogovorena je četvrta etapa merenja. Ovom prilikom (u okviru treće etape), uzorkovano je zemljište za gamaspektrometrijsku analizu i blok-šljaka od kog je dozidan novi deo kuće radi merenja brzine ekshalacije radona iz građevinskog materijala.

Tabela 3: Koncentracije aktivnosti radona ($Bq\ m^{-3}$) u trećoj i četvrtoj etapi merenja

Etapa 3**			Etapa 4*		
Lokacija	Pozicija na Slici 1	CRn ($Bq\cdot m^{-3}$)	Lokacija	Pozicija na Slici 1	CRn ($Bq\cdot m^{-3}$)
Dnevna soba	1	177 ± 7	Dnevna soba	1	934 ± 9
	2	/		2	874 ± 9
Spavaća soba	4	268 ± 7	Spavaća soba	4	760 ± 9
	3	186 ± 5		3	853 ± 10
Kuhinja	5	311 ± 8	Kuhinja	5	796 ± 9
Spavaća soba roditelja	6	72 ± 5	-	-	-
Dnevna soba roditelja	7	81 ± 5	-	-	-

* - zatvoreni prozori i vrata, ** - normalno korišćenje prostorija.

U četvrtoj etapi (Tabela 3, desna strana), rezultati izvršenih merenja pokazali su povišene koncentracije aktivnosti na svih 5 mernih mesta. Maksimalna vrednost ($934\ Bq\ m^{-3}$) izmerena je u dnevnoj sobi, bliže prozoru (pozicija 1 na Slici 1). U ovoj etapi merenje je izvršeno u uslovima maksimalnog opterećenja (zatvoreni prozori i vrata, isključena ventilacija uz minimalno korišćenje prostorija tokom izlaganja kanistera). Izmerene vrednosti se mogu smatrati ujednačenim i ne ukazuju na postojanje mesta koje bi se moglo izdvojiti kao “vruća tačka” za ulazak radona. Svi rezultati su prikazani sa kombinovanom mernom nesigurnošću uz faktor obuhvata $k = 1$.

Gamaspektrometrijsko merenje uzoraka zemljišta

Tabela 4 prikazuje rezultate gamaspektrometrijskog ispitivanja uzorka zemljišta uzetog iz dvorišta porodične kuće. Prikazane su vrednosti koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida. Veštački radionuklidi nisu detektovani. Rezultati su prikazana uz kombinovanu mernu nesigurnosti za faktor obuhvata $k = 1$.

Tabela 4: Koncentracija aktivnosti prirodnih radionuklida u uzorku zemljišta

Ra-226 ($Bq\ kg^{-1}$)	Th-232 ($Bq\ kg^{-1}$)	K-40 ($Bq\ kg^{-1}$)	U-238 ($Bq\ kg^{-1}$)
35 ± 1	43 ± 2	516 ± 10	39 ± 8

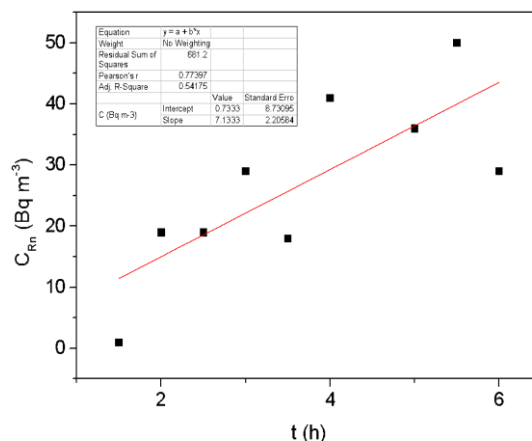
Na osnovu dobijenih rezultata, zaključuje se da nije detektovana povišena aktivnost prirodnih radionuklida (posebno, Ra-226) koja bi mogla uticati na pojačano stvaranje Rn-222.

Merenje brzine ekshalacije radona iz građevinskog materijala

Uzorak građevinskog materijala, koji je korišćen za za dogradnju kuće usitnjen je (polomljen), i komad dimenzija (13×17) cm, stavljen u akumulacionu komoru zapremine 30 l na merenje (6 h). Izmerene vrednosti fitovane su linearnom krivom i prikazani grafički (Slika 2).

Na osnovu podataka o dimenzijama prostorije (dužina sobe: 5 m, širina: 4 m i visina: 2,6 m; dimenzije prozora: (2,0 x 1,5) m), uzimajući za standardnu brzinu provetrenosti, vrednost od $0,63 \text{ h}^{-1}$ [4], [9], dobija se da je doprinos koncentracije radona od građevinskog materijala jednak:

$$(2) \quad C_{Rn} = \frac{E_S S}{V \lambda_V} = (24,6 \pm 7,6) \text{ Bq m}^{-3}$$



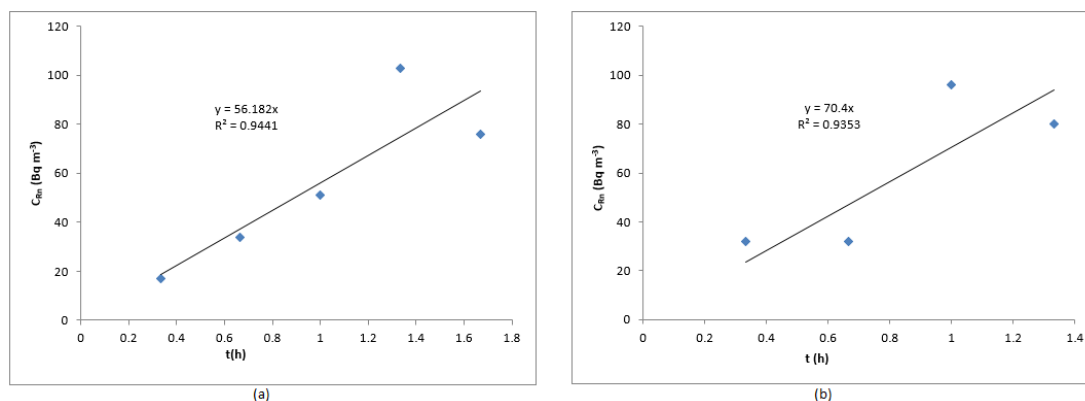
Slika 2: Kriva nagomilavanja radona u komori usled ekshalacije radona iz uzorka građevinskog materijala (blok-šljaka)

Princip koji je ovde prikazan za određivanje brzine ekshalacije radona iz građevinskog materijala, korišćen je i za određivanje brzine ekshalacije iz poda prostorije.

Merenje brzine ekshalacije radona iz poda

Merenje brzine ekshalacije iz poda vršeno je takođe RTM 1688-2 uređajem, u dve prostorije (dnevna soba i kuhinja) u dva navrata (31.05. i 02.11.2022.). Period integracije je bio podešen na 20 min i 25 min, respektivno. Ukupno vreme merenja, u oba slučaja, bilo je 2 h. Izmerene koncentracije radona u dnevnoj sobi prikazane su grafički (Slika 3).

Uzimajući u obzir podatke o dimenzijama dnevne sobe (uz uslove slabog provetravanja), doprinos koncentracije radona koji dolazi od poda dnevne sobe, dobijen je pomoću podataka sa krive nagomilavanja i iznosi: $(20,3 \pm 6,3) \text{ Bq m}^{-3}$, na osnovu prvog merenja (grafik (a) na Slici 3), i $(16,2 \pm 5,9) \text{ Bq m}^{-3}$, za drugo merenje (grafik (b) na istoj slici).

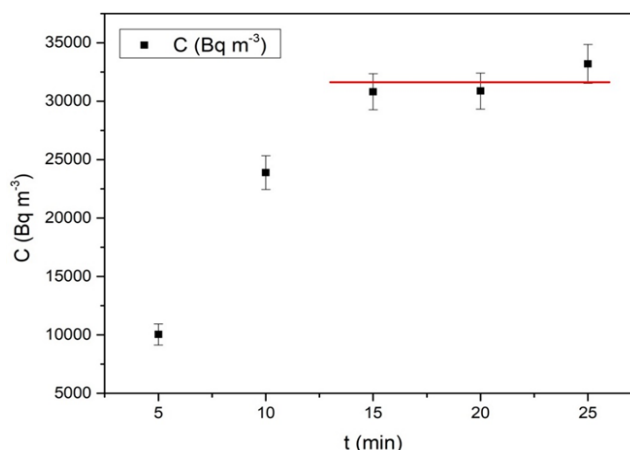


Slika 3: Kriva nagomilavanja radona u radonskoj komori usled ekshalacije radona iz poda dnevne sobe: a) 31.05.2022. i b) 02.11.2022.

Rezultate merenja u kuhinji nisu se mogli fitovati krivom zadovoljavajućeg kvaliteta pa je ona procenjena na osnovu maksimalnog nagiba krive (određen kao odnos maksimalno izmerene koncentracije radona i vremena). Na osnovu istih podataka, analogno računom za dnevnu sobu, procenjene koncentracije radona koji dolazi iz poda u kuhinji: $(199 \pm 89) \text{ Bq m}^{-3}$ pri prvom merenju i $(55 \pm 23) \text{ Bq m}^{-3}$, pri drugom.

Merenje koncentracije aktivnosti radona u zemljištu

Merenje koncentracije aktivnosti radona u samom zemljištu izvršeno je 02.11.2022. istim uređajem. Dobijeni rezultati grafički su prikazani na Slici 4.



Slika 4: Koncentracija radona u zemlji

Konačna vrednost koncentracije radona u zemlji (merena u blizini ispitivanog objekta, na 1 m dubine) dobijena je kao srednja vrednost tri poslednje vrednosti $(31600 \pm 1000) \text{ Bq m}^{-3}$.

Diskusija i zaključak

Doprinosi koji potiču od građevinskog materijala i ekshalacije radona iz poda prostorije, izračunati su i prikazani sumarno u Tabeli 5.

Tabela 5: Prikaz procene ukupnog doprinosa svih procenjenih faktora na koncentraciju radona u unutrašnjosti prostorije

Datum merenja	Prostorija u objektu	Doprinos koji potiče od poda (Bq m ⁻³)	Doprinos od građ. materijala (Bq m ⁻³)	Ukupno (Bq m ⁻³)
31.05.	Dnevna soba	16,2	24,6	40,8
	Kuhinja	199		223,6
02.11.	Dnevna soba	20,3		44,9
	Kuhinja	55		79,6

- Procene na osnovu merenja brzine ekshalacije pokazuju da je, koncentracija aktivnosti gasa radona, koji bi se mogao naći u unutrašnjem vazduhu kuće, između $(40,8 - 223,6) \text{ Bq m}^{-3}$.
- Koncentracije aktivnosti radona izmerena pomoću kanistera sa aktivnim ugljem kreću se u širokom opsegu od $(72 - 934) \text{ Bq m}^{-3}$.
- Koncentracije aktivnosti svih prirodnih radionuklida u izmerenom uzorku zemljišta su u granicama vrednosti koje su uobičajene za teritoriju Srbije.

- Koncentracija aktivnosti radona u zemlji izmerena aktivnim uređajem u blizini objekta iznosila je **(31600 ± 1400) Bq m⁻³** što bi u slučaju slabije tehničke izvedbe kuće moglo dorineti povišenoj koncentraciji radona.

Rezultati merenja pokazuju sezonske i prostorne varijacije i međusobno neslaganje: visoke koncentracije radona dobijene merenjem adsorpcionom tehnikom i normalne vrednosti za brzinu ekshalacije iz poda, građevinskog materijala, kao i koncentracija radona u zemljištu i sadržaj radionuklida u zemljištu.

U svrhu objašnjenja ovog, na prvi pogled, neslaganja, treba uzeti u obzir sledeće napomene:

- Kuće sa slabo zaptivenim temeljima, izgrađenim na visokopropusnom tlu i sa nekoliko ulaznih tačaka za gas iz zemlje, mogu da crpe više od 10 % svog unutrašnjeg vazduha iz zemljišta [9]. Ukoliko samo 3 % od ukupne izmerene koncentracije radona u zemlji, uđe u objekat (prema [9] to može da bude i više od 10 %), dobija se vrednost od 948 Bq m⁻³ u unutrašnosti prostorija (UNSCEAR 2008). Zemljište na Bežanijskoj Kosi može spadati u ovu vrstu, koja doprinosi ulasku radona unutar prostorija u nešto većoj meri (zbog permeabilnosti, poroznosti i drugih pedoloških karakteristika koje nisu analizirane, a koje utiču na otpuštanje radona iz zemljišta).
- U analizu treba uvrstiti **i uticaj vlage na samo merenje**. U kišnom periodu, visoka vlažnost u zemljištu, otežava transport radona, pa i njegovo merenje. Zbog toga je moguće, da je vrednost koncentracije radona izmerena u zemlji, malo potcenjena jer je merenje 02.11.2022. izvršeno u uslovima prilično velike vlage (86 %).
- Kuhinja u oba slučaja (u trećoj i četvrtoj etapi, kada je mereno) ima više vrednosti, što ukazuje na postojanje nekog problematičnog mesta u ovom delu kuće: **pod ili zidovi, (ili oba), negde su propusni za radon**. Zid na kuhinji i spavaćoj sobi je zajednički za stari i novi deo kuće. Opravdana je pretpostavka da je doziđivanjem kuće “napravljeno mesto” ulaska za radon. Iako merenja aktivnim uređajem nisu otkrila **slabe tačke u konstrukciji kuće**, ipak se to smatra glavnim razlogom za izmerene povišene koncentracije radona.

Uzimajući u obzir navedena razmatranja, dolazi se do zaključka da su rezultati, ipak, u skladu sa dosadašnjim saznanjima o radonu i njegovim sezonskim i drugim varijacijama. Mesta ulaska za radon u kuću nije lako otkriti ali je činjenica da postoje i da su povezani sa kvalitetom izvođenja završnih radova, kvalitetom hidroizolacije i instalacija.

Na kraju, ono zbog čega je sve ovo rađeno. Vlasniku kuće su date preporuke za češće provetranje prostorija i, ako je moguće, poboljšanje hidroizolacije u novom delu kuće. Da bi se došlo do konačnog zaključka o potrebi remedijacije predloženo je dugotrajno merenje trag detektorima. Ovakvo merenje (uz normalno korišćenje prostora), dalo bi godišnju prosečnu koncentraciju radona, a to je veličina koja se, po COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/EURATOM [7] i domaćoj regulativi [8], poredi sa referentnim vrednostima.

Literatura

- [1] D.J. Gray, S.T. Windham. EERF Standard Operating Procedures for Radon-222 Measurement Using Charcoal Canisters, EPA 520/5-87-005, 1987
- [2] SRPS ISO 18589-3 Merenje radioaktivnosti u životnoj sredini–Zemljište, deo 3, Merenje radionuklida, emitera gama zračenja, mart 2011
- [3] I. Čeliković, M. Đurašević, P. Ujić, P. Repić, A. Kandić, B. Lončar. Ispitivanje brzine ekshalacije radona: uticaj spraešenosti i vlažnosti uzorka, Zbornik radova, XXIX Simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, 27–29. Septembar 2017, Srebrno jezero, 225-231

-
- [4] P. Ujić, I. Čeliković, A. Kandić, Z. Žunić. Standardization and difficulties of the thoron exhalation rate measurements using an accumulation chamber. *Radiat. Meas.* 43, 2008, 1396–1401.
- [5] World Health Organization, Guidelines for indoor air quality: Selected pollutants, WHO Regional Office for Europe, 2010 ch. 7, pp. 347-369.
- [6] G. Pantelić, M. Rajačić, J. Krneta Nikolić, I. Vukanac, M. Živanović, I. Čeliković, D. Todorović, M. Janković, N. Sarap, M. Radenković. Sezonske varijacije koncentracije radona, Zbornik radova XXX simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, 02–04. Oktobar 2019, Divčibare, 215-219.
- [7] COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/EURATOM of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation
- [8] Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima (Sl. gl. RS 86/11 i Sl. gl. RS 50/18)
- [9] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and effects of ionizing radiation, UNSCEAR 2008, Report to the General Assembly with Scientific Annexes, United Nations, New York, 2010.

INDOOR RADON CONCENTRATION MEASUREMENT - CASE STUDY

Vesna ARSIĆ¹, Igor ČELIKOVIĆ², Irena TANASKOVIĆ¹, Suzana BOGOJEVIĆ¹,
Jovana ILIĆ¹

- 1) *Serbian Institute of Occupational Health "Dr Dragomir Karajović", Radioactivity Measurement Laboratory, Deligradska 29, Belgrade, Serbia*
- 2) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Nuclear and Plasma Physics Laboratory Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

The Radioactivity Measurement Laboratory has initially measured the radon concentration, in a private house on Bežanijska Kosa in Belgrade, by activated charcoal canisters and established a high concentration in the new part of the house. In order to determine the reasons for the increased radon concentration, new measurements were organized three more times, in different periods, covering all four seasons. This paper presents a report of these measurements in which, the Nuclear And Plasma Physics Laboratory Of The "Vinca" Institute also participated with the combination of a larger number of methods: radon concentration measurement by activated charcoal canisters, radon concentration measurement by active device – alpha-spectrometer, determination of radon concentrations on the basis of radon exhalation rate from the floor of the room, from the building material, on the basis of the radon measurement from the soil, estimation of radon concentration on the basis of gamma spectrometry analysis of the soil sample, taken from the yard in front of the house. Analysis of the obtained results confirmed previous knowledge about seasonal and others variations in radon concentration.

TRACERADON PROJEKAT – PREGLED NAJVAŽNIJIH REZULTATA

Igor ČELIKOVIĆ¹, Ivana VUKANAC¹, Gordana PANTELIĆ¹, Miloš ŽIVANOVIĆ¹,
Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹

1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*

Autor za korespondenciju: Igor ČELIKOVIĆ, icelikovic@vin.bg.ac.rs

SAŽETAK

Oko pola efektivne doze koju stanovništvo primi usled izlaganja jonizujućem zračenju potiče od radona i njegovih potomaka, te je problematika radona važna u oblasti zaštite od zračenja. Takođe, kao hemijski inertan gas, radon je našao primenu u izučavanju životne sredine kao traser za razne geološke i atmosfere procese. Jedna od važnih primena radona je u problematici praćenja gasova koji izazivaju efekat staklene bašte (greenhouse gases – GHG). Pokazano je da se poznavanjem fluksa radona iz zemlje i priraštaja koncentracije radona i koncentracije GHG u istom vremenskom intervalu tokom noći može odrediti fluks GHG.

U ovom radu će biti prikazani odabrani rezultati nedavno završenog traceRadon projekta čiji je cilj bio razvijanje metrološki sledivih metoda merenja niskih koncentracija radona u atmosferi u granicama od 1 Bq m^{-3} do 100 Bq m^{-3} , kao i unapređenje tehnika merenja i samo merenje radonskog fluksa, što će doprineti ispitivanju klimatskih promena kroz obezbeđivanje pouzdane procene fluksa GHG. Takođe, u sklopu projekta, vršila se procena do koje mere se radon u spoljašnjoj sredini i radonski fluks mogu koristiti za procenu radonskih prioritarnih oblasti.

Uvod

Svetska zdravstvena organizacija (World Health Organization – WHO) je identifikovala radon kao jedan od najvažnijih uzročnika kancera pluća. Procenjeno je da je radon sa svojim potomcima, na godišnjem nivou, odgovoran za otprilike 20000 smrti u Evropskoj Uniji usled kancera pluća [1]. Zbog toga je Savet Evrope u okviru EURATOM directive (2013/59/EURATOM) obavezao zemlje članice Evropske Unije da razviju Radonski Akcioni Plan (RAP), identifikuju radonske prioritarnostne oblasti (RPA – Radon Priority Areas) i informišu javnost o koncentracijama radona, što je samo jedan deo direktive EU o osnovnim sigurnosnim standardima za zaštitu od opasnosti koje potiču od izloženosti jonizujućem zračenju (EU-BSS – European Union basic safety standards) [2]. U cilju usklađivanja sa EU-BSS započeti su novi nacionalni radonski projekti, neke države su ponovile merenja radona na nacionalnom nivou, diskutovan je i koncept RPA koji varira od države do države [3-5]. Konačno, jedan od ciljeva prethodnog MetroRADON projekta (16ENV10 “Metrology for radon monitoring” <http://metroradon.eu>) je bio da se kroz razvoj procedura kalibracije obezbedi sledivost radonskih merenja na koncentracijama u rasponu od 100 Bq m^{-3} – 300 Bq m^{-3} čime bi se potpomogla realizacija nacionalnih radonskih akcionih planova [6].

S druge strane, zahvaljujući činjenici da je plemenit gas, a samim tim i hemijski inertan, sa periodom poluraspada od 3.82 dana, radon se koristi kao traser za različite geološke i atmosfere procese kao što su: predviđanje vulkanske aktivnosti i zemljotresa, identifikacija i mapiranje geoloških raseda, kretanje podzemnih voda, identifikaciju kontaminacije tečnostima u nevedenoj fazi, za procenu fluksa gasova koji izazivaju efekat staklene bašte

(GHG – greenhouse gases), procenu mešanja vazдушnih masa u atmosferskom graničnom sloju i njeno modelovanje [7-15].

Jedan od metoda koji je interesantan naučnicima koji izučavaju klimatske promene je RTM (radon tracer metod) kod kojeg se na osnovu poznavanja promene koncentracije radona i GHG u atmosferi u određenom vremenskom intervalu i izmerenog radonskog fluksa može odrediti fluks GHG [11].

Metrološki projekat EMPIR 19ENV01 traceRadon “Radon metrology for use in climate change observation and radiation protection at the environmental level” u slobodnom prevodu „Metrologija radona u cilju praćenja klimatskih promena i zaštiti od zračenja“ imao je za cilj da, merenjem radonskog fluksa i radona u spoljašnjem vazduhu, poveže oblast zaštite od zračenja (npr. za procenu i identifikaciju radonskih prioriternih oblasti) sa problematikom praćenje klimatskih promena [16].

U ovom radu će biti sažeti glavni ciljevi i neki od rezultata nedavno završenog traceRadon projekta.

traceRadon: radni paketi i ciljevi

Projekat traceRadon je realizovan kroz 4 naučna radna paketa (WP – Work Package) i dva vezana za diseminaciju rezultata i upravljanje projektom:

- WP1: Sledivo merenje spoljašnje koncentracije radona
- WP2: Merenja radonskog fluksa
- WP3: Validacija modela radonskog fluksa koristeći izmeren radonski fluks
- WP4: Korišćenje spoljašnjeg radona i radonskog fluksa u zaštiti od zračenja
- WP5: Uticajnost projekta
- WP6: Upravljanje projektom

Glavni cilj projekta je bio razvoj metrološke infrastrukture, koja bi uključivala referentne instrumente, sledive izvore i razvoj metodologije, kako bi se obezbedilo merenje niskih koncentracija radona u životnoj sredini, što bi dalje moglo da se koristi za razvoj strategije smanjenja GHG i poboljšanja zaštite stanovništva od zračenja.

Specifični ciljevi su:

1. Da se razviju sledive metode za merenje spoljašnje, niske koncentracije radona u opsegu od 1 Bq m^{-3} do 100 Bq m^{-3} sa mernom nesigurnošću od 10%, pri jednoj standardnoj devijaciji. Ove metode uključuju razvoj dva Rn-222 emanaciona izvora jačine ispod 100 Bq m^{-3} , etaloniranje transfer instrumenta tim izvorima, kako bi se obezbedila sledivost i samu proceduru etaloniranja koja mora obezbediti sledivost merenja spoljašnje koncentracije radona na terenu.
2. Da se razvije instalacija za sledivo merenje radonskog fluksa na terenu, zasnovano na razvoju referentnog sistema za ekshalaciju radona, tzv. “ekshalacionog kreveta” i transferu standarda. Ova instalacija bi se koristila za harmonizaciju postojećih metoda i instrumenata za merenje radonskog fluksa kroz interkomparaciju.
3. Da se razvije prvi standardizovani protokol za primenu radon traser metode (RTM – radon tracer method) u cilju dobijanja informacije o fluksu GHG na mernim stanicama za praćenje gasova u atmosferi
4. Da se ustanovi do koje mere radonski fluks može poslužiti za identifikaciju radonski prioriternih oblasti

Da se izvrši validacija modela radonskog fluksa i inventara (inventories) korišćenjem novih sledivih merenja radonskog fluksa i spoljašnjeg radona. Da se izvrši validacija sa

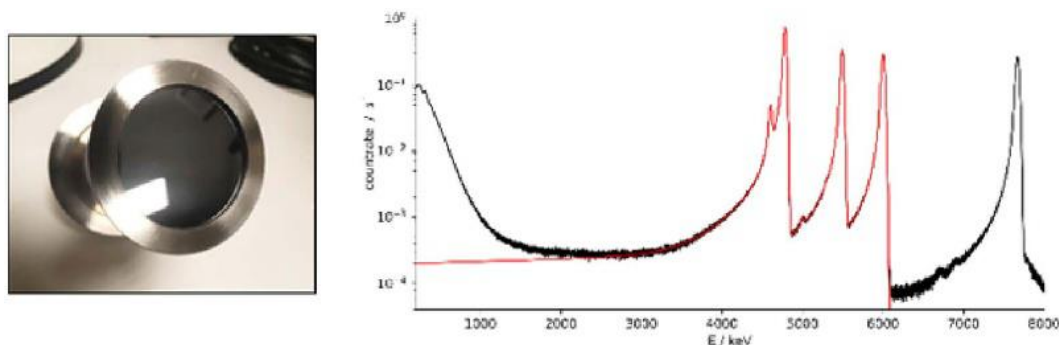
dozimetrijskim i spektrometrijskim podacima sa evropske mreže za rano upozorenje na radioaktivnost. Da se izvrši validacija radonskih mapa koje bi imale primenu u RTM i zaštiti od zračenja.

Rezultati

U nastavku rada su prikazani odabrani rezultati postignuti za vreme trajanja traceRadon projekta.

WP1 Sledivo merenje spoljašnje koncentracije radona

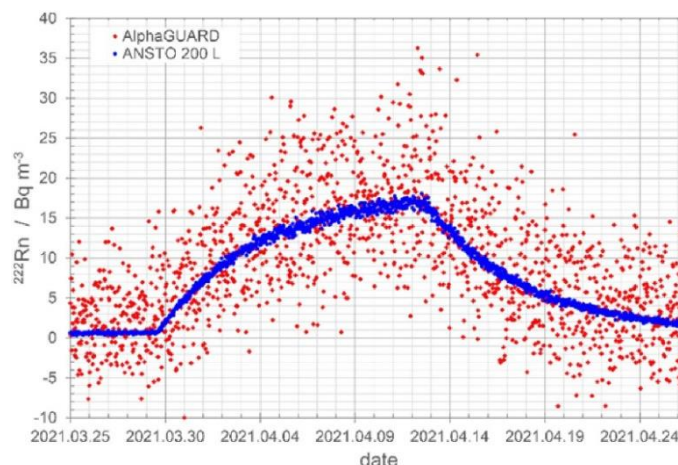
Dok je tokom MetroRADON projekta razvijena metodologija za sledivost merenja koncentracije radona do SI sistema u opsegu od (100 – 300) Bq m⁻³, što je bilo od interesa za merenje koncentracije radona i zatvorenim prostorijama, za ciljeve traceRadon projekta bilo je potrebno obezbediti sledivost merenja koja odgovaraju niskim koncentracijama radona u spoljašnjem prostoru u opsegu od (1 – 100) Bq m⁻³. Na osnovu pregleda literature utvrđeno je da nema odgovarajućih izvora, pa su tokom projekta razvijena dva emanaciona izvora zasnovana na različitim principima. Češki metrološki institut (CMI - Czech metrology institute) je koristio emulziju soli formirnu iz standardnog rastvora koja je stavljena u čelični cilindar sa ventilima i kontrolom protoka kako bi se obezbedila stabilna koncentracija radona. Sledivost Ra-226 je obezbeđena merenjem mase i gama spektrometrijom. S druge strane PTB (Physikalisch-Technische Bundesanstalt) je konstruisao emanacioni izvor termalnim naparavanjem ²²⁶RaCl₂ na različite tipove podloge [17]. Sledivost je obezbeđena alfa-spektrometrijom i definisanim prostornim uglom, što je primarna, standardna metoda za određivanje alfa-aktivnosti izotopa od interesa. Iskorak u naučnom smislu je postignut kad je na silicijumski detektor naparen ²²⁶RaCl₂ čime je dobijen integrisani radonski izvor i detektor (IRSD – integrated radon source detector). Na Slici 1. je prikazan izgled detektora i njegov spektar. Detaljne karakteristike ovog uređaja se mogu naći u referenci Mertes et al. [18]. Na ovaj način je postignuto da emanacioni izvori mogu omogućiti etaloniranje radonskih uređaja, u referentnoj kalibracionoj komori, na niskim koncentracijama radona do 10 Bq m⁻³. Postignuta je merna nesigurnost manja od 10 %, što je do sada bilo moguće postići jedino sa 2 reda veličine višim koncentracijama.



Slika 1: Integrisan izvor-detektor sistem (ISDS) Silicijumski detektor sa naparenim RaCl₂ na mrtvom sloju detektora i odgovarajući alfa spektar

Sledeći korak u obezbeđivanju lanca sledivosti je određivanje mogućeg transfer standard detektora koji će obezbediti transfer iz laboratorije tj. kalibracione komore na teren. U tu svrhu su u prvoj iteraciji odabrani ANSTO radonski detektor aktivne zapremine 200 l [19] i AlphaGuard PQ2000Pro, Bertin Instruments. Detektori su etalonirani u velikoj klimatskoj radonskoj komori instaliranoj u PTBu, sa niskom ali i promenljivom koncentracijom radona kako bi se realno ispratile varijacije radona koje postoje i u atmosferi. Na Slici 2. je simbolima crvene boje prikazan odziv AlphaGuard detektora, dok je odziv ANSTO 200l

uređaja prikazan plavom bojom. Svaka tačka odgovara usrednjavanju od pola sata. Rezultati ukazuju da je ANSTO 200l pogodan da bude korišćen kao instrument za transfer standarda.



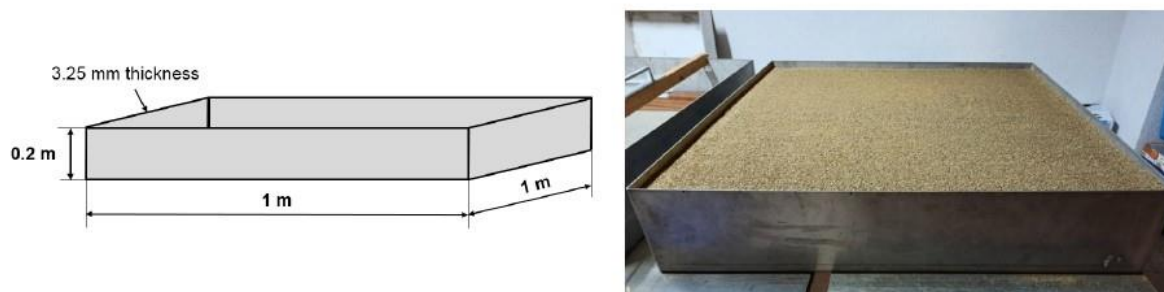
Slika 2: Etaloniranje AlphaGuard i ANSTO 200l detektora u radonskoj komori sa niskom i promenljivom koncentracijom radona

Dugoročnom i kratkoročnom interkomparacijom ANSTO 200l i unapređene verzije ARMON (Atmospheric Radon MONitor) [20], razvijenog u Politehničkom Univerzitetu u Kantabriji, utvrđeno je da nema statistički značajne razlike između ova dva uređaja i da i ANSTO200l i ARMON mogu da se koriste kao transfer standard za sekundarnu kalibraciju.

WP2 Merenja radonskog fluksa

U cilju unapređenja tačnosti i povećanja broja merenja radonskog fluksa kako bi se izvršila validacija postojećih radonskih mapa i modela [21, 22] potrebno je obezbediti pun metrološki lanac kako bi se dobila slediva merenja radonskog fluksa. To se ostvarilo konstrukcijom ekshalacionog kreveta (exhalation bed), razvojem transfer standard instrumenta i interkomparacijom na terenu.

Referentni radonski ekshalacioni krevet čini čelična fioka dimenzija 1m x 1m x 0.2m u koju je stavljena usitnjena, osušena i homogenizovan zemlja, sa visokim sadržajem ^{226}Ra , uzeta iz bivšeg rudnika urana u Salamanki, Španija. Na Slici 3 je dat shematski prikaz i slika ekshalacionog kreveta. U ekshalacionom krevetu je instaliran senzor vlage, a prati se još i pritisak i temperatura.



Slika 3: Shematski prikaz i slika ekshalacionog kreveta (uzeto iz [23] i D3 izveštaja)

Neki od parametara ekshalacionog kreveta su: emanacioni faktor: 0.18 ± 0.03 ; specifična aktivnost Ra-226: $(19130 \pm 350) \text{ Bq kg}^{-1}$; poroznost: 0.3599 ± 0.0001 ; difuzioni koeficijent:

$(3.47 \pm 0.08) 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$, dok su procenjena i izmerena vrednost fluksa $(1918 \pm 278) \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ i $(1757 \pm 67) \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, redom.

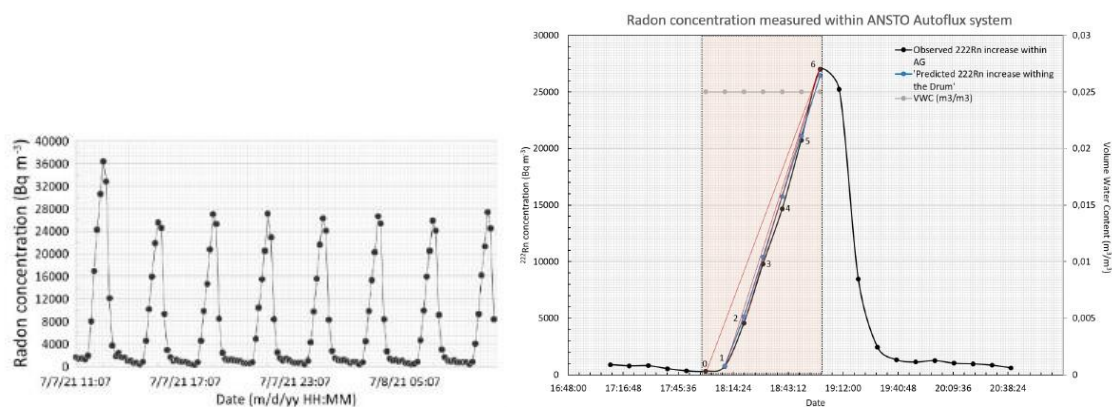
U cilju kreiranja instrumenta (sistema) za transfer standard radonskog fluksa, potrebno je između ostalog obezbediti: • da radonski monitor može meriti koncentraciju radona u protočnom modu sa vremenskom rezolucijom od 1 min – 10 min, i da može da detektuje koncentracije radona ispod 100 Bq m^{-3} ; • akumulaciona komora mora da se otvara automatski nakon svakog mernog perioda i da se brzo izvrši izmena vazduha u komori; • potrebno je pratiti ambijentalne uslove unutar i izvan komore...

Za tu svrhu kreiran je AutoFlux sistem (Slika 4.) čiji ciklus merenja traje 3 sata i time omogućava 8 automatskih merenja radonskog fluksa dnevno. Sistem je baziran na AlphaGuard PQ2000 PRO radonskom uređaju, akumulacionoj komori u obliku bubnja i desetak senzora koji omogućuju da se paralelno prate karakteristike zemljišta i meteorološki uslovi (više detalja u referenci) [23].



Slika 4: Prikaz Autoflux sistema: ekshalaciona kutija i kutija sa sensorima i AlphaGuardom [23]

Po dizajniranju, Autoflux sistem je karakterisan i etaloniran u laboratorijskim uslovima koristeći ekshalacioni krevet u dve kampanje merenja. Koncentracija radona izmerena Autoflux sistemom u jednoj kampanji merenja je prikazana na levoj strani Slike. 5, dok je na desnoj strani Slike 5. prikazano nagomilavanje radona u akumulacionoj komori u jednom intervalu merenja. Postignuto je odlično slaganje između izmerenog (crne tačke) i predviđenog (plave tačke) porasta koncentracije radona.



Slika 5: (leva strana) Koncentracija radona izmerena Autoflux sistemom merena u jednoj kampanji i (desna strana) nagomilavanje radona u akumulacionoj komori u jednom intervalu merenja [23]

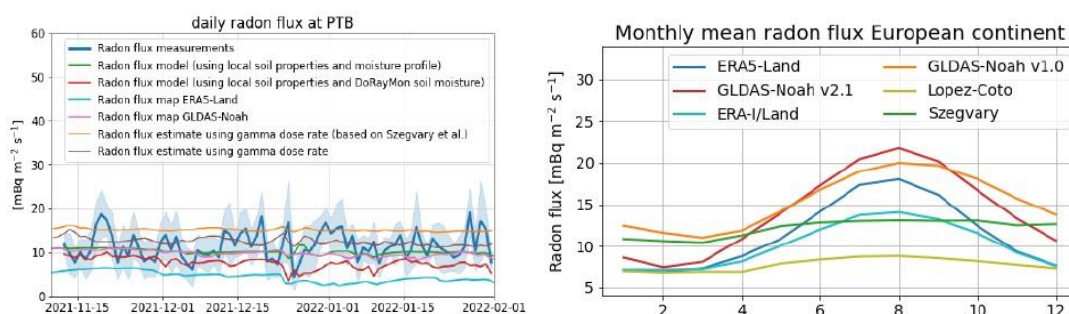
Po urađenoj karakterizaciji ekshalacionog kreveta i instrumenta za transfer standarda, razvijen je protokol za etaloniranje drugih sistema za merenje radonskog fluksa. Na Slici 6. je prikazano etaloniranje jednog sistema za merenje radonskog fluksa razvijenog u UPC u Kantabriji. Odnosom izmerenog radonskog fluksa dobijenog referentnim sistemom i onim sistemom koji se etalonira, dobija se odgovarajući kalibracioni faktor. Jedna od interkomparacija sa dostupnim sistemima za merenje radonskog fluksa je prikazana na desnoj strani Slike 6.



Slika 6: (leva strana) Etaloniranje sistema za merenje fluksa radona [23], (desna strana): jedna od interkomparacija dostupnih sistema za merenje fluksa [24]

WP3 Validacija modela radonskog fluksa koristeći izmeren radonski fluks

Pouzdana podaci o radonskom fluksu sa zadovoljavajućom prostornom i vremenskom rezolucijom su potrebni za primenu RTM i za validaciju modelovanja atmosferskog transporta. U sklopu WP3, testirane su evropske mape radonskog fluksa zasnovane ili na parametrizaciji proizvodnje radona i njegovog transporta (difuziono kretanje) ili na osnovu korelacije između gama doze i radonskog fluksa. Na Slici 7. su prikazane izmerena dnevna varijacija radonskog fluksa merena u PTB-u i vrednosti dobijene različitim modelima, kao i prosečna mesečna vrednost radonskog fluksa dobijena različitim modelima. Korišćeni su različiti modeli za procenu vlažnosti zemlje.



Slika 7: (leva strana): Dnevno merenje fluksa radona poređeno sa različitim modelima, (desna strana): jedna od interkomparacija dostupnih sistema za merenje fluksa [25]

Rezultati ukazuju da je za dobro predviđanje radonskog fluksa važan parameter vlažnost zemljišta i bolja slaganja su dobijena sa unapređenim modelima zemljišta. U sklopu WP2 su takođe vršena i merenja radonskog fluksa, kako bi se povećao broj tačaka za validaciju vrednosti R_n fluksa dobijenih modelovanjem.

Postojeći modeli zemljišta ne opisuju u dovoljnoj dobroj meri dnevnu varijabilnost vlažnosti zemljišta, što je od velike važnosti za modelovanje fluksa, pa je u okviru WP3 razvijan

(unapređivan) metod određivanja vlažnosti zemljišta gamaspektrometrijskom metodom [25,26].

WP4 Korišćenje spoljašnjeg radona i radonskog fluksa u zaštiti od zračenja

U okviru dva pregledna rada istraživalo se do koje mere se radonski fluks i spoljašnja koncentracija radona mogu koristiti za određivanje RPA [27,28]. Zbog same prirode merenja ove dve veličine, odnosno komplikovanog merenja koje zahteva prisustvo obučenog osoblja na mernoj lokaciji, primećeno je da su kampanje merenja obuhvatale mnogo manje mernih lokacija po jedinici površine u odnosu na kampanje merenja radona u zatvorenim prostorijama. Stoga, iako je na osnovu merenja, kreiran mali broj mapa, pitanje je do koje mere se te mape mogu smatrati reprezentativnim za dati region i kao takve da se koriste kao ulazni parameter za procenu RPA. S druge strane, pozitivna korelacija između radonskog fluksa, odnosno spoljašnje koncentracije radona i drugih mernih veličina (koncentracija radona u zatvorenom prostoru, sadržaj Ra-226 u zemlji.) ukazuju da je moguće koristiti ove dve veličine za predviđanje RPA, ali uz reprezentativan broj merenja.

U EURDEP (European Radiological Data Exchange platform) sistemu za rano uzbunjivanje, baziranom na merenju jačine ambijentalne doze pojavljuju se lažni pikovi usled padavina (radon wash-out peak). U sklopu projekta, razvijan je metod identifikacije lažnih pikova, mašinskim učenjem, bez potrebe za imanjem informacije o padavinama.

Diskusija i zaključak

U ovom radu su prikazani najvažniji rezultati traceRadon projekta. Značajan iskorak u istraživanju je učinjen sa ravojem emanacionog izvora radona koji se ponaša i kao detektor u isto vreme. Uspešno je razvijen metrološki lanac sledivosti za merenje niske koncentracije spoljašnjeg radona, kao i radonskog fluksa. Sve ovo ide u prilog dobijanju pouzdanih podataka za primenu RTM modela za praćenje fluksa gasova koji izazivaju efekat staklene bašte. Iako su modelovane mape radonskog fluksa postigle odličnu prostornu i vremensku rezoluciju, moguće ih je unaprediti ubacivanjem advекционог kretanja u model i pouzdanijeg modela vlažnosti zemljišta. Razvijeni sistemi za merenje fluksa će omogućiti sistematsko merenje fluksa koje je od krucijalne važnosti za validaciju modela.

Zahvalnica

This project has received funding from the EMPIR programme co-financed by the Participating States and from the Europe'n Union's Horizon 2020 research and innovation programme. 19ENV01 traceRadon denotes the EMPIR project reference.

Istraživanje je finansiralo Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] World Health Organization WHO handbook on indoor radon: a public health perspective, 2009
- [2] European Council Directive 2013/59/Euratom on basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation and repealing Directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom. OJ of the EU. L13; 57: 1–73 (2014).

- [3] G. Pantelić, I. Čeliković, M. Živanović, I. Vukanac, J.K. Nikolić, G. Cinelli, V. Gruber, Qualitative Overview of Indoor Radon Surveys in Europe, *J. Environ. Radioact.* Vol.204 2019, 163–174.
- [4] V. Gruber, S. Baumann, G. Wurm, W. Ringer, O. Alber, The New Austrian Indoor Radon Survey (ÖNRAP 2, 2013–2019): Design, Implementation, Results, *J. Environ. Radioact.* Vol.233 2021, 106618.
- [5] P. Bossew, Radon Priority Areas—Definition, Estimation and Uncertainty. *Nucl. Technol. Radiat. Prot.* Vol.33 2018, 286–292.
- [6] F.J. Maringer, H. Wiedner, M. Stietka, M. Final Publishable Summary for 16ENV10 MetroRADON Metrology for Radon Monitoring Final Publishable Summary for 16ENV10 MetroRADON Metrology for Radon Monitoring; 2021. <https://doi.org/10.13140/RG.2.2.16260.86403>
- [7] Y. Kawada, H. Nagahama, Y. Omori, Y. Yasuoka, T. Ishikawa, S. Tokonami, M. Shinogi. Time-Scale Invariant Changes in Atmospheric Radon Concentration and Crustal Strain Prior to a Large Earthquake. *Nonlinear Process. Geophys.* Vol.14, 2007, 123–130.
- [8] G. Ciotoli, S. Lombardi, A. Annunziatellis. Geostatistical Analysis of Soil Gas Data in a High Seismic Intermontane Basin: Fucino Plain, Central Italy, *J. Geophys. Res. Solid Earth* Vol.112 2007, 112, 1–23.
- [9] C.Sainz, C.; Rábago, D.; Fuente, I.; Celaya, S.; Quindós, L.S. Description of the Behavior of an Aquifer by Using Continuous Radon Monitoring in a Thermal Spa. *Sci. Total Environ.* 2016, 543, 460–466.
- [10] S. Mollo, P. Tuccimei, G. Galli, G. Iezzi, P. Scarlato, The Imprint of Thermally Induced Devolatilization Phenomena on Radon Signal: Implications for the Geochemical Survey in Volcanic Areas, *Geophys. J. Int.* Vol.211 2017, 558–571.
- [11] I. Levin, U. Karstens, S. Hammer, J. DellaColetta, F. Maier, M. Gachkivskyi, Limitations of the radon tracer method (RTM) to estimate regional greenhouse gas (GHG) emissions—A case study for methane in Heidelberg, *Atmos. Chem. Phys.* Vol.21 2021, 17907–17926.
- [12] C. Grossi, F.R. Vogel, R. Curcoll, A. Àgueda, A. Vargas, X. Rodó, and J.-A. Morguá, Study of the daily and seasonal atmospheric CH₄ mixing ratio variability in a rural Spanish region using ²²²Rn tracer, *Atmos. Chem. Phys.*, Vol.18 2018, 5847–5860.
- [13] S.D. Chambers, F. Wang, A.G. Williams, D. Xiaodong, H. Zhang, G. Lonati, J. Crawford, A.D. Griffiths, A. Ianniello, I. Allegrini, Quantifying the Influences of Atmospheric Stability on Air Pollution in Lanzhou, China, Using a Radon-Based Stability, *Monitor. Atmos. Environ.* Vol.107 2015, 233–243.
- [14] A. Vinod Kumar, V. Sitaraman, R.B. Oza, T.M. Krishnamoorthy, Application of a Numerical Model for the Planetary Boundary Layer to the Vertical Distribution of Radon and Its Daughter Products, *Atmos. Environ.* Vol.33 1999, 4717–4726.
- [15] S. Biraud, P. Ciais, M. Ramonet, P. Simmonds, V. Kazan, P. Monfray, S. O’Doherty, T. Spain, S. Jennings, European Greenhouse Gas Emissions Estimated from Continuous Atmospheric Measurements and Radon ²²² at Mace Head, Ireland, *J. Geophys. Res.* Vol.105 2000, 1351–1366.

- [16] A. Röttger, S. Röttger, C. Grossi, A. Vargas, R. Curcoll, P. Otahal, M.Á. Hernández-Ceballos, G. Cinelli, S.D., Chambers, S.A., Barbosa, M. Ioan, I. Radulescu, D. Kikaj, E. Chung, T. Arnold, C. Yver-Kwok, M. Fuente, F. Mertes, and V. Morosh, New metrology for radon at the environmental level, *Measurement Science and Technology*, Vol. 32, No.12, 2021, 124008 ISSN 0957-0233
- [17] S. Röttger, A. Röttger, F. Mertes, V. Morosch, T. Ballé, S. Chambers, Evolution of traceable radon emanation sources from MBq to few Bq, *Applied Radiation and Isotopes*, Volume 196, 2023, 110726
- [18] F. Mertes, S. Röttger, A. Röttger, Development of ^{222}Rn Emanation Sources with Integrated Quasi 2π Active Monitoring. *Int. J. Environ. Res. Public Health* Vol.840 No.19, 2022, 840.
- [19] S.D. Chambers, V. Morosh, A.D. Griffiths, A.G. Williams, S. Röttger, A. Röttger, Field testing a portable two-filter dual-flow-loop ^{222}Rn detector. Virtual poster and vPICO presentation EGU General Assembly 2021 (Vienna Austria, 19–30 April 2021) EGU21–196 Session GI6.2, abstract ID
- [20] traceRadon, Newsletter, 2nd issue, November 2021
- [21] T. Szegvary, F. Conen, P. Ciais, European ^{222}Rn inventory for applied atmospheric studies, *Atmos Environ* Vol.43 No. 8, 2009, 1536-1539.
- [22] U. Karstens, C. Schwingshackl, D. Schmithüsen, I. Levin, A process-based ^{222}Rn flux map for Europe and its comparison to long-term observations, *Atmos. Chem. Phys.* Vol.15 2015, 12845–12865.
- [23] C. Grossi, D. Rabago, S. Chambers, C. Sáinz, R. Curcoll, P.P.S. Otáhal, E. Fialová, L. Quindos, A. Vargas, Characterizing the automatic radon flux transfer standard system Autoflux: laboratory calibration and field experiments *Atmos. Meas. Tech.* Vol. 16 No.10, 2023, 2655-2672
- [24] D. Rábago, L. Quindós, A. Vargas, C. Sainz, I. Radulescu, M.-R. Ioan, F. Cardellini, M. Capogni, A. Rizzo, S. Celaya, et al. Intercomparison of Radon Flux Monitors at Low and at High Radium Content Areas under Field Conditions. *Int. J. Environ. Res. Public Health* Vol.19, 2022, 4213.
- [25] traceRadon, Newsletter, 3rd issue, September, 2022
- [26] M. Baldoncini et al., “Investigating the potentialities of Monte Carlo simulation for assessing soil water content via proximal gamma-ray spectroscopy,” *J Environ Radioact*, vol. 192, 2018, pp. 105–116
- [27] I.T. Celikovic, G. Pantelic, I. Vukanac, J.K. Nikolic, M. Zivanovic, G. Cinelli, V. Gruber, S. Baumann, L. Quindos, D. Rabago, Outdoor radon as a tool to estimate radon priority areas – A literature overview, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, Vol. 19 No.2, 2022, 662
- [28] I. Čeliković G. Pantelić I. Vukanac JK. Nikolić M. Živanović G. Cinelli V: Gruber S. Baumann G. Ciotoli LSQ. Poncela D. Rabago, Overview of Radon Flux Characteristics, Measurements, Models and Its Potential Use for the Estimation of Radon Priority Areas. *Atmosphere*. Vol.13 No.12, 2022, 2005.

TRACERADON PROJECT – AN OVERVIEW OF SCIENTIFIC ACHIEVEMENTS

Igor ČELIKOVIĆ¹, Ivana VUKANAC¹, Gordana PANTELIĆ¹, Miloš ŽIVANOVIĆ¹,
Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹

- 1) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

Since more than a half of the effective doses from all ionising radiation come from the exposure to radon and its progeny, radon is important in the field of radiation protection. Being a noble gas and therefore chemically inert, radon is also used as a tracer for different geological and atmospheric processes. Radon is of interest to climate scientists for monitoring greenhouse gasses (GHG). It is known that by knowing radon flux and variation of radon and GHG concentration at the same period of time during the night, it is possible to estimate emission of GHG.

In this paper, the most important results of recently finished EMPIR project 19ENV01 traceRadon "Radon metrology for use in climate change observation and radiation protection at the environmental level" are presented. Project aimed to develop the capability to measure SI traceable radon activity in the range of 1 Bq m⁻³ to 100 Bq m⁻³, suitable for outdoor radon measurements, to develop the capability for traceable radon flux measurements in the field which is important for GHG emission estimates and validation of contemporary radon flux models. Within the project it was investigated to what extent radon flux and outdoor radon data could be used for estimation of radon priority areas.

MONITORING KONCENTRACIJE RADONA U RADNOM PROSTORU, LABORATORIJA PMF-A U KOSOVSKOJ MITROVICI

Ljiljana GULAN¹, Dušica SPASIĆ¹, Boris DROBAC¹

1) *Prirodno – matematički fakultet, Univerzitet u Prištini sa privremenim sedištem u Kosovskoj Mitrovici, Kosovska Mitrovica, Republika Srbija*

Autor za korespondenciju: Ljiljana GULAN, ljiljana.gulan@pr.ac.rs

SAŽETAK

U radu su predstavljeni rezultati monitoringa koncentracije radona u radnom prostoru, a u skladu sa direktivom Saveta Evropske unije (Directive 2013/59/EURATOM) kojom je državama članicama naloženo da utvrde nacionalne referentne nivoe koncentracije radona u objektima. Merenje koncentracije radona vršeno je u periodu od 15.09.2022 – 24.05.2023., aktivnim detektorom radona Corentium Home postavljenim u laboratoriji PMF-a u Kosovskoj Mitrovici, u suterenu zgrade stare preko 50 godina. Dnevne vrednosti koncentracije radona varirale su u intervalu (90 - 1446) Bq/m³, dok je usrednjena mesečna vrednost varirala u intervalu (248 - 950) Bq/m³; srednja vrednost za dati period je 475 Bq/m³. U ovom području su ranije zabeležene visoke koncentracije radona u stambenom prostoru koje se dovode u vezu sa geologijom područja i tehnološkim aktivnostima. Merenja pokazuju da vrednosti koncentracije radona prevazilaze referentni nivo od 300 Bq/m³ koji je definisao EURATOM, i interventni nivo od 400 Bq/m³ za objekte starije gradnje utvrđen nacionalnim Pravilnikom o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima.

Uvod

Radon Rn-222 je prirodni radioaktivni gas bez boje, mirisa i ukusa, i sa vremenom poluraspada od 3,824 dana. Nastaje raspadom radijuma Ra-226 u nizu urana U-238. Glavni izvori radona su stene i zemljište ispod objekata, a u manjem procentu građevinski materijal. Radon ima mnogo veću pokretljivost od urana i radijuma, jer mu gasovito stanje omogućava lakšu migraciju. Difuzijom i konvekcijom radon dospeva u zatvoren prostor u kome se akumulira. Nekontrolisano akumuliranje radona može predstavljati zdravstveni rizik, imajući u vidu da čovek prosečno 80 % vremena provodi u radnom i životnom prostoru. U plućima, nakon inhaliranja, alfa raspadom radona nastaju atomi polonijuma, olova i bizmuta koji se talože u osetljivim slojevima disajnih puteva.

Više od polovine prosečne godišnje efektivne doze koju stanovništvo na svetskom nivou prima od svih prirodnih izvora zračenja potiče od radona i njegovih potomaka [1]. Stoga su date mnoge preporuke za smanjenje nivoa radona u radnim i boravišnim prostorijama od strane svetske zdravstvene organizacije (SZO), naučnih komiteta (UNSCEAR), agencija za zaštitu životne sredine (EPA) [1-3]. SZO je označila radon za drugi uzročnik kancera pluća, odmah posle pušenja; prema dokumentovanim podacima procenjeno je da radon uzrokuje (3 - 14) % kancera pluća [2].

SZO preporučuje da koncentracija radona u zatvorenom prostoru ne bude veća od 100 Bq/m³ [2]. Prema direktivi Evropske zajednice za atomsku energiju 2013/59/EURATOM (European Atomic Energy Community ili EAEC) [4], zemlje članice Evropske unije treba da vrše identifikaciju stambenih i radnih prostorija u kojima srednja godišnja koncentracija radona prelazi referentni nivo od 300 Bq/m³, da podstiču smanjenje koncentracije radona u tim objektima i da pružaju informacije na lokalnom i nacionalnom nivou o izloženosti radonu i

odgovarajućem zdravstvenom riziku. S druge strane, trenutno važeći Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima u Republici Srbiji propisuje nivo radona od 200 Bq/m^3 za objekte novije gradnje i 400 Bq/m^3 za objekte stare gradnje [5]. Kontinuirano praćenje radona se može koristiti za procenu izloženosti, kada početni nivoi radona prevazilaze 1000 Bq/m^3 ili kada su merenja radona veća od 300 Bq/m^3 uprkos implementaciji mera za ublažavanje nivoa radona [5].

Na osnovu datih preporuka, cilj ovog rada je da se predstavе i analiziraju rezultati monitoringa koncentracije radona u radnom prostoru (laboratoriji fizike PMF-a u Kosovskoj Mitrovici) u sezonama jesen/zima/proleće 2022/23, kao i da se uporede sa ranijim merenjima.

Mesto i metod istraživanja

Monitoring radona se nekoliko godina sprovodi u laboratoriji fizike PMF-a u Kosovskoj Mitrovici (N 42.897° , E 20.867°). Kosovskomitrovički region je karakterističan u geološkom smislu: kroz različite periode nastanka geoloških formacija, intenzivna vulkanska aktivnost u prošlosti proizvela je izlive različitih stena (ruda i minerala); seizmički je klasifikovan kao region umerene opasnosti do regiona visokog rizika prema Evropskoj mapi seizmičkog rizika koja prikazuje podrhtavanje tla; u regionu postoji aktivan rased u pravcu SZ-JI koji prati rečnu dolinu [6, 7]. Takođe, u okolini Kosovske Mitrovice nalazi se rudnik olovo-cinkane rude “Trepča”, što može ukazati na prirodno povećane vrednosti radionuklida, ali i usled rudarenja.

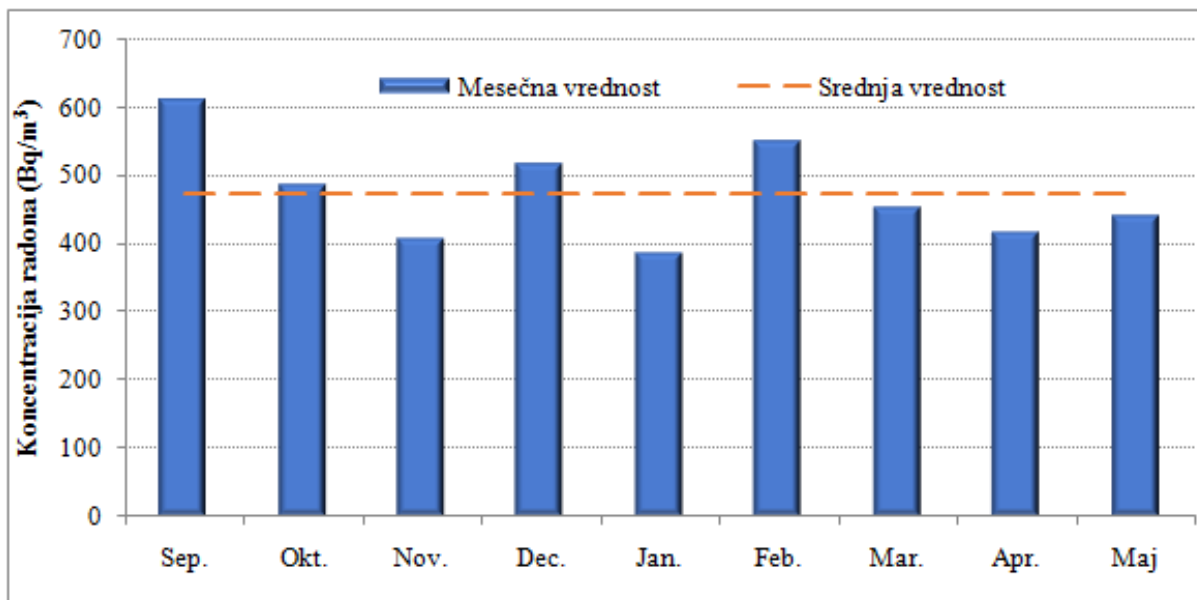
Kontinuirana merenja u tri sezone, u periodu 15.09.2022 – 24.05.2023. godine, izvršena su detektorom Airthings Corentium Home [8]. Za postavljanje detektora izabrana je laboratorija fizike koja se nalazi u suterenu zgrade stare preko 50 godina. Zgrada u kojoj je smešten fakultet ima slabu betonsku ploču; pod laboratorije je prekriven parketom sa vidljivim pukotinama, dok je plafon od betona; spoljni zidovi su od cigle, malterisani, prekriveni bojom, a unutrašnji zidovi su od gipsanih tabli; u prostoriji su PVC prozori; ventilacija je prirodna.

Detektor je postavljen u sredini prostorije na visini od 1,2 m. Očitavanja vrednosti koncentracije radona sa detektora su vršena uglavnom svakog radnog dana u istom vremenskom intervalu, (8.00 - 9.00) h. Detektor prikazuje prosečne koncentracije radona: dnevnu vrednost (usrednjenu iz sata u sat) i nedeljnu vrednost (usrednjenu na svakih 24 h). Opseg merenja je od (0 - 9999) Bq/m^3 . Rad detektora Airthing Corentium Home zasnovan je na procesu difuzije radona u komoru. Metoda detekcije je alfa spektrometrijska. Merna nesigurnost detektora pri tipičnoj koncentraciji od 200 Bq/m^3 je (5 - 10) % za period merenja od 7 dana do dva meseca, a merna nesigurnost u toku jednog meseca je manja od 10 % [8].

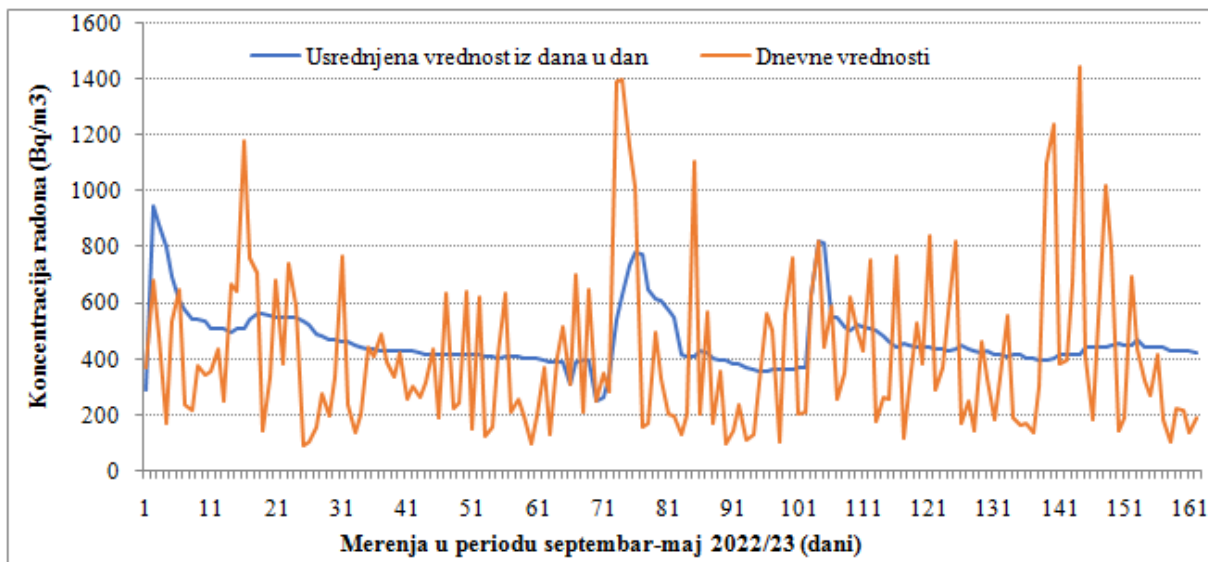
Rezultati i diskusija

Na Slici 1. su predstavljene srednje mesečne koncentracije radona u laboratoriji: srednja vrednost za tri sezone merenja je 475 Bq/m^3 , dok su srednje vrednosti po mesecima (septembar-maj), respektivno: 613 Bq/m^3 , 488 Bq/m^3 , 407 Bq/m^3 , 517 Bq/m^3 , 385 Bq/m^3 , 549 Bq/m^3 , 454 Bq/m^3 , 418 Bq/m^3 i 441 Bq/m^3 . Mesečne vrednosti tokom perioda merenja daju približno ujednačene koncentracije radona s tendencijom naglog pada u jesenjim mesecima, najnižom mesečnom vrednošću u januaru mesecu i blagog pada u prolećnim mesecima. Porast koncentracije radona se primećuje u decembru i februaru. Maksimalna mesečna vrednost je evidentirana u septembru; takođe, prosečne koncentracije radona u oktobru, decembru i februaru su veće od srednje vrednosti za ceo period merenja. Na dnevnom nivou (iz dana u dan) primećuju se znatne varijacije koncentracije radona; za ceo period očitane dnevne vrednosti su se kretale u opsegu (90 - 1446) Bq/m^3 (Slika 2). Ove

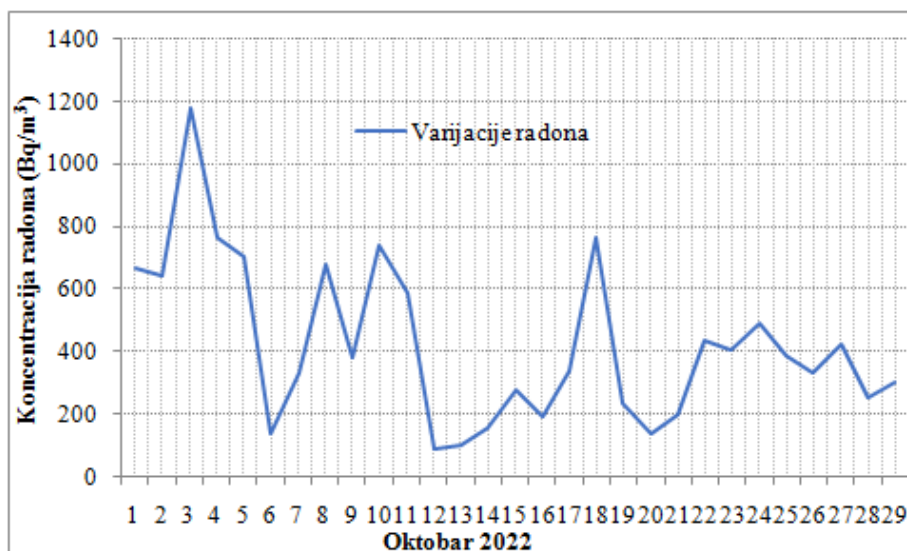
promene su uglavnom uslovljene navikama zaposlenih u toku radnog vremena, što uključuje ventilaciju prostora [9]. Na Slici 3 prikazane su kao primer, varijacije u koncentracijama radona u toku meseca oktobra (vrednosti su očitavane jednom dnevno; detektor je u toku 24 h na sat vremena ažurirao vrednost). Mesečne varijacije u koncentraciji radona su dokumentovane i u drugim studijama [10]. Pored meteoroloških parametara na fluktuacije radona mogu da utiču i procesi povezani sa iskopavanjem rude i podrhtavanjem tla.



Slika 1. Mesečne vrednosti koncentracije radona u laboratoriji



Slika 2. Varijacije koncentracije radona u laboratoriji u tri sezone



Slika 3. Varijacije koncentracije radona na dnevnom nivou u oktobru 2022

Visoke prosečne koncentracije radona (573 Bq/m^3) u laboratoriji fizike izmerene su ranije istim detektorom u periodu jesen/zima 2018/19, a dve godine kasnije izmerene su niže prosečne vrednosti (210 Bq/m^3) u periodu oktobar-februar 2020/21 [11]. Ugljenim kanisterima u februaru 2019 izmerena je vrednost (726 ± 17) Bq/m^3 , i zatim u proleće 2021 kada su rezultati bili (231 ± 8) Bq/m^3 i (358 ± 9) Bq/m^3 na polici i na podu, redom [12]. Monitoring radona je nastavljen, i izmerene vrednosti koncentracije radona ne pokazuju znatnija odstupanja od merenih vrednosti do sada, uglavnom su veće od 300 Bq/m^3 .

Razlog visokih vrednosti koncentracije radona je najverovatnije podna obloga. Pod u laboratoriji nije obnavljan od perioda izgradnje, pa je verovatno da radon prolazi kroz pukotine među spojevima parketa. Stariji objekti uglavnom imaju povišenu koncentraciju radona i izmerene koncentracije ukazuju da je dominantan izvor radona tlo ispod objekta.

EURATOM je dao preporuke da referentni nivo radona u zatvorenim prostorijama ne prevazilazi vrednost od 300 Bq/m^3 . Prema dobijenim rezultatima vrednosti koncentracije radona na ovom radnom mestu prevazilaze referentni nivo prema osnovnim bezbednosnim standardima za zaštitu od izlaganja radonu. Stoga je bitno podizanje svesti stanovništva, u ovom slučaju zaposlenih, o negativnom uticaju radona na zdravlje, i podsticanje na primenu mera za smanjenje koncentracije radona u zatvorenom prostoru. S tim u vezi date su preporuke za češću ventilaciju laboratorije.

Zaključak

Naučna istraživanja pokazuju povećan zdravstveni rizik od izlaganja radonu za stanovništvo koje živi i radi u rudarskim oblastima. Više puta ponovljena merenja nesumnjivo pokazuju konstantno prisustvo visokih koncentracija radona u radnom prostoru. Monitoring radona doprinosi povećanju svesti stanovništva o štetnom uticaju, i istovremeno sprovođenju mera za redukciju radona u radnom prostoru, a prema preporukama EURATOM-a. Imajući u vidu veće vrednosti radona od referentnih preporučenih za stare objekte u Republici Srbiji, potrebno je ispitati i uticaj mera povećanja energetske efikasnosti (u smislu zamene prozora) na nivoe radona u radnom prostoru.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/ 200123).

Literatura

- [1] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and effects of ionizing radiation, UNSCEAR 2008, Report to the General Assembly with Scientific Annexes, United Nations, New York, 2010.
- [2] World Health Organization (WHO), Handbook on Indoor Radon, WHO, Geneva, 2009.
- [3] US EPA, United States Environmental Protection Agency. <https://www.epa.gov/radon>
- [4] European Council. Council Directive 2013/59/Euratom: Basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, Official J Eur Union 57(L13):1–73, 2014.
- [5] Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima, Sl. gl. RS, br. 86/2011, 2011.
- [6] M.D. Dimitrijević, Geologija Jugoslavije, Geol. Inst. GEMINI, 1997.
- [7] D. Giardini, J. Woessner, L. Danciu, et al. SHARE European Seismic Hazard Map for Peak Ground Acceleration, 10% Exceedance Probabilities in 50 Years, Zurich, 2013.
- [8] Airthings Corentium Home: Radon Detector. Corentium AS. <https://www.airthings.com/home>
- [9] G. Venoso, A. Iaconi, G. Pratesi, M. Guazzini, L. Boccini, E. Corbani, S. Bucci, F. Leonardi, R. Trevisi, M. Ampollini, S. Antignani, M. Caprio, C. Carpentieri, C. Di Carlo & F. Bochicchio. Impact of temporal variability of radon concentration in workplaces on the actual radon exposure during working hours. *Sci Rep* 11, 16984, 2021.
- [10] C. Taşköprü, M. İçedef & M.M. Saç. Diurnal, monthly, and seasonal variations of indoor radon concentrations concerning meteorological parameters. *Environ Monit Assess* 195, 25, 2023.
- [11] L. Gulan, D. Spasić, B. Drobac, N. Bačević. Indoor Radon monitoring as a useful predictor of earthquake occurrences in the Balkan region, Proceedings of The first international conference on sustainable environment and technologies “*Create sustainable community*”, 24-25. September 2021, Belgrade, 139-145.
- [12] L. Gulan, S. Forkapić, D. Spasić, J. Živković Radovanović, J. Hasman, R. Lakatoš, S. Samardžić. Identification of high radon dwellings, risk of exposure, and geogenic potential in the mining area of the “TREPČA” complex, *Indoor Air* 32:e13077, 2022, ISSN: 0905-6947

**MONITORING OF RADON CONCENTRATION IN THE WORKPLACE,
LABORATORY OF FACULTY IN KOSOVSKA MITROVICA**Ljiljana GULAN¹, Dušica SPASIĆ¹, Boris DROBAC¹

1) *Faculty of Science and Mathematics, University of Priština in Kosovska Mitrovica,
Kosovska Mitrovica, Serbia*

SUMMARY

The paper presents the results of radon monitoring in the workplace, in accordance with the directive of the Council of the European Union (Directive 2013/59/EURATOM), which obliges the member states to determine national reference levels of radon concentration in buildings. Radon concentration was measured from September 15, 2022 to May 24, 2023, with an active Corentium Home radon detector installed in the laboratory of Faculty in Kosovska Mitrovica, in the basement of a building over 50 years old. Daily values of radon concentration varied in the range of (90 - 1446) Bq/m³, while the average monthly value varied in the range of (248 - 950) Bq/m³; the mean value for the period is 475 Bq/m³. In this area, high radon concentrations in residential houses were previously recorded, which are related to the geology of area and technological activities. Measurements show that values of radon concentration exceed the reference level of 300 Bq/m³ defined by EURATOM, and also the intervention level of 400 Bq/m³ for buildings of older construction, determined by the national Rulebook on exposure limits to ionizing radiation.

ISPITIVANJE KONCENTRACIJE AKTIVNOSTI RADONA SA VODOIZVORIŠTA U CRNOJ GORI

Ranko ZEKIĆ¹, Tijana MILIVOJEVIĆ¹, Tomislav ANĐELIĆ¹

1) *Centar za ekotoksikološka ispitivanja Podgorica, Crna Gora*

Autor za korespondenciju: Ranko ZEKIĆ, ranko.zekic@ceti.me

SAŽETAK

Ispitivanje radona u vodi za piće sa svih vodoizvorišta u Crnoj Gori izvršena je prvi put tokom 2020. godine. U ovom radu prikazani su rezultati sa 68 vodoizvorišta u Crnoj Gori, Mjerenje koncentracije aktivnosti radona u uzorcima vode za piće izvršena su sa jonizacionom komorom AlphaGUARD PQ 2000pro u kombinaciji sa AquaKIT sistemom za mjerenje radona u vodi proizvođača Genitron. Određivanje koncentracije aktivnosti radona izvršeno je u skladu sa standardnom metodom ISO 13164-3. Može se zaključiti da je 82,3 % dobijenih rezultata ≤ 5 Bq/l, što ukazuje na veoma nisku koncentraciju aktivnosti radona u ispitivanim uzorcima. Takođe, procentualno se najviše rezultata nalazi u kategoriji koncentracije aktivnosti $2 \leq A \leq 3$ Bq^l⁻¹. Minimalna detektibilna aktivnost (MDA) za koncentraciju aktivnosti radona 0,30 Bq^l⁻¹.

Uvod

Tokom 2020. godine Centar za ekotoksikološka ispitivanja (CETI) je realizovao Analize monitoringa radioaktivnosti u vodi za piće na teritoriji Crne Gore. Crna Gora je u obavezi da ispuni odredbe Direktive Savjeta Evrope 2013/59 EURATOM o osnovnim sigurnosnim standardima za zaštitu od opasnosti koja potiče od izloženosti jonizujućem zračenju koje se odnose na monitoring radioaktivnosti. Takođe je u obavezi da ispuni i odredbe Direktive Savjeta Evrope 2013/51/EURATOM od 22. oktobra 2013. (u daljem tekstu Direktiva) o utvrđivanju zahtjeva za zaštitu zdravlja stanovništva od radioaktivnih supstanci u vodi namijenjenoj za ljudsku potrošnju, što je i obaveza u pregovaračkom Poglavlju 15 Energetika [1].

Cilj Analize monitoringa je dobijanje rezultata koji predstavljaju osnov i smjernice za donošenje i usvajanje Pravilnika o monitoringu radioaktivnih supstanci u vodi namijenjenoj za ljudsku potrošnju.

Zahtjevi Direktive jeste analiza sljedećih parametara:

1. Ukupna alfa i beta aktivnost u vodi za piće;
2. Koncentracija aktivnosti tricijuma u vodi za piće,
3. Koncentracija aktivnosti radona u vodi za piće.

Prema popisu stanovništva iz 2011. godine teritorija Crne Gore je administrativno podijeljena na 21 opštinu. Iako su nakon te godine formirane još 3 opštine, zbog nedostupnosti podataka u novoformiranim opštinama vodosnabdijevanje je analizirano u 21 opštini. Stanovništvo se u ovim opštinama organizovano snabdijeva vodom preko opštinskih vodovodnih sistema i velikog broja vodovodnih sistema mjesnih zajednica, malih seoskih, grupnih i individualnih vodovoda. Za vodosnabdijevanje opština koriste se lokalna vodoizvorišta. U primorskim opštinama Budva, Kotor, Tivat, Ulcinj i Bar dostupna je i voda iz regionalnog vodovodnog sistema za Crnogorko primorje.

U Crnoj Gori se voda obezbjeđuje sa 70 izvorišta, od kojih je najviše zahvaćenih vrela u razbijenoj karstnoj izdani, zatim zahvata u zbijenoj izdani, zatim zbijenoj izdani, dok se u dva vodovoda koristi voda iz površinskih akumulacija (Pljevlja i Herceg Novi) [2].

Radioaktivnost u vodi za piće

Voda za piće sadrži radioaktivne supstance, radionuklide, koji mogu predstavljati potencijalni rizik po zdravlje ljudi. Ovi rizici, u poređenju sa rizicima koji potiču od mikroorganizama i hemikalija u vodi za piće, predstavljaju manju opasnost. Osim u ekstremnim okolnostima, radijaciona doza koja potiče od ingestije vode za piće je mnogo manja nego doza primljena od drugih izvora radijacionog zračenja. Ljudi uobičajeno ingestijom prime godišnju radijacionu dozu od približno 0,3 mSv, a svega 5 % ove vrijednosti je doprinos vode za piće. Pomenuta doza od 0,3 mSv predstavlja 10 % od prosječne godišnje radijacione doze ($\approx 2,4$ mSv) koju primi osoba od svih prirodnih izvora zračenja (kosmički zraci, zemljište, radon, ishrana) [3].

Radionuklidi u vodi za piće potiču od prirodnih ili, mnogo manje, od vještačkih izvora. Prirodno prisutni radionuklidi uglavnom daju veći doprinos radijacionoj dozi od vještačkih i stoga im se pridaje veća važnost. U pogledu procjene rizika po zdravlje ljudi, ne pravi se razlika između prirodnih i vještačkih radionuklida. Međutim, u pogledu upravljanja rizicima napravljena je razlika iz razloga što se vještački radionuklidi mogu kontrolisati na mjestima ispuštanja. Za razliku od njih prirodno prisutni radionuklidi mogu potencijalno dospjeti u sistem vodosnabdijevanja u jednoj ili više tačaka prije dospijevanja do potrošača.

Od posebnog su značaja za ljudsko izlaganje radijacionom zračenju iz vode za piće su prirodni radionuklidi ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{234}U , ^{238}U , ^{210}Pb i ^{222}Rn . Koncentracije aktivnosti prirodno prisutnih radionuklida mogu da variraju širom zemlje, jer zavise od geologije i hidrologije [4].

Kriterijumi za procjenu rizika po zdravlje ljudi, koji potiče od radionuklida u vodi za piće su: granične vrijednosti, preporučeni nivoi i individualna doza. Individualna doza predstavlja osnovu i smjernicu za određivanje graničnih vrijednosti i preporučenih nivoa i iznosi 0,1 mSv/god i to predstavlja veoma nizak nivo rizika po zdravlje ljudi.

Preporučeni nivo predstavlja koncentraciju aktivnosti radionuklida koja ako je prisutna u vodi za piće koja se konzumira tokom godine u količini od 2 litra dnevno daće individualnu dozu jednaku 0,1 mSv [4]. Ukoliko je identifikovano nekoliko radionuklida, suma radionuklida se mora odrediti kako bi se ustanovilo da individualna doza nije prekoračena.

Preporučeni nivo za radon u vodi za piće iznosi 100 Bq/l, dato u Direktivi (5).

Individualna doza je kriterijum za procjenu rizika po zdravlje ljudi usljed dugog izlaganja radionuklidima u vodi za piće.

Važno je istaći da individualna doza ne predstavlja limit iznad kojeg voda za piće nije bezbjedna za konzumaciju. Granične vrijednosti predstavljaju ukupnu koncentraciju aktivnosti u vodi za piće i ukoliko se one prekorače pretpostavlja se da je individualna doza prekoračena i mora se odrediti koncentracija aktivnosti pojedinačnih radionuklida u skladu sa preporučenim nivoima kako bi se utvrdilo da li je individualna doza prekoračena.

Referentni nivo predstavlja nivo doze ili rizika iznad kojeg se procjenjuje da je neprikladno dozvoliti dalje izlaganje zračenju koje potiče od vode za piće.

Mjerenje koncentracije aktivnosti radona u uzorcima vode za piće izvršena su jonizacionom komorom AlphaGUARD PQ 2000pro u kombinaciji sa AquaKIT sistemom za mjerenje

radona u vodi proizvođača Genitron. Određivanje koncentracije aktivnosti radona u vodi za piće u skladu sa standardnom metodom ISO 13164-3 (6).

Rezultati ispitivanja

Od ukupno 70 vodoizvorišta, sa dva nije bilo moguće izvršiti uzorkovanja, jer nijesu bili u funkciji. Ukupan broj uzorkovanih vodoizvorišta je 68.

U Tabeli 1 su prikazani rezultati mjerenja koncentracije aktivnosti radona u vodi za piće (A). Osim njih, u tabeli su prikazani i sledeći parametri: nadmorska visina vodoizvorišta (mnm), temperatura uzorkovane vode (t_{uzorka}) i vazduha ($t_{vazduha}$), kiselost-alkalnost (pH) i provodljivost vode E_c .

Tabela 1: Sumarna tabela sa rezultatima ispitivanja po opštinama

ANDRIJEVICA						
Lokacija	mnm	t_{uzorka} ($^{\circ}$ C)	$T_{vazduha}$ ($^{\circ}$ C)	pH	E_c (μ Scm $^{-2}$)	A 222 Rn (Bq/l)
Krkori	1010	8,5	15	7,83	241	1,2 \pm 0,5
BAR						
Turčini I	250	15,9	22	7,66	405	3,4 \pm 1,0
Turčini II	290	13,2	20	7,74	354	\leq MDA
Sustaš	230	14,5	19	7,43	370	4,0 \pm 1,2
Kajnak	80	13,6	19	7,7	290	0,8 \pm 0,4
Brca	44	13,0	17	7,66	385	1,3 \pm 0,5
Zaljevo	100	14,5	19	7,59	311	2,7 \pm 1,1
Velje oko	26	13,0	14	7,41	356	2,5 \pm 1,0
Orahovo polje	9	15,0	13	7,3	491	12,9 \pm 1,3
Vrelo	35	14,2	16	7,16	314	1,0 \pm 0,5
Bunar B1	17	15,5	16	7,30	515	7,6 \pm 1,5
Bunar B2	25	15,0	16	7,38	541	7,1 \pm 1,4
BERANE						
Merića vrelo	980	7,0	14	7,62	162	2,4 \pm 1,0
Manastirsko vrelo	690	8,3	14	7,60	201	5,6 \pm 1,1
BIJELO POLJE						
Vrelo Bistrice	735	9,3	15	7,81	281	2,3 \pm 0,9
BUDVA						
Reževića rijeka	80	13,0	29	7,15	400	1,5 \pm 0,6
Buljarica	10	13,5	29	7,04	479	11,6 \pm 1,2
Piratac	410	12,3	24	7,26	437	2,9 \pm 1,2
Loznica	130	12,7	28	7,18	334	2,2 \pm 0,9
CETINJE						
Podgorska vrela	180	9,5	19	7,60	348	3,0 \pm 1,0
Uganjska vrela	690	7,3	22	7,63	257	1,5 \pm 0,6
Obzovica	840	8,5	23	7,75	256	\leq MDA
DANILOVGRAD						
Slatina	100	15,0	17	7,50	276	5,0 \pm 1,0
Oraška jama	50	13,5	17	7,10	256	1,4 \pm 0,6
Žarića jama	60	15,5	18	7,30	428	2,9 \pm 1,2
Brajovića jama	58	16,0	22	7,01	406	4,5 \pm 1,4
Milojevića vrela	50	12,5	17	7,30	267	2,2 \pm 0,9
Viški bunar	50	11,0	18	7,76	247	2,2 \pm 0,9
HERCEG NOVI						
Opačica	10	15,0	23	7,68	358	3,5 \pm 1,0
KOLAŠIN						
Mušovića vrelo	1060	8,0	14	6,54	200	1,7 \pm 0,7
KOTOR						
Grbaljski izvori	360	14,5	21	7,55	288	1,8 \pm 0,7
Simiš	260	15,2	21	7,48	404	4,3 \pm 1,3

Spila	20	13,8	22	7,67	366	0,6 ± 0,3
Tunel Vrmac	60	13,2	20	7,41	346	≤ MDA
Škurda-Tabačina	20	14,9	21	7,56	353	≤ MDA
МОЈКОВАC						
Gojakovići	960	8,0	16	7,40	223	≤ MDA
НИКШИЋ						
Gornji Vidrovan	712	10,0	15	7,40	207	0,5 ± 0,2
Donji Vidrovan	680	11,1	15	7,20	215	0,7 ± 0,4
PLAV						
Jasenička rijeka	1052	11,0	23	7,73	271	9,9 ± 2,0
PLUŽINE						
Sutulija	1040	9,6	18	7,42	227	0,8 ± 0,4
PLJEVLJA						
Jugoštica	956	11,0	25	7,25	447	1,1 ± 0,4
Breznica	821	10,0	26	6,77	436	0,7 ± 0,4
Zmajevac	920	9,5	25	7,38	369	0,4 ± 0,2
Mandojevac	937	9,0	21	7,56	325	1,0 ± 0,5
Bezarska vrela	881	9,5	24	7,11	488	1,6 ± 0,6
Akumulacija Otilovići	787	9,0	20	7,64	354	≤ MDA
PODGORICA						
Mareza	35	11,3	22	7,70	313	1,9 ± 0,8
Zagorič	63	15,3	21	7,60	376	7,2 ± 1,4
Čemovsko polje	63	15,5	19	7,60	347	1,9 ± 0,8
Milješ	70	15,5	22	7,13	346	4,8 ± 1,4
Dinoša	80	13,3	21	7,37	259	3,7 ± 1,1
Vuksanlekići	30	15,0	21	7,14	328	6,0 ± 1,2
ROŽAJE						
Vrelo Ibra	1256	8,0	23	7,63	220	0,6 ± 0,3
ŠAVNIK						
Izvorište rijeke Šavnik	800	10,3	21	7,34	296	1,1 ± 0,4
TIVAT						
Plavda	6	12,0	23	7,90	316	5,0 ± 1,0
Češljar	90	15,0	22	7,89	452	1,6 ± 0,6
Baštin	100	15,0	21	7,48	478	12,6 ± 1,3
ULCINJ						
Salč	270	15,3	16	7,58	323	2,9 ± 1,2
Brajša	229	13,0	20	7,30	195	1,3 ± 0,5
Gač	68	14,5	18	7,40	356	12,5 ± 1,2
Klezna	51	15,7	18	7,50	405	1,5 ± 0,6
Mide I	430	15,3	16	8,05	248	≤ MDA
Mide II	440	13,6	16	7,96	271	3,4 ± 1,0
Kaliman I	410	14,2	17	7,92	248	1,5 ± 0,6
Kaliman II	290	15,3	17	8,07	240	0,4 ± 0,2
Lisni Bori	49	15,5	21	7,45	678	9,5 ± 1,9
ŽABLJAK						
Oko	1530	10,2	17	7,40	212	13,7 ± 1,4
Mlinski potok	1430	15,5	18	7,78	226	≤ MDA

U Tabeli 2 je prikazana procentualna zastupljenost dobijenih rezultata koncentracije aktivnosti radona u vodi za piće, na cijeloj teritoriji Crne Gore. Iz tabele se može zaključiti da je 82,3 % dobijenih rezultata ≤ 5Bq/l, što ukazuje na nisku koncentraciju aktivnosti radona u ispitanim uzorcima.

Tabela 2: Procentualna zastupljenost koncentracije aktivnosti radona u vodi za piće u Crnoj Gori

Redni broj	A (Bq/l)	Učestalost	Procentualna zastupljenost (%)
1.	$0 < A \leq 1$	19	27,9
2.	$1 < A \leq 2$	15	22,1
3.	$2 < A \leq 3$	12	17,6
4.	$3 < A \leq 5$	10	14,7
5.	$5 < A \leq 10$	7	10,3
6.	$10 < A \leq 15$	5	7,4
Σ		68	100

Tabela 3: Rezultati deskriptivne statistike

<i>Crna Gora</i>	
Srednja vrijednost	3,25
Standardna greška	0,42
Medijana	2,05
Mod	0,3
Standardna devijacija	3,46
Relativna standardna devijacija	1,06
Raspon	13,4
Minimum	0,3
Maksimum	13,7
Suma	220,8

Zaključak

Određivanje sadržaja radionuklida u vodi za piće je od velikog značaja sa stanovišta zaštite stanovništva od radijacionog zračenja.

Koncentracije aktivnosti radona na svih 68 ispitivanih vodoizvorišta ne prelaze granične vrijednosti koje su propisane zakonom i Direktivom. Šta više, ove koncentracija aktivnosti su daleko ispod maksimalno dozvoljene granice (MDK). Najveća dobijena vrijednost koncentracije aktivnosti radona iznosi $13,7 \text{ Bq/m}^3$.

Od velike je važnosti ustanoviti trend koncentracije aktivnosti tokom vremena. Monitoringom radioaktivnosti vode za piće obezbijediće se informacije o stabilnosti koncentracija aktivnosti radionuklida, kao i to da li oni podliježu fluktuaciji tokom godine usled prirodnih procesa. Veoma važan parametar u kreiranju Programa monitoringa jeste i frekvencija uzorkovanja. Frekvencija uzorkovanja zavisi od nekoliko faktora: a) nivoa koncentracije aktivnosti, b) vrste izvora vodosnabdijevanja (površinska ili podzemna voda) i c) varijacija koncentracije aktivnosti tokom godine. Stoga je veoma bitno ustanoviti da li je uzorak, uzet u određenoj situaciji, reprezentativan tokom cijele godine. Novo vodoizvorište za snabdijevanje stanovništva vodom za piće bi trebalo biti podvrgnuto provjeri radiološke ispravnosti prije samog projektovanja i izgradnje vodovodnog sistema.

U skladu sa smjernicama Svetske zdravstvene organizacije, monitoring program treba koncipirati tako da se u postojećim vodoizvorištima analiziraju uzorci vode u toku četiri godine, četiri puta u četiri različita kvartala. U novim vodoizvorištima treba analizirati uzorke četiri puta tokom jedne godine, odnosno jednom kvartalno.

Literatura

- [1] Ministarstvo održivog razvoja i turizma, Strategija zaštite od jonizujućeg zračenja, radijacione sigurnosti i upravljanja radioaktivnim otpadom za period od 2017-2021. godine sa akcionim planom za period od 2017-2021, Crna Gora, 2016.
- [2] Ministarstvo poljoprivrede i ruralnog razvoja, strategija upravljanja vodama Crne Gore, Crna Gora, 2017.
- [3] World Health Organization (WHO), Management of Radioactivity in drinking water, Switzerland, 2018.
- [4] World Health Organization (WHO), Guidelines for drinking-water quality, 4th edition, Switzerland, 2017.
- [5] Council Directive 2013/51/EUROATOM laying down requirements for the protection of the health of the general public with regard to radioactive substances in water intended for human consumption, Official Journal of the European Union, European Commission, Brussels, 2013.
- [6] International Organisation for Standardization, ISO 13164-3 Water quality – Radon-222-Part 3: Test method using emanometry, Switzerland, 2013.

INVESTIGATION OF RADON ACTIVITY CONCENTRATION FROM WATER SOURCES IN MONTENEGRO

Ranko ZEKIĆ¹, Tijana MILIVOJEVIĆ¹, Tomislav ANĐELIĆ¹

1) *Center for Ecotoksikological Research, Podgorica*

ABSTRACT

Measurement of the activity concentration of radon in drinking water from all water sources in Montenegro was carried out for the first time in 2020. This paper presents the results from 68 water sources in Montenegro. It can be concluded that 82.3 % of the obtained results are ≤ 5 Bq/l, which indicates a very low concentration of radon activity in the tested samples. Also, the highest percentage of results is found in the activity concentration category $2 \leq A \leq 3$ Bq/l.

**МЕТОДЕ ДЕТЕКЦИЈЕ И
МЕРНА ИНСТРУМЕНТАЦИЈА**

**DETECTION METHODS AND
MEASUREMENT INSTRUMENTATION**

PONOVLJIVOST ODREĐIVANJA AKTIVNOSTI RADIONUKLIDA CS-137 IZ CILINDRIČNOG RADIOAKTIVNOG IZVORA

Jan HANSMAN¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹, Sofija FORKAPIĆ¹,
Kristina DEMIRHAN¹, Jovana KNEŽEVIĆ-RADIĆ¹

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

Autor za korespodencije: Jan HANSMAN, jan.hansman@df.uns.ac.rs

SAŽETAK

U ovom radu su predstavljeni rezultati određivanja aktivnosti radionuklida Cs-137 iz cilindričnog izvora. Snimanje spektara je vršeno periodično kao kontrola ispravnosti rada samog germanijumskog detektora. Određivanje aktivnosti Cs-137 je vršeno u odnosu na sertifikovanu aktivnost na datum proizvodnje radioaktivnog izvora [1].

Uvod

Kvalitet i stabilnost mernog sistema su od izuzetne važnosti u svakoj oblasti korišćenja. Isti je slučaj i kod visokorezolucionih gamaspektrometrijskih detektora. Potrebno je poznavati merne nesigurnosti samog uređaja i njihov uticaj na konačne rezultate ispitivanja pojedinih izvora ili uzoraka.

U Laboratoriji za nuklearnu fiziku u Novom Sadu, postoji više sistema germanijumskih detektora a u ovom radu će biti predstavljeni rezultati za jedan takav sistem. Isti princip se može primeniti i na sve ostale sisteme i to se i redovno radi kao kontrola kvaliteta.

Eksperiment

U ovom radu će biti predstavljeni rezultati dobijeni na jednom visokorezolucionom germanijumskom spektrometru. Ista metoda je primenjena na sve sisteme koji se nalaze u okviru Laboratorije za nuklearnu fiziku u Novom Sadu.

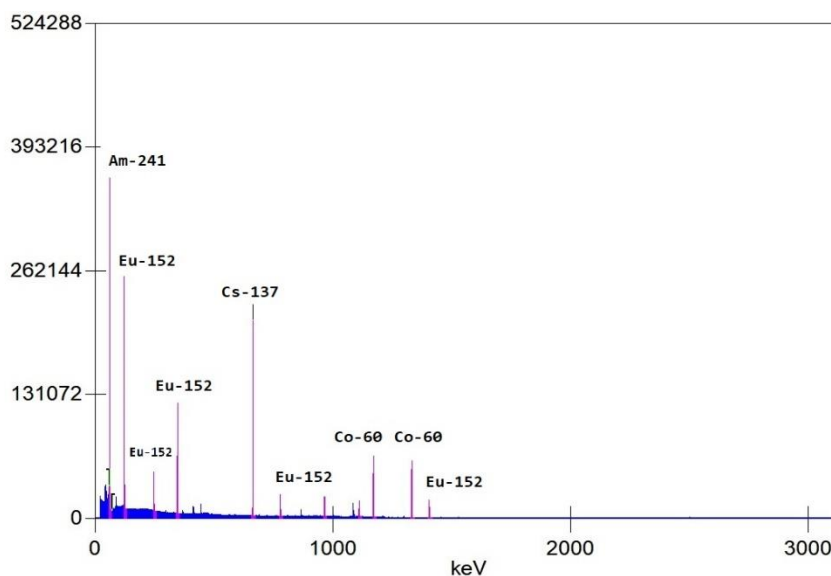
Korišćen je detektor koji nosi oznaku „K“ (slika 1) sledećih karakteristika: detektor model GC3518, serijski broj B05110, kriostat model 7935SL-7, predpojačavač 2002CSL. Detektor se nalazi u aluminijumskom kućištu, bez niskoenergetskog prozora i relativne je efikasnosti 35,6 %. Rezolucija detektora na 1332 keV-a je 1,77 keV-a FWHM i 3,29 keV-a FWTM. Peak/Compton odnos je 63,2:1. Veličina samog kristala germanijuma u detektoru je 61 mm promer kristala, 52 mm visina kristala a sam kristal se nalazi na 5 mm od površine „prozora“, u ovom slučaju od aluminijumskog kućišta. Detektor radi na naponu +4500 V, struja curenja je 0,01 nA [2].

Detektor je povezan sa računarom preko InSpector 2000 i koristi se softver Genie-2000 V3.0a [3]. Ovaj detektorski sistem se u Laboratoriji za nuklearnu fiziku u Novom Sadu nalazi od 2005-e godine. Detektor je smešten u olovnu zaštitu domaće izrade. Debljina zidova od olova je 12 cm a zidovi su iznutra obloženi slojem od 2 mm kalaja i 1 mm bakra. Celokupna zaštita je izlivena od starog otpadnog olova koje je mehanički prečišćeno i odstranjene su nečistoće koje su ostale u šljaci prilikom topljenja. Na sličan način je izliven i lim od kalaja koji se nalazi u sendviču između bakarnog lima i olova. Celokupna zaštita se nalazi na metalnom stolu i otvara se poklopac sa gornje strane pomoću dizalice na točkicama.



Slika 1: Detektorski sistem „K“ u Laboratoriji u Novom Sadu

Određivanje aktivnosti Cs-137 je vršeno pomoću sertifikovanog zapreminskog izvora [1]. Matrica izvora je silikonska smola ekvivalenta vodi, relativne gustine $(985 \pm 10) \text{ kg/m}^3$. Izvor je cilindrične geometrije, gde su visina i promer izvora po 70 mm, ukupne zapremine $(250,0 \pm 2,5) \text{ ml}$, mase 246,25 g. U samoj matrici izvora se osim posmatranog Cs-137, nalaze i radionuklidi Am-241, Eu-152, Co-60, Cd-109 i Co-57 (slika 2). Aktivnost izvora Cs-137 na sertifikovani datum 20.01.2017.g. iznosi $2938 \text{ Bq} \pm 1,3 \%$ kombinovane merne nesigurnosti.



Slika 2 : Snimljeni spektar sertifikovanog zapreminskog izvora (linije Cd-109 i Co-57 nisu naznačene na spektru usled malog odbroja)

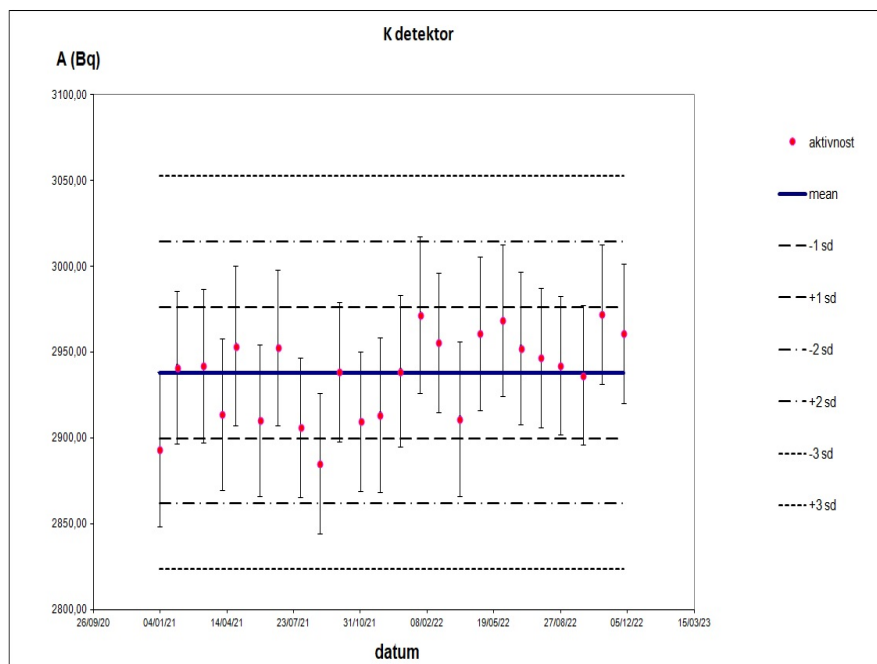
Rezultati

Opisani radioaktivni izvor se minimalno jednom mesečno postavlja direktno na samu kapu detektora i snima se spektar dužine od nekoliko hiljada sekundi (obično je u pitanju 5000-80000 sekundi). Efikasnost detektora za dati izvor na liniji Cs-137 (661,6 keV) je određena prilikom prvobitnog snimanja izvora i iz Monte-Carlo simulacija za datu eksperimentalnu postavku i iznosi $0,014394 \pm 5\%$.

Prilikom obrade spektara je vršen preračun vremena proteklog od referentnog dana radioaktivnog izvora, izračunata je korekcija na raspad radionuklida Cs-137 i iz odbroja pod fotopikom, izračunata aktivnost izvora Cs-137 korigovana na referentni datum izvora. Rezultati su prikazani u Tabeli 1 i na Grafiku 1.

Tabela 1 : Rezultati ponovljivosti određivanja aktivnosti Cs-137

redni broj	proteklo vreme od referentnog datuma (d)	korekcija na raspad	vreme merenja (s)	neto odbroj na 661,6 keV (c)	nesigurnost odbroja (c)	korigovana aktivnost na referentni datum (Bq)	merna nesigurnost aktivnosti (Bq)
1	1443	1,0954748	71536	2109886	5000	2893,28	45,06
2	1469	1,0972646	9007,19	269173	551	2941,14	44,22
3	1508	1,0999704	8048,7	239423	544	2942,07	44,88
4	1536	1,1019276	8877,32	260613	539	2913,88	44,23
5	1557	1,1033816	4882,12	144898	412	2953,63	46,60
6	1593	1,1058987	8901,29	259112	542	2910,15	44,29
7	1620	1,1077775	6654	195854	458	2952,61	45,10
8	1655	1,1101727	67042	1933867	1547	2906,11	40,52
9	1683	1,1121518	49578,76	1414744	1273	2885,10	40,80
10	1713	1,1142506	62579,57	1811886	1441	2938,43	40,54
11	1744	1,1164959	72687,11	2075607	1653	2909,73	40,52
12	1773	1,1185330	8091	230495	530	2913,45	44,90
13	1803	1,1206638	10537	301651	603	2938,93	44,07
14	1834	1,1227930	6590,51	190063	475	2971,86	45,63
15	1861	1,1247145	61745,86	1764868	1412	2955,56	40,56
16	1892	1,1269830	7484,4	209867	497	2911,20	45,09
17	1923	1,1291795	8021	227861	501	2960,86	44,71
18	1957	1,1316049	9472,47	268637	564	2968,54	44,43
19	1984	1,1335374	8339,64	234419	516	2952,35	44,70
20	2014	1,1356993	69837,68	1951877	1586	2946,73	40,59
21	2043	1,1377814	79134,15	2200171	1540	2942,12	40,26
22	2078	1,1402332	63364	1750870	1433	2936,63	40,60
23	2106	1,1422550	57576,58	1604416	1444	2971,99	40,87
24	2139	1,1446344	62224	1720330	1400	2961,00	40,61


Grafik 1 : Predstavljeni su rezultati aktivnosti određivanja Cs-137 iz Tabele 1. Isprekidane linije označavaju 1x, 2x i 3x standardnu devijaciju

Zaključak

Kako je prikazano u rezultatima, posle izvršene analize snimljenih spektara, pokazalo se da većina dobijenih rezultata (22 od 24) se nalaze u okviru vrednosti jedne standardne devijacije. Samo dve vrednosti od posmatranih 24 odstupaju više, ali su i one u okvir dve standardne devijacije. Maksimalan broj uzastopnih rezultata sa jedne strane srednje vrednosti iznosi 5, što je ispod granice upozorenja koja iznosi 7 [4]. Treba takođe i napomenuti da se kontrola kvaliteta merenja standardno izvodi sa po 20 uzoraka/merenja. Iz svega navedenog možemo zaključiti da autori i Laboratorija za Nuklearnu fiziku u Novom Sadu, mogu biti zadovoljni radom opisanog detektorskog sistema za određivanje aktivnosti izvora i uzoraka.

Zahvalnica

Autori se zahvaljuju na finansijskoj podršci Ministarstvu Prosvete, Nauke i Tehnološkog razvoja Republike Srbije (broj 451-03-68/2022-14/200125).

Literatura

- [1] Czech Metrology Institute Cert. No. 1035-SE-40001-17, 2017. (20.01.2017.)
- [2] Canberra IEEE standard test ANSI/IEEE std325-1996, 1996.
- [3] GENIE 2000 spectroscopy software 3.0, operations manual, Canberra industries, 2003.
- [4] Laboratorija za Nuklearnu fiziku, Novi Sad - Interna kontrola kvaliteta u laboratorijama za životnu sredinu - priručnik

**REPEATABILITY OF CS-137 RADIONUCLIDE ACTIVITY DETERMINATION
FROM CYLINDRICAL RADIOACTIVE SOURCE**

Jan HANSMAN¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹, Sofija FORKAPIĆ¹,
Kristina DEMIRHAN¹, Jovana KNEŽEVIĆ-RADIĆ¹

1) *University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Novi Sad, Serbia*

ABSTRACT

In this paper, authors present results of radionuclide Cs-137 activity determination from cylindrical source. Spectrum collections were periodical (approximately one in a month) as internal control of germanium detector. Results of activity determination of Cs-137 were performed on certificated activity and date of production [1].

VARIJACIJE FONA HPGE DETEKTORA

Jan HANSMAN¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹, Sofija FORKAPIĆ¹,
Kristina DEMIRHAN¹, Jovana KNEŽEVIĆ-RADIĆ¹

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

Autor za korespondenciju: Jan HANSMAN, jan.hansman@df.uns.ac.rs

SAŽETAK

Poznavanje fona germanijumskih detektora je od izuzetnog značaja, posebno prilikom određivanja niskih aktivnosti uzoraka ili ispitivanja retkih procesa. Različitim kombinacijama materijala se poboljšava kvalitet pasivne zaštite detektora a često se koriste i tzv. aktivne zaštite za smanjenje odbroja u spektru fona detektora. U ovom radu su predstavljeni rezultati varijacija pojedinih gama linija u spektru germanijumskog detektora tokom dužeg vremenskog perioda, gde su pojedinačni spektri snimani sa razmakom od otprilike mesec dana.

Uvod

Nastanak jezgara i prirodne radioaktivnosti, potiču prvenstveno od evolucije i eksplozije zvezda. A samo mali detalji prilikom nastanka, određuju da li će pojedini izotopi biti stabilni ili ne. U prvoj fazi sinteze jezgara (do atomskog broja reda 60), procesi se pretežno odigravaju posredstvom interakcije sa protonima i alfa česticama. Neka nastala jezgra ostaju stabilna dok druga budu radioaktivna. U ovom regionu periodnog sistema elemenata, ima relativno malo radioaktivnih jezgara i posebno malo ih ima dugačak period poluraspada. Izuzetak od tog pravila je K-40.

Nakon regiona posle atomskog broja reda 60, sinteza jezgara najviše ide preko zahvata neutrona. Ovo je slučaj sve do uranijuma sa atomskim brojem 92, nakon kojeg se formiraju jezgra koja nemaju stabilne izotope.

Osim sintezom jezgara, neka radioaktivna jezgra se stvaraju stalno u prirodi pomoću kosmičkog zračenja u atmosferi. Najznačajniji radioizotop iz ove grupe jezgara je naravno C-14 koji nastaje reakcijom kosmičkih neutrona sa N-14.

Radioaktivni lanci su grupe radioaktivnih jezgara čiji početni član je ili direktan proizvod nukleosinteze ili ostatak posle sinteze jezgara koja imaju veoma kratak period poluraspada. Prilikom raspada početnog člana, dolazi do serije potomaka koji nastaju ili emitovanjem alfa ili beta čestice. U prirodi su poznata tri takva radioaktivna lanca koji počinju sa Th-232 (Torijumov niz), U-238 (Uranijumov niz) i U-235 (Aktinijumov niz). Kao stabilno jezgro na kraju celog lanca se nalaze izotopi olova i to Pb-208, Pb-206 i Pb-207 respektivno u odnosu na navedene nizove [1].

Usled prisustva velikog broja radioaktivnih jezgara svugde u prirodi, logično je zaključiti da prilikom rada gamaspektrometrijskih sistema, dolazi do popunjavanja spektara na svim energijama. Koliko god dobro bio ceo sistem zaštićen, pojedine gama linije će se uvek naći u fonskim spektrima. Za određivanje niskih aktivnosti koji potiču od ispitivanog uzorka, od velike je važnosti dobro poznavati sam fon svakog uređaja i promenu fona tokom vremena.

Zbog prisustva radionuklida u praktično svakom materijalu koji se nalazi oko nas, za zaštitu germanijumskih detektora se najviše koristi što je moguće čistije olovo ili ponekad gvožđe (ako je moguće staro gvožđe, proizvedeno pre nuklearnih probi). Problem nastaje i pri samoj

upotrebi olovnih zaštita, pošto je praktično nemoguće izbeći prisustvo radioaktivnog Pb-210 u samoj olovnoj zaštiti detektora. Čak i komercijalno dostupne zaštite od olova, obično imaju samo tanak sloj tzv. čistog olova, koje je prečišćeno od radioaktivnih izotopa, dok spoljašnji deo zaštite obično bude od standardnog olova.

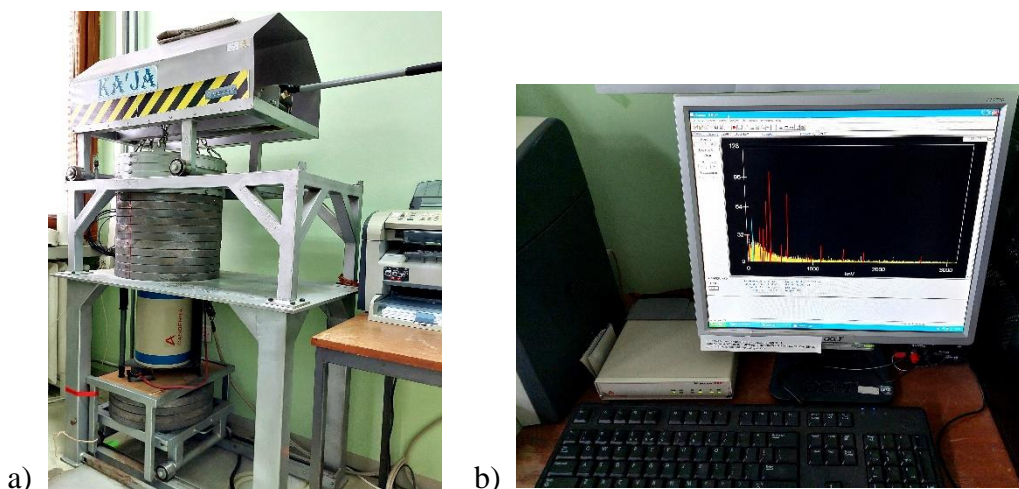
Veliki problem fonskim spektrima doprinose i gasni potomci koji se nalaze u svakom od nizova, te stoga radon i toron difunduju kroz prostoriju iz temelja i zidova i ulaze i unutar samih zaštita detektora i time doprinose povećanju fona detektorskih sistema. U slučaju zaštita malih dimenzija, obično se unutar zaštite uvodi crevo kroz koje isparava tečni azot za hlađenje germanijumskih detektora i time se izbacuju nakupljeni gasni radionuklidi iz zaštite i sprečava ulazak novih unutar zaštite.

Zaštita detektorskih sistema od kosmičkog zračenja se može izvršiti samo tzv. aktivnim šticeanjem detektora, gde se u koincidentni režim povezuju “plastični” detektori iznad germanijumskih sistema i elektronski odbacuju događaji koji istovremeno dolaze u obe vrste detektora.

Ekspерiment

Predstavljeni rezultati fona visokorezolucionog germanijumskog sistema u Laboratoriji za nuklearnu fiziku u Novom Sadu, će u ovom radu biti prikazani samo za jedan detektorski sistem. Ista vrsta kontrole promene fona se vrši redovno na svim detektorskim sistema u okviru Laboratorije u Novom Sadu. Pojedinačni spektri fona su snimani sa razmakom od 30-ak dana, tj. otprilike minimalno jednom u mesec dana. Prikazani rezultati su za 35 % germanijumski detektor, proizvođača Canberra, model GC3518. Ovaj detektor se nalazi u olovnoj zaštiti domaće izrade, debljina zidova 12 cm. Zaštita ima unutrašnji sloj od 2 mm kalaja i 1 mm bakra za snižavanje doprinosa X-zraka fonu detektora na niskim energijama spektra. Predstavljanje rezultata sa ovog detektorskog sistema je odabrano sa razlogom, pošto se ceo sistem nalazi u zaštiti koja je pravljena u okviru laboratorije i nije komercijalno kupljena. Takođe zbog specifične konfiguracije samog detektora, germanijumski detektor praktično nije zaštićen sa donje strane i to doprinosi višem fonu detektora (Slika 1a).

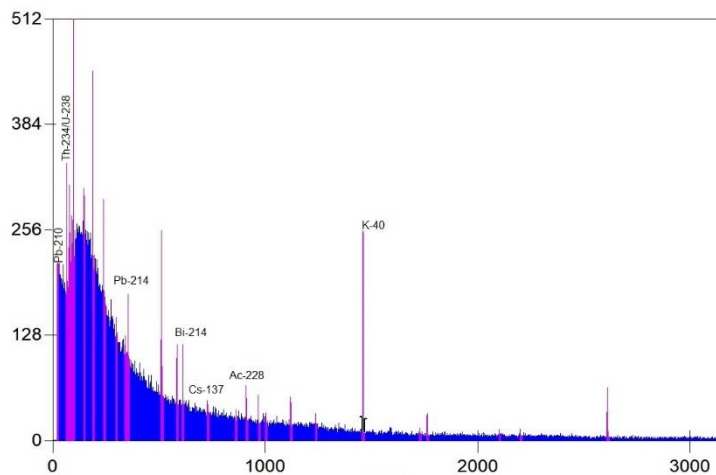
Detektor je povezan sa računарom preko InSpector 2000 i koristi se softver Genie-2000 V3.0a [2] (Slika 1b).



Slika 1:a) detektorski sistem; b) elektronika i softver

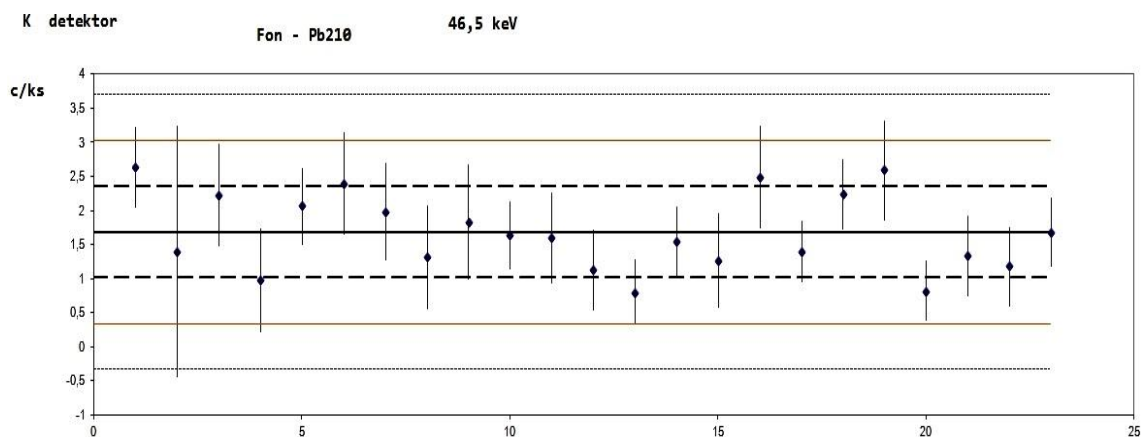
Rezultati

Prilikom odabira gama linija koje će se pratiti u fonu, vođeno je računa da se pokrije što veći deo fonskih spektara, od najnižih do visokih energija. A u isto vreme da se odaberu linije koje se najčešće javljaju u fonu i u ispitivanim uzorcima i koje mogu najviše i da utiču na određivanje konačnih rezultata aktivnosti ispitivanih uzoraka. Zbog toga su u obzir uzete linije Pb-210 na 46,5 keV, Th-234/U-238 na 63,3 keV, Pb-214 na 351,9 keV, Bi-214 na 609,3 keV, Cs-137 na 661,6 keV, Ac-228 na 911 keV i K-40 na 1460,8 keV (Slika 2).

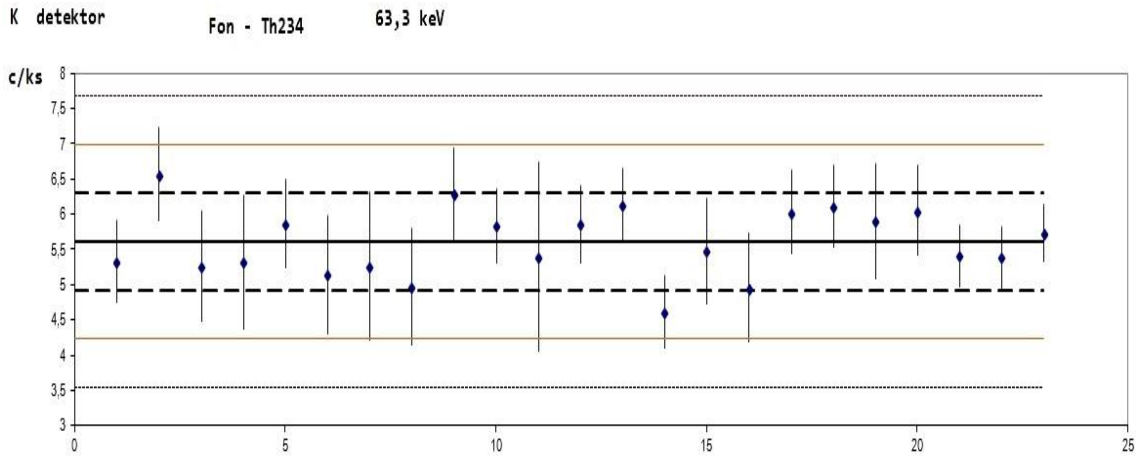


Slika 2 – spektar fona germanijumskog detektora

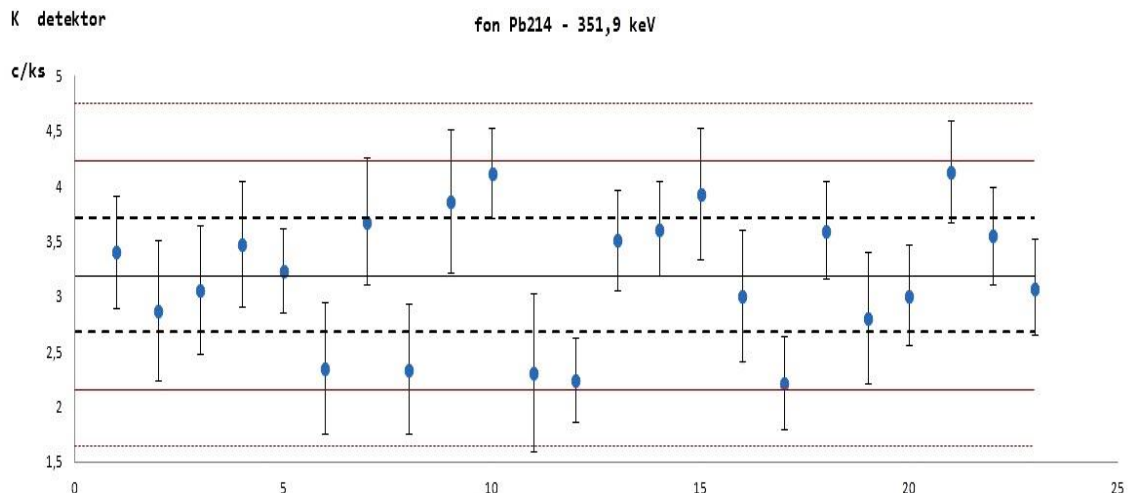
Za svaku od navedenih linija je određen odbroj po kilosekundi (c/ks) u spektru i greška odbroja. Iz svih odbroja je određena srednja vrednost (predstavljeno na graficima sa plavom tačkom i odgovarajućim greškama) i standardna devijacija za svaku od posmatranih linija i sve to je predstavljeno na graficima sa naznačenim granicama za 1x, 2x i 3x odstupanja standardne devijacije od srednje vrednosti (Slike 3-9). Odstupanja od 1x standardne devijacije (SD) od srednje vrednosti su predstavljene isprekidanom crnom linijom, 2x SD punom crvenom linijom a 3x SD isprekidanom ljubičastom linijom na svakom od grafika.



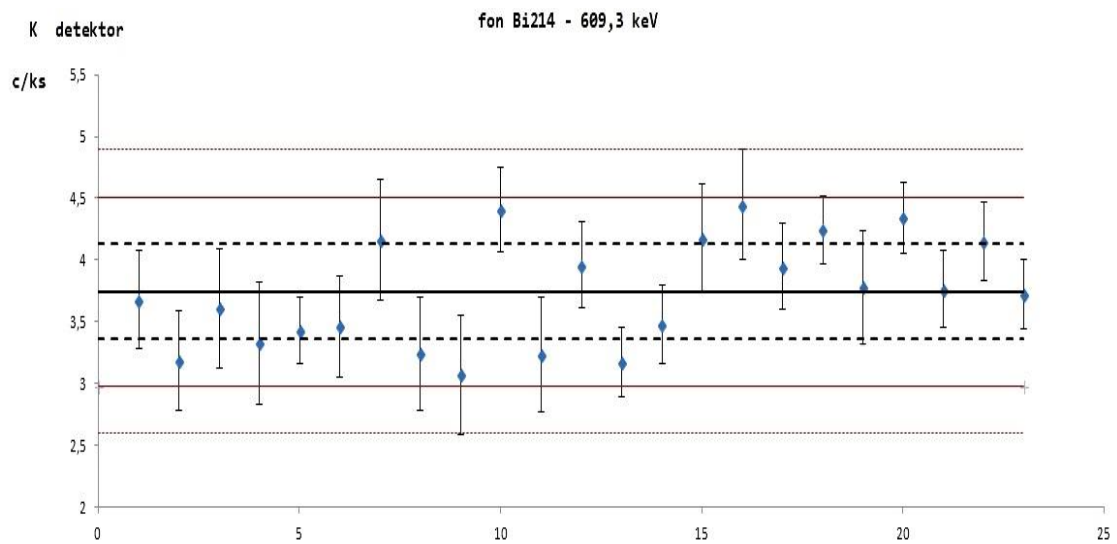
Slika 3: Pb-210 na 46,5 keV



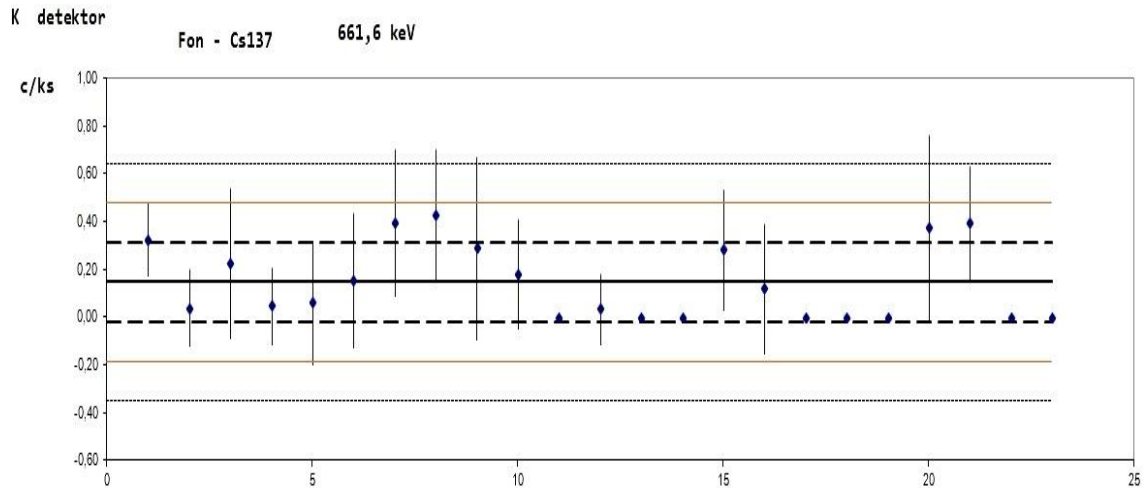
Slika 4:Th-234/U-238 na 63,3 keV



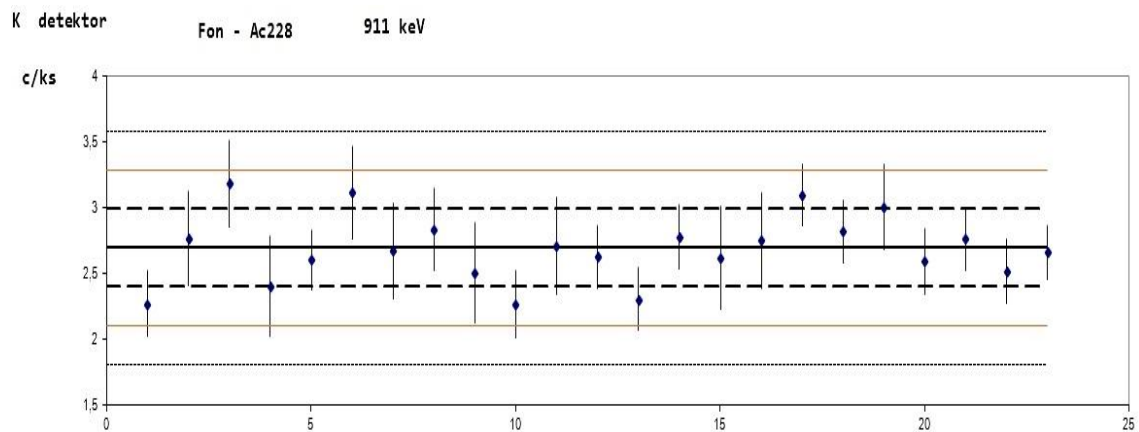
Slika 5:Pb-214 na 351,9 keV



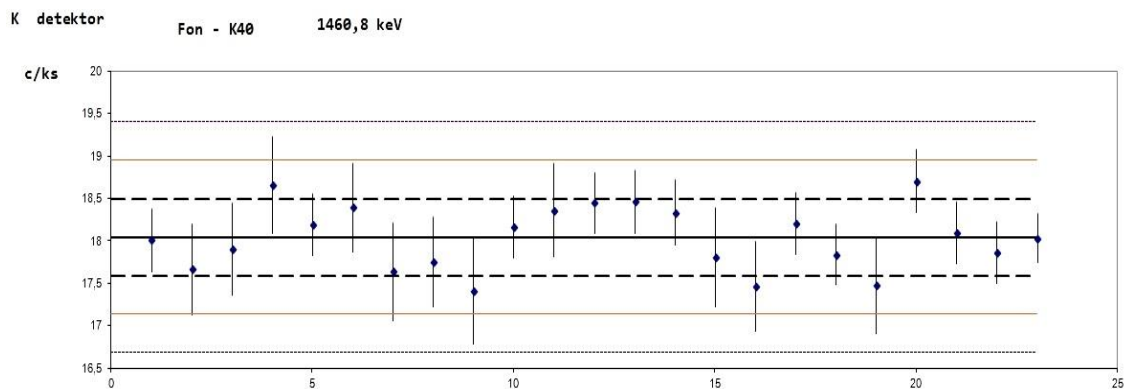
Slika 6:Bi-214 na 609,3 keV



Slika 7:Cs-137 na 661,6 keV (napomena: pojedine tačke kod Cs-137 nemaju navedenu grešku merenja usled nepostojanja same linije u spektru, tj. odbroja 0)



Slika 8:Ac-228 na 911 keV



Slika 9:K-40 na 1460,8 keV

Zaključak

Kako se vidi na navedenim graficima, izmerene vrednosti su relativno pravilno raspoređene oko srednjih vrednosti, bez odstupanja preko granice upozorenja od 2x standardne devijacije i bez puno tačaka sa jedne strane srednje vrednosti (granična vrednost upozorenja je 7 tačaka sa jedne strane [3]). Maksimalan broj tačaka sa jedne strane srednje vrednosti jeste 6 i to kod

Bi-214, što je sa neke strane i očekivano pošto je to najverovatnije posledica radona u prostoriji u kojoj se nalazi detektorski sistem. Kod K-40 je to 5 tačaka sa jedne strane srednje vrednosti. Treba napomenuti takođe da je kod Cs-137 u pojedinim fonskim spektrima, odbroj na mestu gama linije bio jednak 0 te stoga i te navedene tačke su bez nacrtanih greški merenja na grafiku.

Zahvalnica

Autori se zahvaljuju na finansijskoj podršci Ministarstvu Prosvete, Nauke i Tehnološkog razvoja Republike Srbije (broj 451-03-68/2022-14/200125).

Literatura

- [1] David Bodansky – Nuclear Energy-Principles, practices and prospects, Springer, 2004
- [2] GENIE 2000 spectroscopy software 3.0, operations manual, Canberra industries, 2003
- [3] Interna kontrola kvaliteta u laboratorijama za životnu sredinu - priručnik

BACKGROUND VARIATIONS OF HPGE DETECTORS

Jan HANSMAN¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹, Sofija FORKAPIĆ¹,
Kristina DEMIRHAN¹, Jovana KNEŽEVIĆ-RADIĆ¹

1) *University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Novi Sad, Serbia*

ABSTRACT

Background of germanium detectors is very important, especially in low activity sample determination or exploring rare processes. Passive shielding can be upgraded with different material combination and very often also active shielding is used. This paper presents results of variation a few gamma lines in germanium detector spectrum over long time period with approximately one month difference between two background spectrum collections.

INTERNA KONTROLA KVALITETA HPGe GAMASPEKTROMETRIJSKOG SISTEMA

Aleksandra SAMOLOV¹, Aleksandar KANDIĆ¹, Mirjana ĐURAŠEVIĆ²,
Igor ČELIKOVIĆ¹, Tamara MILANOVIĆ¹, Ivana VUKANAC³

- 1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Univerzitet u Beogradu, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Laboratorija za nuklearnu i plazma fiziku, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*
- 2) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Univerzitet u Beogradu, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Centar za permanentno obrazovanje, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*
- 3) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Univerzitet u Beogradu, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*

Autor za korespondenciju: Aleksandra SAMOLOV, aleksandra.samolov@vin.bg.ac.rs

SAŽETAK

Kontrola kvaliteta laboratorijskog procesa zauzima značajno mesto u svakodnevnom laboratorijskom radu. Obzirom na važnost, međunarodni standardi su propisali načine i zahteve za vršenje ovakve kontrole. Jedan od zahteva standarda ISO 17025 je obezbeđenje poverenja u rezultate merenja, koje se, između ostalog, može vršiti kontinuiranim praćenjem parametara karakterističnih za laboratorijsku metodu od interesa preko konstruisanja tzv. kontrolnih karti.

U radu su prikazani rezultati troipogodišnje analize rada gamaspektrometrijskog sistema u Laboratoriji za nuklearnu i plazma fiziku INN „Vinča“. Merenja su vršena jednom nedeljno a kao kontrolni izvori korišćeni su tačkasti izvori Co-60 i Cs-137. Pored praćenja odbroja ispod pika, položaja pika, širine na polovini visine pika (FWHM), širine na desetini visine pika (FWTM), kao i njihovog međusobnog odnosa (FWTM/FWHM), praćen je i odbroj u fonu. Rezultati su pokazali da gamaspektrometrijski sistem ima zadovoljavajuću stabilnost u radu u dužem vremenskom periodu.

Uvod

Značaj kontrole kvaliteta laboratorijskog rada nije potrebno naglašavati. Već duži niz godina u svetu pa i kod nas, radi se na usavršavanju kontrole svake etape procesa što je i rezultovalo u formiranju brojnih standarda i preporuka [1, 2]. Gamaspektrometrija kao tehnika nije izuzetak i obezbeđenje poverenja u rezultate merenja, pogotovu uzoraka životne sredine, se pokazalo kao vrlo značajan činilac u kontroli rada i rezultata [3-5].

Kao što je već naglašeno, jedan od glavnih zahteva standarda ISO/IEC 17025 je obezbeđenje poverenja u rezultate merenja. Postoji nekoliko načina na koji to može biti rađeno a utvrđivanje programa interne kontrole kvaliteta je jedan od najčešće korišćenih [1].

Naša grupa pri Laboratoriji za nuklearnu i plazma fiziku INN „Vinča“ ima od 2010. godine ustanovljen program interne kontrole kvaliteta koji se vrši jednom nedeljno i tokom koga se prate karakteristike poluprovodničkog HPGe detektorskog sistema. U ovom radu su predstavljeni rezultati troipogodišnje analize sistema koji posedujemo u našoj laboratoriji i

čijom analizom možemo pokazati dugoročnu stabilnost rada poluprovodničkog detektorskog sistema.

Експериментални део

Stabilnost HPGe detektora marke Schlumberger (relativna efikasnost 15%, rezolucija 2,1 keV, sa odnosom pik-Kompton 39:1), ispitivana je jednom nedeljno, korišćenjem tačkastih izvora Co-60 (; 1173,228 keV i 1332,492 keV;) i Cs-137 (; 661,657 keV;).

Ispitivani su odbroj ispod pika Cs-137 radi utvrđivanja stabilnosti mernog sistema, odbroj u fonu zbog utvrđivanja moguće kontaminacije detektorskog sistema, položaj pika da bi se proverila stabilnost elektronike kao i uticaj okoline, širina na polovini visine pika (FWHM) zbog procene kvaliteta rezolucije, širina na desetini visine pika (FWTM) radi provere da li postoji oštećenje kristala detektora i na samom kraju ispitivan je odnos FWHM/FWTM zbog praćenja ukupnog kvaliteta rada samog spektrometra [2].

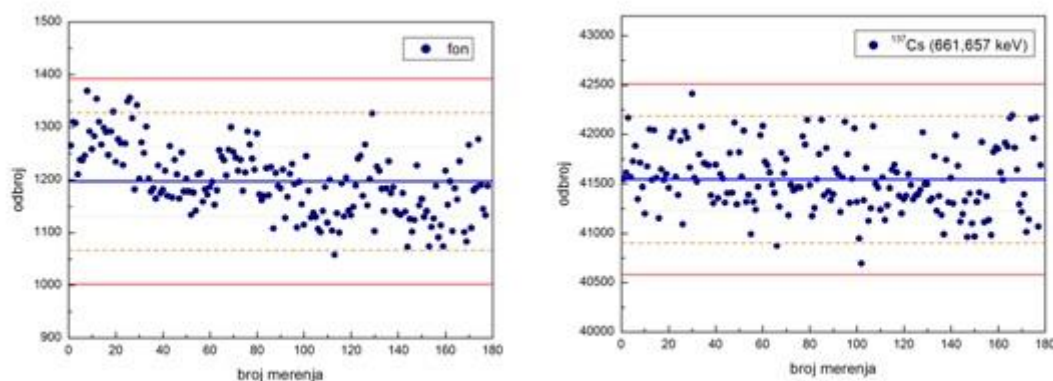
Kod provere vrednosti odbroja ispod pika Cs-137 rađena je i korekcija na raspad u odnosu na početni datum uvođenja kontrole kvaliteta laboratorijskog procesa. Vreme merenja je 1000 s. Za analizu spektara korišćen je Genie 2000 softverski paket [6].

Najpogodniji način predstavljanja periodično dobijenih rezultata su tzv. kontrolne karte. U ovom slučaju su konstruisane Shewhart-ove karte, koje su X tip kontrolne karte. Srednja vrednost se uzima za ciljnu vrednost, dok su granice upozorenja i granice akcije postavljene na ± 2 i ± 3 vrednosti standardnih devijacija, respektivno.

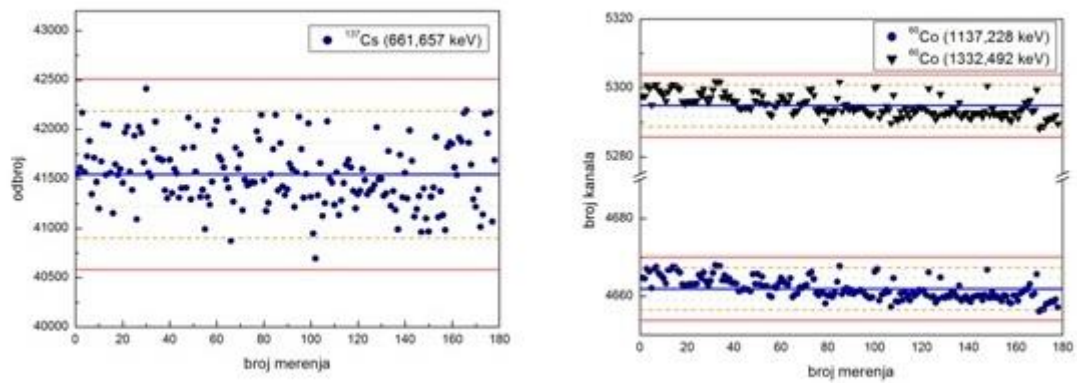
Da bi se utvrdilo da li je neki detektorski sistem stabilan ili ne, propisani su kriterijumi koji govore da li treba preduzeti određene, korektivne mere. U slučajevima da su dva uzastopna merenja van granica akcije, četiri uzastopna merenja van granica upozorenja, deset uzastopnih merenja na istoj strani srednje vrednosti ili ako postoji rastući ili opadajući trend kod nekoliko uzastopnih merenja potrebno je izvršiti temeljnu analizu i pristupiti izradi i primeni korektivnih mera [2].

Rezultati i diskusija

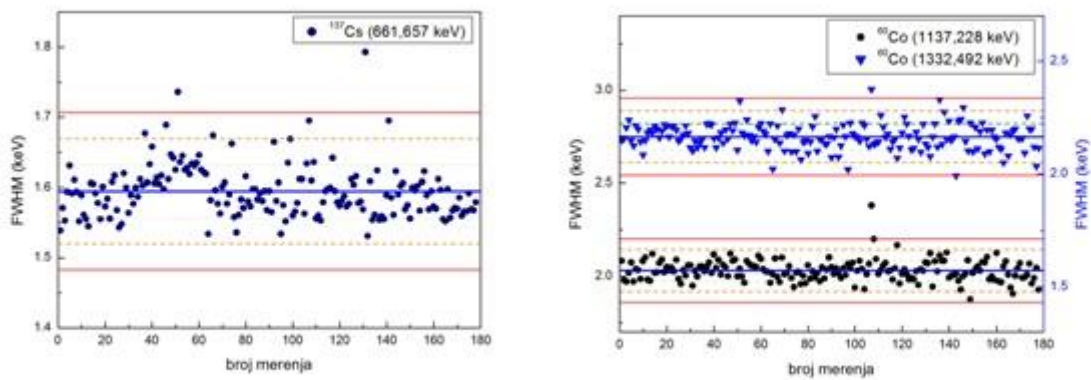
Kontrolne karte su prikazane na Slikama 1-5.



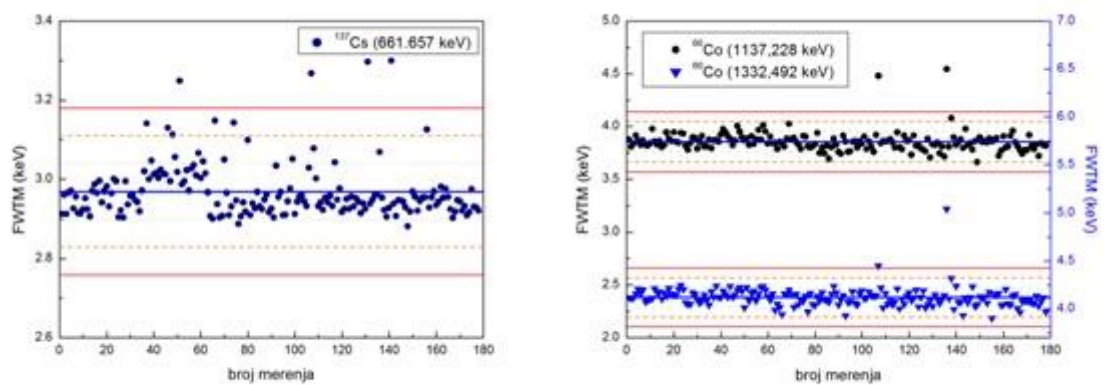
Slika 1. Kontrolne karte odbroja u fonu i odbroja ispod pika Cs-137



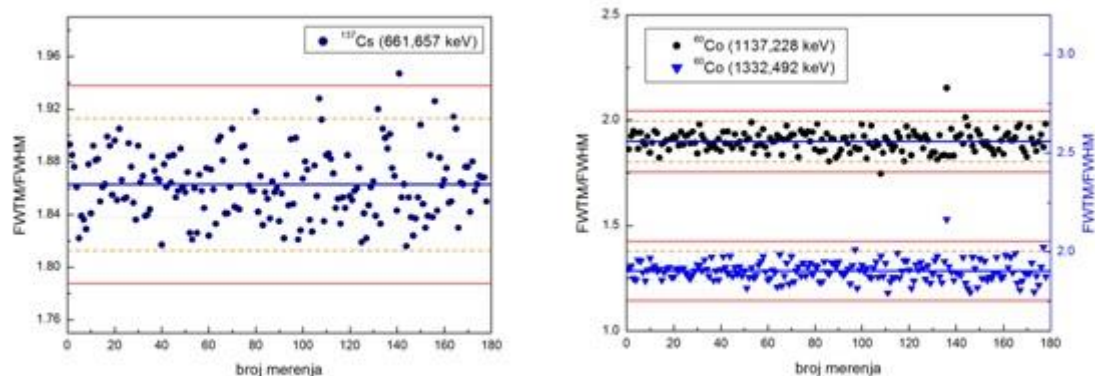
Slika 2. Kontrolne karte položaja pika Cs-137 i Co-60



Slika 3. Kontrolne karte FWHM Cs-137 i Co-60



Slika 4. Kontrolne karte FWTM Cs-137 i Co-60



Slika 5. Kontrolne karte odnosa FWTM i FWHM kod Cs-137 i Co-60

Kao što se sa kontrolnih karata može videti, rezultati su uglavnom grupisani oko srednjih vrednosti i sa ravnomernom distribucijom oko tih vrednosti. Dva uzastopna merenja koja se nalaze van granica akcije kao i četiri uzastopna merenja koja se nalaze van granica upozorenja nisu primećena.

Kod merenja odbroja u fonu primetan je ukupan opadajući trend kao i grupisanje rezultata iznad, odnosno ispod srednje vrednosti. Ovo može biti objašnjeno prirodnom varijacijom vrednosti za fon koji je posledica variranja vrednosti aktivnosti radona i njegovih potomaka.

Sličan trend je primećen, takođe, kod provere položaja pikova Cs-137 i Co-60. Kako se radi o uskom opsegu vrednosti broja kanala (3-6 kanala) te posledično i maloj energetskej promeni, korektivne mere nisu preduzimane.

Na kraju, sa grafika se vidi da su u nekim slučajevima (FWHM i FWTM, kao i kod njihovog međusobnog odnosa) primećena sporadična iskakanja izmerenih vrednosti van granica akcije. Ove pojave su zanemarene posle detaljne analize rezultata kao i rada samog detektorskog sistema, gde je ustanovljeno da je sistem stabilan i da nije došlo do grubih grešaka prilikom vršenja postupka same interne kontrole kvaliteta.

Zaključak

Iz svega prikazanog može se zaključiti da je rad detektorskog sistema stabilan i izmerene vrednosti pouzdane i validne. Dobijeni rezultati, takođe, naglašavaju značaj interne kontrole kvaliteta i prikazuju da je rad HPGe gamaspektrometrijskog sistema u saglasnosti sa međunarodnim preporukama i standardima.

Zahvalnica

Istraživanje je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] SRPS ISO/IEC 17025:2017, Opšti zahtevi za kompetentnost laboratorija za ispitivanje i laboratorija za etaloniranje.
- [2] TCS No. 24, Quality System Implementation for Nuclear Analytical Techniques, IAEA, Vienna, 2004.

- [3] A. Kandić, B. Šešlak, I. Vukanac, M. Đurašević i Z. Milošević, Analiza stabilnosti rada HPGe spektrometra u okviru interne kontrole kvaliteta, 8. Simpozij Društva za zaštitu od zračenja, 13-15. travnja 2011, Grad Krk, Otok KRK, 468-473.
- [4] A. Samolov, A. Kandić, I. Čeliković, M. Đurašević i T. Milanović, Internal Quality Control of the HPGe spectrometer stability, X INTERNATIONAL CONFERENCE IcETRAN, 05 – 08.06.2023, East Sarajevo, B&H, NTI1.1, 1-4.
- [5] A. Samolov, A. Kandić, M. Đurašević, I. Čeliković, T. Milanović, M. Erić, I. Vukanac, Internal Quality Control as an Important Part of Radiological Analysis of Environmental Samples Using Semiconductor HPGe Spectrometry, 36th International Congress on Process Industry Processing '23, 01-02.06.2023, Šabac, Serbia, 62.
- [6] Genie 2000, Version 3.3 software manual.

INTERNAL QUALITY CONTROL OF HPGe GAMMA SPECTROMETRY SYSTEM

ALEKSANDRA SAMOLOV¹, ALEKSANDAR KANDIĆ¹, Mirjana ĐURAŠEVIĆ²,
Igor ČELIKOVIĆ¹, Tamara MILANOVIĆ¹, Ivana VUKANAC³

- 1) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, Department of Nuclear and Plasma Physics, Belgrade, Serbia*
- 2) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, Department of Permanent Education, Belgrade, Serbia*
- 3) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, Department of Radiation and Environmental Protection, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

Quality control of the laboratory process plays an important role in daily laboratory work. Due to its importance, international standards have issued the ways and requirements for performing such a task. One of the requirements of the ISO 17025 standard is to ensure confidence in the measurement results, which, among other things, can be done by continuously monitoring the parameters characteristic of the laboratory method of interest through the construction of the so-called control charts.

The paper presents the results of a three-and-a-half-year analysis of the gamma spectrometric system measurements in the Laboratory for Nuclear and Plasma Physics of the INN "Vinča". Measurements were made once a week and point sources Co-60 and Cs-137 were used as control sources. In addition to monitoring the count below the peak, the position of the peak, the full width at half maximum (FWHM), the full width at tenth maximum (FWTM), as well as their mutual ratio (FWTM/FWHM), the count in the background was also monitored. The results show that the gamma spectrometric system has satisfactory stability over a long period of time.

**ODREĐIVANJE SADRŽAJA PRIRODNIH RADIONUKLIDA U UZORCIMA
MINERALNIH ĐUBRIVA**

Jelena ĐORĐEVIĆ¹, Nevena ZDJELAREVIĆ¹, Nataša LAZAREVIĆ¹, Sofija FORKAPIĆ²,
Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ², Predrag KUZMANOVIĆ², Jan HANSMAN²

- 1) *Javno preduzeće „Nuklearni objekti Srbije”, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Srbija*
- 2) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Departman za fiziku, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*

Autor za korespondenciju: Jelena ĐORĐEVIĆ, jelena.djordjevic@nuklearniobjekti.rs

SAŽETAK

Granice sadržaja prirodnih radionuklida uranijuma, radijuma i kalijuma su propisane domaćom zakonskom regulativom kako ne bi došlo do radioaktivne kontaminacije poljoprivrednog zemljišta i ugrožavanja proizvodnje zdravstveno bezbedne hrane. Poseban problem predstavljaju mineralna đubriva ili komponente za proizvodnju mineralnih đubriva koja sadrže makrohranjivi elemenat fosfor i mogu imati koncentracije aktivnosti uranijuma ^{238}U i radijuma ^{226}Ra veoma bliske ili preko propisanih granica. Gama-spektrometrijska merenja koja se sprovode u cilju kontrole ovih proizvoda prilikom uvoza ili izvoza su brza, komercijalna merenja koja se sprovode odmah nakon uzorkovanja bez čekanja da se uspostavi radonska ravnoteža u hermetički zatvorenim uzorcima nakon 40 dana. U radu je istražen problem detekcije radijuma i uranijuma u mineralnim đubrivima bez uspostavljanja sekularne ravnoteže sa potomcima i uticaj granulacije i sadržaja radijuma na ekshalaciju radona iz uzoraka mineralnih đubriva.

Uvod

Prema Pravilniku [1] obavezna je kontrola mineralnih đubriva radi sprečavanja stavljanja u promet mineralnih đubriva koja sadrže prirodne radionuklide iznad granica koje se smatraju bezbedne za upotrebu. Radionuklidi koji se nalaze u đubrivima prvo ulaze u zemljište, a zatim se putem vode i biljaka uključuju u lanac hrane. Laboratorije koje su prema važećoj zakonskoj regulativi nosioci ovlašćenja za monitoring radioaktivnosti ili pojedina ispitivanja u okviru monitoringa u obavezi su da na zahtev inspektora Granične fitosanitarne inspekcije izvrše gamaspektrometrijsku analizu uzoraka u najkraćem mogućem roku zbog samog procesa uvoza robe.

U mineralnim đubrivima koja se kao takva stavljaju u promet i koja sadrže makrohranjive elemente kalijum i/ili fosfor primenjuju se propisane granice sadržaja sledećih prirodnih radionuklida: za uranijum ^{238}U – 1600 Bq/kg za gotov proizvod i 3200 Bq/kg za komponente za proizvodnju mineralnih đubriva; za radijum ^{226}Ra - 1000 Bq/kg i za kalijum ^{40}K – 27000 Bq/kg.

U ovom radu razmotrena je tačnost izvršene gama-spektrometrijske analize za ^{226}Ra i ^{238}U koja zbog prirode merenja nisu uzimale u obzir sekularne ravnoteže sa potomcima, kao i uticaj granulacije i sadržaja radijuma na ekshalaciju radona iz uzoraka mineralnih đubriva.

Metoda merenja

Za ovo istraživanje odabrana su mineralna đubriva različite granulacije i sadržaja uranijuma i radijuma koja su ispitivana u okviru komercijalnih merenja u dve akreditovane i ovlašćene laboratorije za gama-spektrometrijske analize. Za potrebe merenja ekshalacije radona iz zapakovanih uzoraka korišćen je zatvoreni sistem, prikazan na Slici 1. sa aktivnim radonskim detektorom RAD7, proizvođača DurrIDGE USA u kombinaciji sa gama-spektrometrijskom analizom sadržaja radijuma u uzorcima mineralnih đubriva. Uzorci su zapakovani u plastičnim kutijama za merenje, koje nisu bile zatopljene da bi se odredio koeficijent emanacije radona.

Za komoru određene zapremine u kojoj se vrši ekshalacija, proces porasta koncentracije radona u vremenu se može predstaviti relacijom [2]:

$$(1) \quad \frac{dC_{Rn}}{dt} = E_S \cdot \frac{S}{V_{eff}} + C_0 \lambda_l - C_{Rn} \lambda_{eff}$$

pri čemu je E_S -površinski ekshalacioni koeficijent, V_{eff} - efektivna zapremina mernog sistema u kojoj se vrši akumulacija radona umanjena za zapreminu samog uzorka u komori izražena u m^3 , C_0 - početna koncentracija radona u mernoj komori, λ_{eff} - je efektivna konstanta raspada radona i može se predstaviti relacijom [2]:

$$(2) \quad \lambda_{eff} = \lambda + \lambda_b + \lambda_l$$

gde je λ -konstanta radioaktivnog raspada radona; λ_b -je koeficijent povratne difuzije λ_l -je konstanta curenja merne komore.

Nakon uspostavljene radioaktivne ravnoteže gde je $t=40$ dana, ravnotežna koncentracija radona u mernoj komori se može dobiti rešavanjem relacije (1) za aktivnost radona u mernoj komori tokom vremena $C_{Rn}(t)$ [3, 4] :

$$(3) \quad C_{Rn}(t) = C_0 \cdot e^{-\lambda_{eff}t} + C_{eq}(1 - e^{-\lambda_{eff}t})$$

Koeficijent emanacije radona može se eksperimentalno odrediti korišćenjem relacije:

$$(4) \quad \varepsilon(\%) = \frac{C_{eq} V_{eff}}{A_{Ra} M} \cdot 100$$

gde je C_{eq} ravnotežna koncentracija radona u Bq/m^3 nakon vremena od $t \approx 40$ dana, pošto je uspostavljena sekularna radioaktivna ravnoteža između ^{222}Rn i ^{226}Ra ; A_{Ra} - je izmerena koncentracija aktivnosti ^{222}Ra metodom gama spektrometrije data u Bq/kg i M je masa uzorka data u kg . Primenom relacije (1) na ravnotežnu koncentraciju radona C_{eq} dobija se:

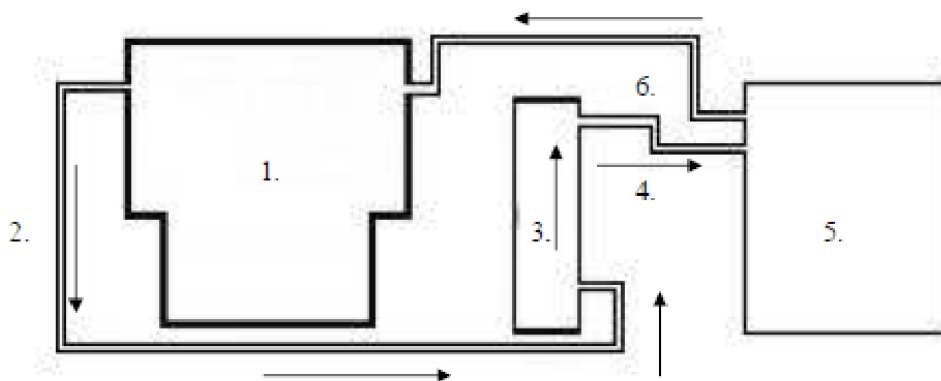
$$(5) \quad \varepsilon(\%) = \frac{S \cdot E_S}{A_{Ra} M \cdot \lambda_{eff}} \cdot 100, \text{ odnosno } \varepsilon(\%) = \frac{E_m}{A_{Ra} \lambda_{eff}} \cdot 100$$

gde su E_m i E_S maseni i površinski ekshalacioni koeficijenti respektivno.



Slika 1. Slika zatvorenog sistema za određivanje ekshalacije radona

Na Slici 2 je prikazana šema eksperimentalne postavke sistema za određivanje ekshalacije radona.



Slika 2. Šema eksperimentalne postavke zatvorenog toka: 1. eksikator, 2. gumene cevčice, 3. odvlaživač, 4. inlet u RAD7, 5. RAD7 i 6. outlet iz RAD7

Merenja koncentracije aktivnosti radionuklida u uzorcima mineralnih đubriva izvršena su korišćenjem dva HPGe detektora. Prvi je standardni sistem za gamaspektrometriju sa Ortec HPGe detektorom i softverom GammaVision. Detektor je smešten u olovnu zaštitu. Sistem je eksperimentalno kalibrisan u opsegu energija od 50 – 2000 keV sa relativnom efikasnošću od 50 %, a FWHM na liniji 1332 keV (^{60}Co) iznosi 1,9 keV. Etaloniranje je izvršila akreditovana laboratorija za etaloniranje sertifikovanim referentnim materijalom: Standard Mix of Radioisotopes, cilindrična geometrija, proizvođač Czech Metrology Institute, Češka Republika, model MBSS2 na osnovu kojih je izvršena energetska kalibracija i kalibracija efikasnosti. Uzorci su pripremljeni u cilindričnoj geometriji u skladu sa akreditovanom metodama prema IAEA TRS 295 [5] i ASTM C1402 [6], zatopljeni i potom mereni u trajanju od 60000 s. Nakon što je proteklo vreme neophodno za uspostavljanje ravnoteže izvršeno je ponovno merenje istih uzoraka. Rezultati merenja dati su sa mernom nesigurnošću koja je izražena kao proširena merna nesigurnost za faktor $k=2$ koji za normalnu raspodelu odgovara nivou poverenja od 95 %.

Drugi korišćeni detektor je HPGe spektrometar proširenog energetskog opsega na niskoenergetski deo, proizvođača ORTEC, Model GMX-20190 u pasivnoj zaštiti od olova. U uzorcima mineralnih đubriva su posmatrani prirodni radionuklidi ^{238}U i ^{226}Ra u skladu sa granicama utvrđenim Pravilnikom [1].

Rezultati

Eksperimentalno utvrđeni emanacioni koeficijenti, kao i brzina masene i površinske ekshalacije radona u ispitivanim uzorcima mineralnih đubriva prikazane su u Tabeli 1.

Tabela 1: Rezultati merenja ekshalacije radona iz uzoraka mineralnih đubriva

Naziv uzorka	Granulacija uzorka	Emanacioni koef. ϵ	Brzina masene ekshalacije [Bq/(kg s)]	Brzina površinske ekshalacije [Bq/(m ² s)]
Yara Mila	Tehnologija tople granulacije, ujednačene granule 3,1-3,9 mm	0,0073	2,16E-06	7,02E-05
Complex 15 15 15	Neujednačene nepravilne granulacije 0,1 – 10 mm	0,038	4,24E-05	1,41E-03
SuperFerti		0,0478	1,12E-05	4,02E-04
NPK 15 15 15		0,0448	1,36E-05	3,82E-04
MastroStarter		0,0615	3,04E-05	9,42E-04

Izmerene koncentracije aktivnosti prirodnih radionuklida ²³⁸U i ²²⁶Ra u ispitivanim uzorcima mineralnih đubriva prikazane su u tabelama 2 i 3 pre hermetičkog zatvaranja uzoraka da bi se uspostavila radonska ravnoteža i nakon 40 dana od zatvaranja.

Tabela 2. Rezultati gamaspektrometrijske analize uzoraka mineralnih đubriva za koncentracije aktivnosti radijuma

Tip đubriva	²²⁶ Ra pre zatvaranja [Bq/kg]	²²⁶ Ra nakon uspostavljanja radioaktivne ravnoteže [Bq/kg]	Relative Bias %
NPK 15-15-15	147±11	140±9	4,8
Complex 15:15:15	381±10	530±10	39,1
Yara Mila	160±30	112±8	- 0,3
Mastro Starter	183±9	146±9	- 20,2
SUPERFERTI	118±10	234±10	98,3
Supstral Dunger-Stabshen 10,6:10,9:10,2+ME	17±1	17±1	0
Eurofertil Top 51 NPK	32,0±1,4	33,7±1,4	5,3

Tabela 3. Rezultati gamaspektrometrijske analize uzoraka mineralnih đubriva za koncentracije aktivnosti uranijuma

Tip đubriva	^{238}U pre zatvaranja [Bq/kg]	^{238}U nakon uspostavljanja radioaktivne ravnoteže [Bq/kg]	Relative Bias %
NPK 15-15-15	321±24	390±40	21,5
Complex 15:15:15	440±30	539±24	22,5
Yara Mila	160±30	124±10	-22,5
Mastro Starter	420±30	344±38	-18,1
SUPERFERTI	128±15	295±25	130
Supstral Dunger-Stabshen 10,6:10,9:10,2+ME	106±39	141±39	33,0
Eurofertil Top 51 NPK	226±38	330±40	46,0

Diskusija rezultata i zaključak

Uzorci mineralnog đubriva odabrani za ovo istraživanje su uzorci u okviru komercijalnih merenja u obe laboratorije u kojima su detektovane koncentracije aktivnosti radijuma i uranijuma. Podbacivanje u određivanju sadržaja radijuma je očekivano zbog post radonskih linija i merenja ekshalacije radona pokazuju da je sekularna ravnoteža narušena između radijuma i radona. Radon ekshalira iz zapakovanih uzoraka u plastičnim mernim posudama cilindrične geometrije, što ukazuje na potrebu hermetičkog zatvaranja radi uspostavljanja sekularne ravnoteže. Razlike u ekshalacionim koeficijentima (Tabela 1) nije u potpunosti u korelaciji sa sadržajem radijuma i verovatno se objašnjava različitim granulacijom i strukturom uzoraka. Nešto manja ekshalacija radona uočena je kod glazirane kugličaste strukture, verovatno zbog pečenja u toku proizvodnje što sprečava emanaciju radona. Velika odstupanja u rezultatima određivanja sadržaja radijuma i uranijuma u jednom ispitanom uzorku pre i nakon uspostavljanja sekularne ravnoteže jasno ukazuje na potrebu isticanja napomene u izveštajima koji se izdaju koorisnicima da su u pitanju direktna merenja bez uspostavljanja radonske ravnoteže.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev.br. 451-03-47/2023-01/200125)

Literatura

- [1] Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet, Sl. glasnik RS, br. 36/2018
- [2] P.Kuzmanović: Korelacija radioloških i strukturnih karakteristika građevinskih materijala, doktorska disertacija, PMF Novi Sad (2020)

- [3] De With, G., Kovler, K., Haquin, G., Yungrais, Y., de Jong, P., 2017. A comparison of methods of determination of the natural radioactivity content and radon exhalation. *Radiat. Meas.*, 105, 39-46
- [4] Tan, Y. and Xiao, D., 2013. Measurement of the radon exhalation rate from the medium surface by tracing the radon concentration *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295(3), 2295–2299
- [5] *Measurements of Radionuclides in Food and Environment, Method for Determining Gamma Emitters*, IAEA Technical Reports Series No. 295, Vienna, 1989
- [6] *Standard Guide for High-Resolution Gamma-Ray Spectrometry of Soil Samples*, ASTM C1402, 2017

DETERMINATION OF THE CONTENT OF NATURAL RADIONUCLIDES IN SAMPLES OF MINERAL FERTILIZERS

Jelena ĐORĐEVIĆ¹, Nevena ZDJELAREVIĆ¹, Nataša LAZAREVIĆ¹, Sofija FORKAPIĆ²,
Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ², Predrag KUZMANOVIĆ², Jan HANSMAN²

1) *Public Company „Nuclear Facilities of Serbia”, Mike Petrovića Alasa 12-14,
Belgrade, Serbia*

2) *Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad,
Serbia*

ABSTRACT

The limits of the content of natural radionuclides of uranium, radium and potassium are established by domestic legislation in order to avoid radioactive contamination of agricultural land and endanger the production of safe food. A particular problem is mineral fertilizers or components for the production of mineral fertilizers that contain the macronutrient element phosphorus and may have concentrations of activity of uranium ²³⁸U and radium ²²⁶Ra very close or beyond the established limits. Gamma-spectrometric measurements carried out to control these products when importing or exporting are rapid, commercial measurements carried out immediately after sampling without waiting for radon equilibrium to be reached in hermetically sealed samples after 40 days. The paper investigated the problem of detection of radium and uranium in mineral fertilizers without establishing a secular equilibrium with decay product and the influence of granulation and radium content on the exhalation of radon from samples of mineral fertilizers.

GODIŠNJA KONTROLA DETEKTORA INSPECTOR 1000 I RADEYE PRDAnđela VEŠOVIĆ¹, Aleksandra MILATOVIĆ¹, Nikola SVRKOTA¹, Benard BERIŠAJ¹1) *Centar za ekotoksikološka ispitivanja, Podgorica, Crna Gora**Autor za korespondenciju: Anđela VEŠOVIĆ, andjelavesovic89@gmail.com***SAŽETAK**

U radu su prikazani rezultati mjerenja jačine ambijentalnog doznoг еквивалента gama zračenja ($H^*(10)$) koja su izvršena pomoću dva tipa detektora. Mjerenja su vršena u sklopu redovnih provjera detektora u Centru za ekotoksikološka ispitivanja u Podgorici. U ovom radu su predstavljeni rezultati mjerenja koja su obavljena pomoću četiri detektora tipa InSpector 1000 i četiri detektora tipa RadEye PRD od 2017. godine do marta 2023. godine. Dat je grafički prikaz zavisnosti jačine ambijentalnog doznoг еквивалента od vremena za obje vrste detektora. Njihove kontrolne karte su upoređene. Takođe, upoređeni su rezultati mjerenja u grupi istih detektora. Dok je većina rezultata mjerenja u granicama opsega srednja vrijednost $\pm 2s$, primijećeno je i nekoliko odstupanja koja se pripisuju promjeni vrijednosti koeficijenta kalibracije.

Uvod

Centar za ekotoksikološka ispitivanja u Podgorice je od 2004. godine akreditovan po ISO/IEC 17025 standardu. U skladu sa tim poštuje sve procedure koje zahtijeva ovaj standard. Shodno tome, vrše se redovne kontrole detektora tri puta godišnje. Svi detektori se redovno etaloniraju u Institutu za nuklearne nauke „Vinča“.

U ovom radu su prikazani rezultati mjerenja jačine $H^*(10)$ u posljednjih šest godina koja su izvršena u skladu sa ISO standardom (2017). Mjerenja su urađena pomoću detektora tipa InSpector 1000 i RadEye PRD čije će osnovne karakteristike biti navedene u nastavku ovog rada.

Materijali i metode

Kalibracioni izvor gama zračenja koji je korišćen za mjerenje jačine $H^*(10)$ je Cs-137. U pitanju je tačkasti izvor koji je smješten između dvije spojene polietilenske folije čija je debljina manja od 0.2 mm. Folije su postavljene u metalni prsten sa spoljašnjim prečnikom od 35 mm. Izvor se nalazi u samom centru. Proizvođač standarda je *Czech Metrology Institute*. Jačina ambijentalnog doznoг еквивалента je mjerena na udaljenosti 10 cm i 20 cm od izvora na visini od jednog metra. Mjerenja su vršena na ovim udaljenostima zato što su na većim udaljenostima dobijene vrijednosti jačine $H^*(10)$ bliske ili jednake fonu.

Program koji je korišćen za obradu rezultata i formiranje kontrolnih karata je *Microsoft Excel 2010*.

RadEye PRD (Thermo Fisher Scientific)

NaI(Tl) je u osnovi personalnih detektora zračenja RadEye PRD što ove detektore čini vrlo efikasnim u detekciji gama zračenja. Oni su mnogo osjetljiviji od tipičnih elektronskih dozimetra. Detektor RadEye PRD ima mjerni opseg od 0.01 $\mu\text{Sv/h}$ do 250 $\mu\text{Sv/h}$, dok RadEye PRD-ER ima veći mjerni opseg (od 0.01 $\mu\text{Sv/h}$ do 100 mSv/h). Ovi detektori imaju mogućnost detekcije niskih energija zračenja (od 30 keV do 1.3 MeV), s odgovorom na Cs-137 (fotone energija 662 keV) od 150 cps po $\mu\text{Sv/h}$ [1,2].

Inspector 1000 (Canberra)

Detektor Inspector 1000 sadrži NaI sondu velike osjetljivosti. Osim za mjerenje jačine doznog ekvivalenta zračenja, Inspector 1000 se koristi i za identifikaciju radionuklida koji su sadržani u uzorku odnosno okolini. U takozvanom NID (*nuclide identification*) modu, računa se i aktivnost identifikovanog radionuklida. Sve izračunate vrijednosti se prikazuju na LCD ekranu visoke rezolucije. Energetski opseg ovog detektora je od 50 keV do 3 MeV. Minimalna vrijednost jačine ambijentalnog doznog ekvivalenta koju ovaj detektor može registrovati iznosi 10 nSv/h, a maksimalna 100 mSv/h [3,4].

Kontrolne karte

Kontrolne karte su statistički alati koji se koriste radi praćenja i kontrolisanja procesa. Osnovna svrha kontrolnih karata je da se osigura da detektori rade unutar prihvatljivih granica. Dakle, kontrolne karte služe za kontinuirano praćenje "ponašanja" detektora. Upoređivanjem mjerenja sa dozvoljenim granicama kontrole, mogu se brzo otkriti nepravilnosti u mjerenju. Kontrolne karte omogućavaju rano otkrivanje odstupanja u mjerenju, što može ukazivati na potrebu za korektivnim mjerama u cilju osiguranja i pouzdanih rezultata. Da bi se napravila kontrolna karta potrebno je, između ostalog, izračunati srednju vrijednost i standardnu devijaciju svih rezultata mjerenja.

Mjerna nesigurnost

Da bi se izrazila mjerna nesigurnost koristi se matematički aparat klasične statističke teorije. Mjerna nesigurnost se pridružuje rezultatima mjerenja i predstavlja disperziju vrijednosti. Standardna devijacija predstavlja mjeru disperzije vrijednosti. Postoje standardna mjerna nesigurnost tip A i tip B [5].

Standardna mjerna nesigurnost tip A se određuje metodom statističke obrade rezultata i postoji kod mjerenja koje je više puta ponovljeno kada je mjerena veličina stohastičke prirode. U n mjerenja, sa ulaznim veličinama x_i , najbolja kvantitativna procjena \bar{x} je data sa *srednjom vrijednošću*:

$$(1) \quad \bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i$$

Rasipanje izmjerenih vrijednosti oko srednje vrijednosti se karakteriše *standardnom devijacijom*:

$$(2) \quad s(x_i) = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}$$

Veličina $s^2(x_i)$ se zove *disperzija* i jednaka je aritmetičkoj sredini kvadrata apsolutnih vrijednosti mjerenja, na osnovu uzorka veličine n .

Osnovni parametri koji karakterišu mjernu nesigurnost tipa A su: gustina raspodjele vjerovatnoće rezultata mjerenja i funkcija raspodjele vjerovatnoće rezultata mjerenja. Ovoj mjernoj nesigurnosti je potrebno pridružiti odgovarajuću funkciju raspodjele (Gausovu tj. normalnu raspodjelu). Slučajna raspodjela karakteriše mjerne nesigurnosti tipa A. Rezultati mjerenja imaju normalnu raspodjelu ako se u intervalu određenom dvostrukom disperzijom u odnosu na srednju vrijednost mjerenja nalazi dvije trećine rezultata mjerenja [6].

Oko 95% mjerenja u procesu koji je normalno distribuiran se očekuje da se nalazi unutar intervala srednja vrijednost \pm dvostruka standardna devijacija što znači da proces nema posebnih uzroka varijacija.

Mjerna nesigurnost tip B se određuje sa svim ostalim metodama osim statističke analize.

Rezultati i diskusija

Na Graficima 1 i 2 su prikazane kontrolne karte za četiri RadEye PRD detektora, a na Graficima 3 i 4 su prikazane kontrolne karte za četiri InSpector 1000 detektora. Na y-osi se nalaze rezultati mjerenja jačine ambijentalnog ekvivalenta doze u $\mu\text{Sv/h}$. Na x-osi je proteklo vrijeme – od 2017. do 2023. godine. Serijski brojevi detektora pomoću kojih su izvršena mjerenja prikazana na Graficima 1 i 2 su:

RadEye PRD (S/N 30831)

RadEye PRD (S/N 30832)

RadEye PRD (S/N 30833)

RadEye PRD (S/N 30841).

Serijski brojevi detektora pomoću kojih su izvršena mjerenja prikazana na Graficima 3 i 4 su:

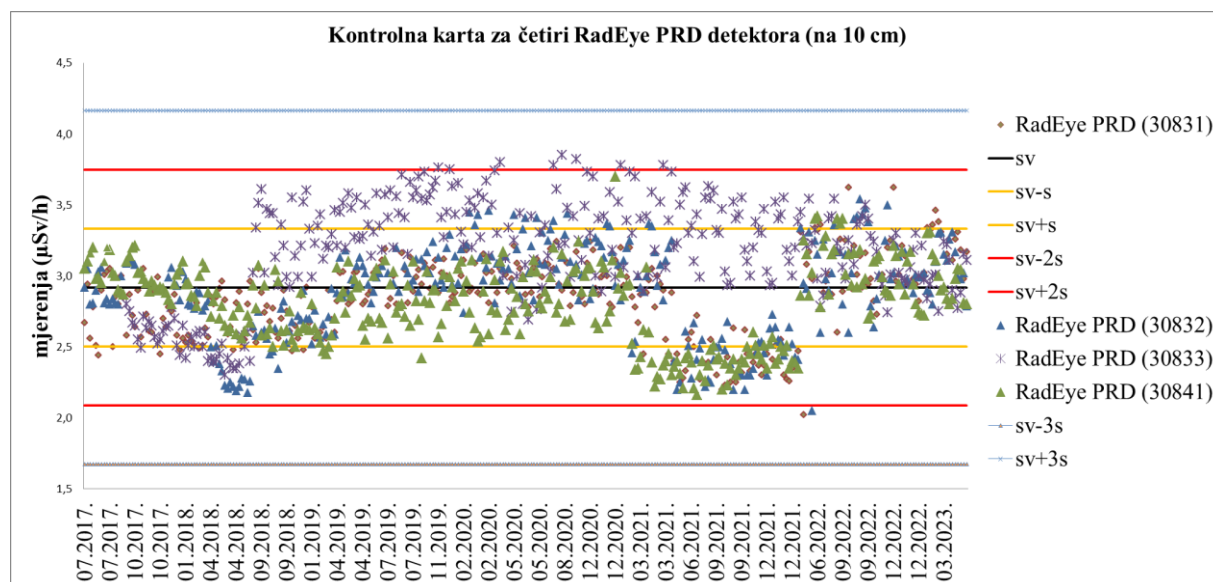
InSpector 1000 (S/N 57)

InSpector 1000 (S/N 58)

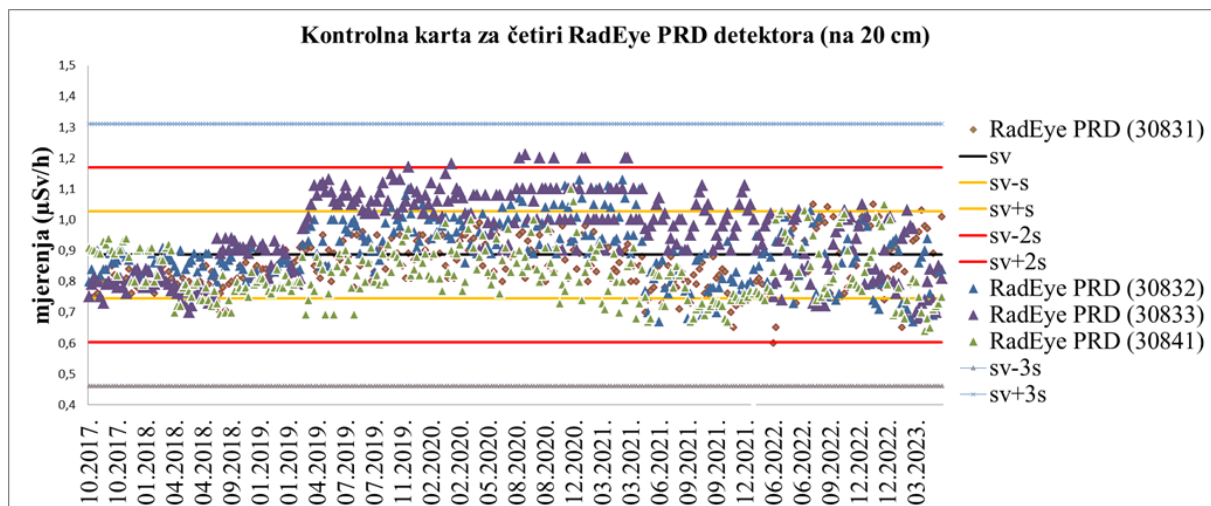
InSpector 1000 (S/N 61)

InSpector 1000 (S/N 858).

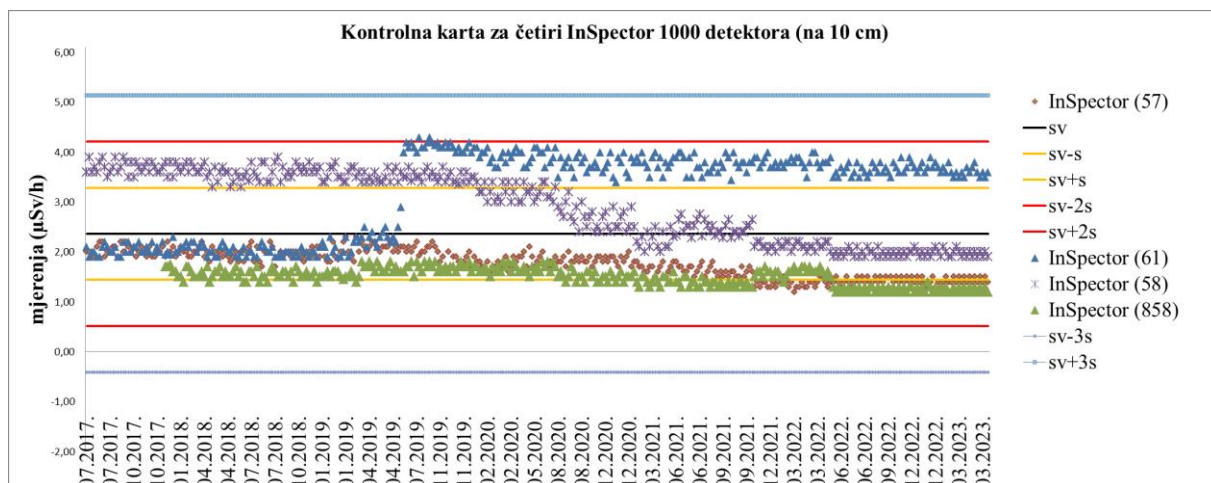
Svaka kontrolna karta ima nacrtane kontrolne granice i centralnu liniju koja predstavlja srednju vrijednost svih rezultata mjerenja [7]. Shodno tome, na Graficima 1 i 2 su, pored mjernih tačaka, označene srednja vrijednost (sv), srednja vrijednost \pm standardna devijacija (sv \pm s), srednja vrijednost \pm dvostruka standardna devijacija (sv \pm 2s) i srednja vrijednost \pm trostruka standardna devijacija (sv \pm 3s). U Tabeli 1 je dato koliko one iznose za dvije pomenute vrste detektora.



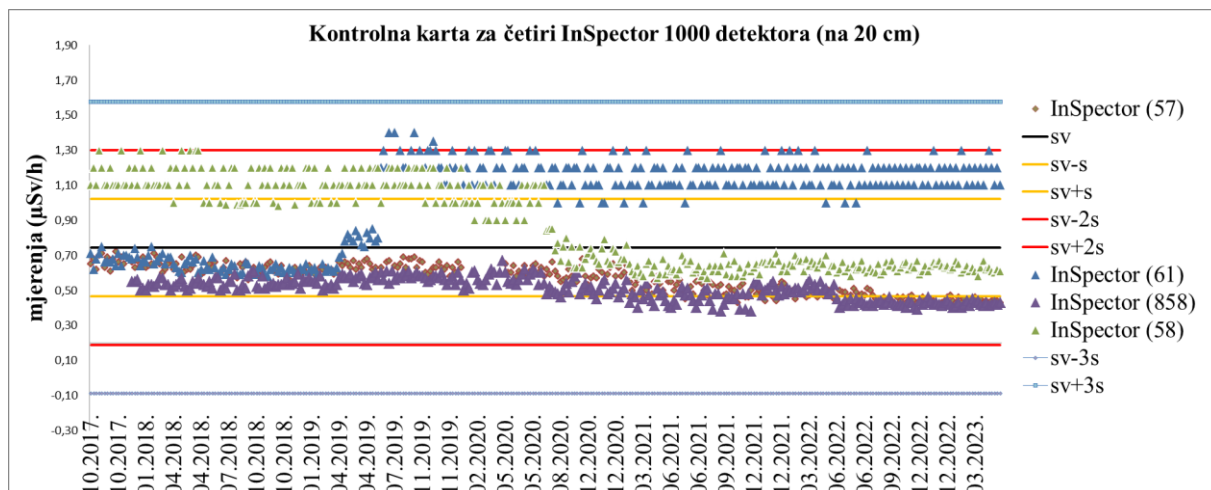
Grafik 1: Kontrolna karta za detektore tipa RadEye PRD (udaljenost od izvora iznosi 10 cm)



Grafik 2: Kontrolna karta za detektore tipa RadEye PRD (udaljenost od izvora iznosi 20 cm)



Grafik 3: Kontrolna karta za detektore tipa InInspector 1000 (udaljenost od izvora iznosi 10 cm)



Grafik 4: Kontrolna karta za detektore tipa InInspector 1000 (udaljenost od izvora iznosi 20 cm)

Tabela 1: Srednja vrijednost, srednja vrijednost ± standardna devijacija, srednja vrijednost ± dvostruka standardna devijacija i srednja vrijednost ± trostruka standardna devijacija za mjerenja sa RadEye PRD i InSpector 1000.

Tip detektora	Udaljenost od izvora (cm)	sv	s	sv + s	sv - s	sv + 2s	sv - 2s	sv + 3s	sv - 3s
RadEye PRD	10	2.92	0.41	3.33	2.50	3.75	2.09	4.16	1.67
	20	0.89	0.14	1.03	0.74	1.17	0.60	1.31	0.46
InSpector 1000	10	2.36	0.92	3.29	1.44	4.21	0.52	5.13	-0.41
	20	0.74	0.28	1.02	0.47	1.30	0.19	1.58	-0.09

Analizirani rezultati koji su dobijeni mjerenjem jačine $H^*(10)$, a koji u određenoj mjeri odstupaju od tačne vrijednosti jačine doze i izlaze iz prihvatljivog opsega, mogu se pomnožiti sa odgovarajućim kalibracionim koeficijentima N . Kalibracioni koeficijent N je izračunat iz sljedećeg izraza:

$$(3) \quad N = \frac{\dot{H}^*(10)_{ref}}{M},$$

gdje je $\dot{H}^*(10)_{ref}$ referentna vrijednost jačine $H^*(10)$, a M je srednja vrijednost pokazivanja uređaja koja je korigovana na fon zračenja. Odgovarajući kalibracioni koeficijenti su uzeti iz *Uvjerjenja o etaloniranju za date mjerne instrumente*.

Rezultati mjerenja sa RadEye PRD na 10 cm i 20 cm su na sličan način raspoređeni. Takođe, postoji sličnost u grupisanju vrijednosti dobijenih pomoću InSpector 1000 na 10 cm sa vrijednostima na 20 cm.

Ako uporedimo kontrolne karte za RadEye PRD sa kontrolnim kartama za InSpector 1000, primijetićemo da su tačke dobijene mjerenjem pomoću RadEye PRD više "razbacane" u intervalu $sv \pm 2s$ nego što je to slučaj za mjerenja pomoću instrumenta InSpector 1000 što je posljedica prirode samih detektora. Sa Grafika 1 i 2 vidimo da su rezultati mjerenja grupisani pretežno oko srednje vrijednosti, što nije slučaj sa vrijednostima sa Grafika 3 i 4.

Sa Grafika 1 se jasno vidi da se većina rezultata nalazi u opsegu $sv \pm 2s$. Neke vrijednosti jačine $H^*(10)$ dobijene pomoću RadEye PRD (S/N 30833) se nalaze van tog opsega, ali pripadaju $sv \pm 3s$. Sa Grafika 2 se takođe može vidjeti da se većina izmjerenih vrijednosti nalazi unutar intervala $sv \pm 2s$, a da neke vrijednosti izlaze iz istog. Opet je to slučaj za tačke dobijene mjerenjem pomoću RadEye PRD serijskog broja 30833. Sva navedena odstupanja možemo pripisati promjeni vrijednosti koeficijenta kalibracije za ovaj instrument.

Sa Grafika 3 i 4 vidimo da se većina rezultata mjerenja jačine $H^*(10)$ nalazi u intervalu $sv \pm 2s$. Određene tačke izlaze iz tog intervala kako za mjerenja na 10 cm tako i za mjerenja na 20 cm. U pitanju su tačke dobijene mjerenjem pomoću InSpector 1000 serijskog broja 61. I ova odstupanja možemo pripisati promjeni vrijednosti koeficijenta kalibracije.

Vrijednosti dobijene mjerenjem sa RadEye PRD (S/N 30833) i InSpector 1000 (S/N 61) koje najviše odstupaju bile su pomnožene sa odgovarajućim koeficijentima kalibracije. Time se smanjilo odstupanje to jest neki rezultati mjerenja su se onda našli unutar granica prihvatljivog intervala što i jeste prikazano na Grahicima 1-4. Međutim, nisu se sve vrijednosti našle unutar tog intervala.

Shodno tome da se mjerni instrumenti među kojima su i navedeni detektori redovno etaloniraju, kao uzrok ovih odstupanja isključujemo to da instrumenti nisu kalibrisani. Kao uzrok isključujemo i fizičko oštećenje, jer se prije svake kontrole detektora provjerava njihovo fizičko stanje.

Zaključak

Analizom kontrolnih karata se može nekoliko stvari zaključiti o radu navedenih detektora. Shodno tome da se većina rezultata mjerenja, preko 95%, nalazi u opsegu $sv \pm 2s$, a svi u opsegu $sv \pm 3s$, možemo zaključiti da detektori rade unutar prihvatljivih granica. Najvjerojatniji razlog odstupanja nekih rezultata je promjena vrijednosti kalibracionog koeficijenta za date detektore. Ako bi se ti rezultati pomnožili sa tačnim koeficijentom, trebalo bi da tada svi rezultati budu unutar granica intervala $sv \pm 2s$. Takođe, razlog nejednakog grupisanja tačaka za dvije vrste detektora može biti razlika u njihovom odzivu.

Sve u svemu, rad datih detektora je u prihvatljivim granicama i njima se može vršiti ispitivanje nivoa spoljašnjeg jonizujućeg zračenja (gama) u radnoj sredini.

Literatura

- [1] Thermo Fisher Scientific. RadEye Selection Guide: Handheld Detection for Any Scenario. 2012.
- [2] Thermo Fisher Scientific. RadEye PRD-ER: Alarming Personal Radiation Detector with extended measuring range. 2018.
- [3] Canberra Industries. InSpector™ 1000 Digital HandHeld MCA. 2007.
- [4] Mirion Technologies (Canberra). InSpector™ 1000 Digital HandHeld Multichannel Analyzer. 2017.
- [5] International Organization for Standardization. Guide to the Expression of Uncertainty in Measurements. Geneva, Switzerland. 1995.
- [6] A. Milatović, Doktorska disertacija, *Metrološko obezbjeđenje kvaliteta u medicinskoj primjeni izvora jonizujućih zračenja*, Novi Sad, 2012, str. 53-57
- [7] <https://www.itl.nist.gov/div898/handbook/pmc/section3/pmc31.htm>

ANNUAL CONTROL OF INSPECTOR 1000 AND RADEYE PRD DETECTORS

Andela VEŠOVIĆ¹, Aleksandra MILATOVIĆ¹, Nikola SVRKOTA¹, Benard BERIŠAJ¹

1) *Center for Ecotoxicological Research, Šarla de Gola 2, Podgorica, Montenegro*

ABSTRACT

The paper presents the results of measurements of ambient dose equivalent of gamma radiation ($H^*(10)$) performed using two types of detectors. The measurements were carried out as part of regular detector checks at the Center for Ecotoxicological Research in Podgorica. This paper presents the measurement results obtained from four InSpector 1000 detectors and four RadEye PRD detectors from 2017 until March 2023. A graphical representation of the dependence of ambient dose equivalent on time is provided for both types of detectors. Their control charts are compared. Additionally, the measurement results within the same detector group are compared. While the majority of the measurement results fall within the range of mean value $\pm 2s$, a few deviations have been noticed, which are attributed to changes in the calibration coefficient.

UPOTREBA FRAM SOFTVERA U ANALIZI GAMA SPEKTARA NUKLEARNIH MATERIJALA

Andrej VRANIČAR¹, Jovana NIKOLOV¹, Miloš TRAVAR^{1,2}, Nataša TODOROVIĆ¹

- 1) *Univerzitet u Novom Sadu, Prirodno-matematički fakultet, Departman za fiziku, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*
- 2) *Univerzitet u Beogradu, Institut za fiziku u Beogradu, Niskofonska laboratorija za nuklearnu fiziku, Pregrevica 118, Beograd-Zemun*

Autor za korespondenciju: Andrej VRANIČAR, andrej.vranicar@df.uns.ac.rs

SAŽETAK

Jedan od načina karakterizacije nuklearnih materijala jeste i upotrebom gama spektrometrije kao nedestruktivne metode. Iako se u rutinskim gamaspektrometrijskim laboratorijama koje se bave analizom uzoraka poreklom iz životne sredine (NORM), FRAM softver prevashodno ne koristi, on kao komercijalni softver svoju primenu nalazi u laboratorijama koje se bave analizom nuklearnog materijala. U ovom radu prikazano je testiranje FRAM softvera obradom gama spektara različitih standardnih referentnih nuklearnih materijala. Analizirano je slaganje masenih udela koje daje FRAM softver sa referentnom vrednošću masenih udela konkretnog radioizotopa.

Uvod

Na tržištu postoje i drugi komercijalni softveri koji se koriste za analizu nuklearnog materijala kao što su to MGA++ i MGAU paketi. Oni su veoma pogodni i jednostavni za korišćenje iz razloga što se celokupna izotopska analiza uranijuma i plutonijuma svodi na svega par koraka. Sa druge strane ovo je ujedno i njihova mana, sa stanovišta iskusnijih gamaspektrometrista, budući da oni predstavljaju svojevrsnu crnu kutiju ("black-box"), odnosno korisniku ne daju slobodu da utiče na tok analize na bilo koji način. FRAM softver ovo čini mogućim, time što korisniku omogućava da analizu prilagodi potrebama konkretnog merenja. Ovo se postiže drugačijim odabirom ili pak stvaranjem potpuno novog seta parametara čime se definiše tip detektora kao i pogodan energetska region za analizu, zatim oblik (vrsta) funkcije efikasnosti, selekcija fotopikova koji se koriste za kalibracije energije, oblika i efikasnosti kao i mnoge druge opcije unutar samog softvera [1].

FRAM softver

The Fixed-energy Response-function Analysis with Multiple efficiency (FRAM) je softverski kod koji je prvobitno namenjen za rad sa poluprovodničkim HPGe detektorima visoke rezolucije. Ovaj softver je doživeo svoj razvoj sredinom 1980tih godina u Los Alamos National Laboratory, a danas je komercijalizovan od strane firme Ametek ORTEC i Mirion TECHNOLOGIES (CANBERRA). FRAM služi za analizu gama spektara od uzoraka koji sadrže plutonijum i/ili uranijum. Unutar ovih spektara se nalaze sve potrebne informacije kako bi softver proračunao izotopske zastupljenosti (odnose) radionuklida prisutnih u merenom uzorku, nezavisno od oblika, dimenzija, veličine i fizičkog i hemijskog sastava uzorka kao i merne geometrije i karakteristika kontejnera uzorka. Rezultati se dobijaju koristeći samo podatke sadržane u spektru i fizičke konstante. Drugim rečima, za analizu FRAM softverom i dobijanje rezultata, kao što su izotopska zastupljenost i kalorimetrijski podaci (snaga proizvedena fisijom specijalnih nuklearnih materijala), nam nije potrebna niti energetska niti kalibracija za efikasnost detekcije. FRAM kod je struktuiran na takav način da

korisniku pruži onoliko kontrole koliko želi nad analizom kako bi se povećala svestranost i primenljivost ovog softvera. Ovo se postiže korišćenjem setova parametara, koji sadrži sve parametre potrebne za analizu gama spektra. To uključuje informacije o izotopima koje treba analizirati, gama pikovima koje treba koristiti, nuklearne podatke za izotope i gama zrake, uslove prikupljanja podataka kao što su pojačanje (gain), nula (pole zero), broj kanala, regioni spektra za analizu i dijagnostički test parametara. [2-5]. Formula koju FRAM softver koristi za kalkulaciju izotopskih odnosa data je jednačinom (1):

$$(1) \quad \frac{N^i}{N^k} = \frac{C(E_j^i)}{C(E_l^k)} \cdot \frac{T_{1/2}^i}{T_{1/2}^k} \cdot \frac{BR_l^k}{BR_j^i} \cdot \frac{RE(E_l)}{RE(E_j)}$$

gde je $C(E_j^i)$ površina fotopika j energije E_j emitovanog od strane izotopa i , $T_{1/2}^i$ period poluraspada izotopa i , N^i broj jezgara izotopa i , BR_j^i odnos grananja (broj zraka po raspadu) za gama zrak energije E_j izotopa i , dok je $RE(E_j)$ relativna efikasnost za detekciju fotopika energije E_j i ona uključuje efikasnost samog detektora, efekat samoapsorpcije unutar uzorka i atenuacije unutar materijala za pakovanje ili onih koji se nalaze između detektora i uzorka [5]. Potreba za odnosom efikasnosti eliminiše probleme vezane za apsolutna merenja efikasnosti detekcije kao što su reproducibilnost tačnih uslova merenja i geometrije i čini ovaj metod primenljivim na uzorke proizvoljnog sastva, veličine i oblika. U najranijim primenama metoda za merenje plutonijumskih izotopskih odnosa, uzeta je pretpostavka da dva gama pika koji se koriste u proračunu moraju biti energetski dovoljno blizu kako bi se mogle zanemariti razlike u samoapsorpciji, apsorpciji u materijalima za pakovanje i efikasnosti detektora. Preporuka za maksimalnu energetsku razliku dva zraka u jednom paru bila je 10 keV. Razlike u efikasnosti, čak i kod parova gama pikova bliskih energija mogu biti značajne, i bile su uzrok za određena odstupanja koja su uočena u počecima razvoja ove metodologije. Ključ za njenu uspešnost bilo je inkorporiranje intrinzičnog samoodređivanja krive relativne efikasnosti iz samog gama spektra svakog uzorka. Uočeno je da se iz gama spektara uzoraka može odrediti odnos relativnih efikasnosti na određenim energijama. Iz jednačine (1) (posmatrajući gama pikove jednog radioizotopa) može se videti da je količnik površine fotopika date energije E_j i odnosa grananja istog srazmeran efikasnosti na energiji E_j :

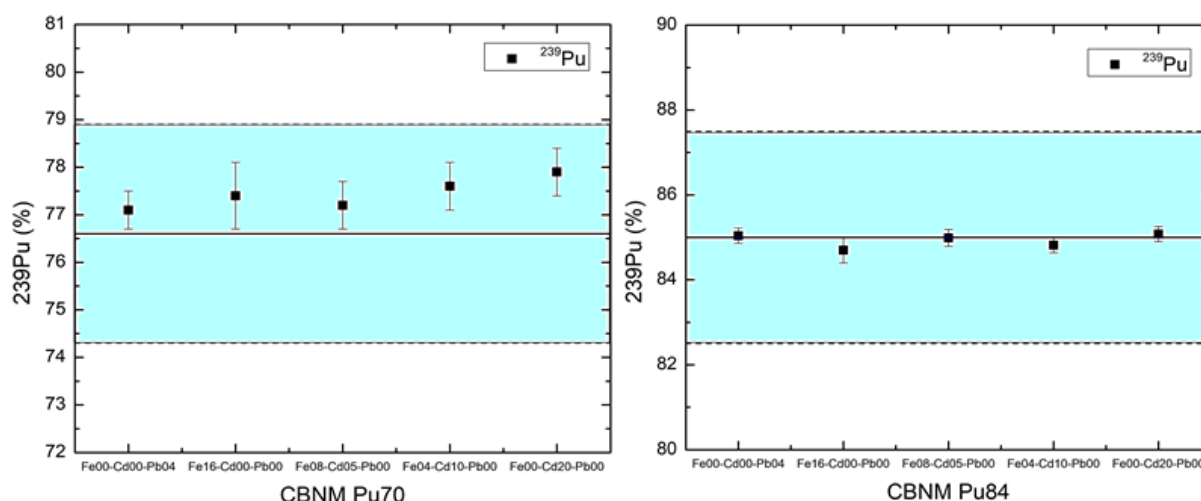
$$(2) \quad \frac{C(E_j^i)}{BR_j^i} \propto \left[\frac{N^i \ln 2}{T_{1/2}^i} \right] \cdot \varepsilon(E_j)$$

Iz jednačine (2) sledi da ovaj količnik definiše oblik krive relativne efikasnosti kao funkcije energije. Za određivanje relativne efikasnosti se mogu koristiti gama pikovi od različitih izotopa, dokle god oni u uzorku imaju istu fizičku distribuciju. Krive od različitih izotopa iste fizičke distribucije imaju isti oblik, samo se razlikuju po amplitudi, koja je okarakterisana članom u uglastoj zagradi u jednačini (2).

Rezultati

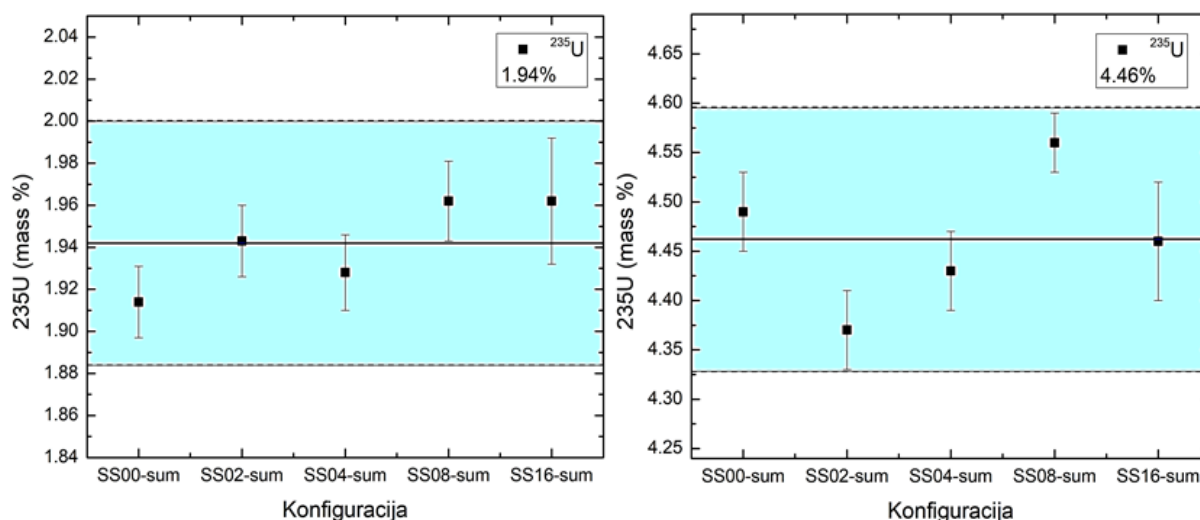
U okviru ovog rada urađeno je testiranje FRAM softvera, u pogledu analiziranja spektara različitih nuklearnih materijala. Za ove potrebe korišćeni su spektri sertifikovanih standardnih materijala uranijuma [6] i plutonijuma [7] koji su snimljeni u Joint Research Centre-Institute for Transuranium Elements (ITU) u Karlsruheu, u okviru zajedničkog rada na razvoju nedestruktivnih metoda merenja nuklearnih materijala. Plutonijumski spektri snimljeni su u takvoj konfiguraciji da su se uzorak i detektor nalazili na fiksnoj udaljenosti od 10 cm sa volframskim kolimatorom, dok su se između njih postavljali atenuatori/paravani od različitih materijala i debljina i to – u slučaju gvožđa (Fe), debljina 0-16 mm, u slučaju kadmijuma

(Cd), debljina 0-2 mm i u slučaju olova (Pb), debljina 0-4 mm. Za potrebe prikupljanja spektara koristio se električno hlađen HPGe prenosni detektor, oznake microDetective, proizvođača ORTEC. Kristal detektora je prečnika 50 mm i visine 30 mm, sa conversion gain (pojačanjem) podešenim na 0.125 keV/channel, kako bi se poklopio sa gain-om (pojačanjem) unutar "default" FRAM setova parametara. Spektri uranijuma su snimani pod sličnim uslovima, samo su se u ovoj instanci koristili atenuatori od Fe debljina 0-16 mm. Spektri standardnih uranijumskih materijala snimani su sa električno hlađenim HPGe prenosnim detektorom, oznake Detective, takođe proizvođača ORTEC. Kristal detektora je istih dimenzija kao kod microDetective, sa energetsom rezolucijom ≤ 2.0 keV na 1332 keV i ≤ 1.0 keV na 122 keV. Pojačanje kod ovog detektora je fabrički podešeno na 0.365 keV/channel i ne može se menjati [2]. Analizirani su spektri od standardnih nuklearnih referentnih materijala uranijuma i plutonijuma čiji je izotopski sastav u masenim procentima i šematski prikaz dat u [8,9]. U slučaju uranijumskih standardnih materijala, svaki izvor sadrži 200 g UO₂ unutar aluminijumskog kontejnera debljine 2 mm. U daljem tekstu će biti prikazani rezultati analize spektara standardnih nuklearnih referentnih materijala u FRAM softveru. Analizirano je slaganje masenih udela koje daje FRAM softver sa referentnom vrednošću masenih udela konkretnog radioizotopa. U slučaju uranijumskih spektara to je U-235, a u slučaju plutonijumskih spektara je to maseni udeo Pu-239. Na slici 1 prikazano je slaganje masenih udela Pu-239 za različite kombinacije debljina atenuatora za standardni referentni material CBNM Pu70 (levo) i CBNM Pu84 (desno). Na x-osi su obeleženi materijali koji su korišćeni kao atenuatori i njihove respektivne debljine [1].

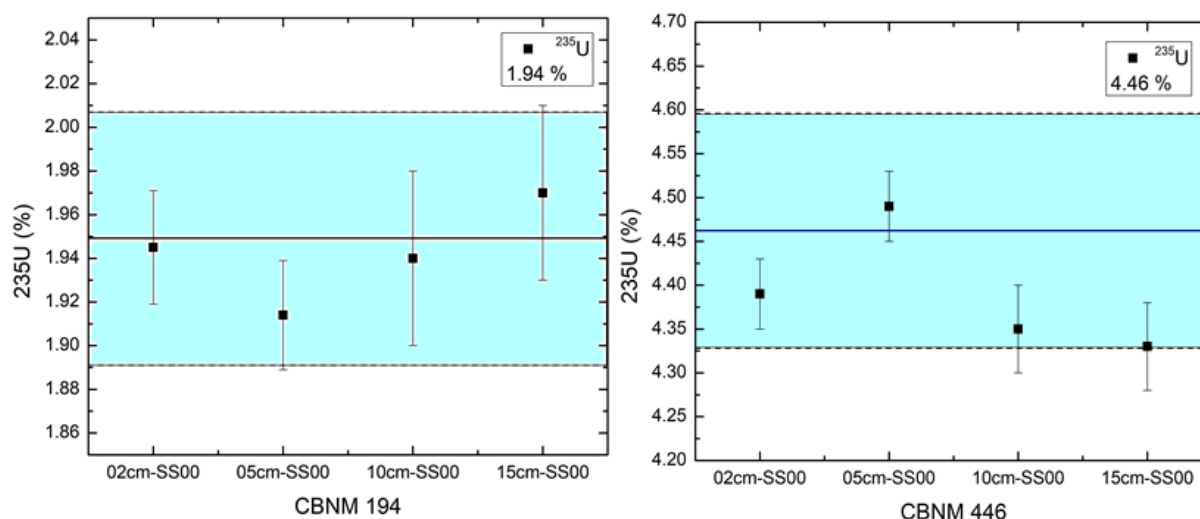


Slika 1: Maseni udeli ²³⁹Pu u materijalima CBNM Pu70 (levo) i CBNM Pu84 (desno) za različite kombinacije atenuatora

Na slici 2 prikazano je slaganje masenih udela U-235 za različite debljine Fe atenuatora pri fiksnoj udaljenosti od detektora za standardne referentne materijale CBNM 194 (levo) i CBNM 446 (desno). Na slici 3 prikazano je slaganje masenih udela U-235 bez atenuatora pri različitim udaljenostima od detektora, takođe za standardne referentne materijale CBNM 194 (levo) i CBNM 446 (desno) [1]. Svaki od plutonijumskih izvora pri samom merenju spektra nije vađen iz svog kontejnera, budući da predstavlja veliku radiološku opasnost u smislu potencijalne primljene doze zračenja za operatera merenja, ali i činjenice da je sam kontejner zavaren.



Slika 2: Maseni udeli ^{235}U u materijalima CBNM 194 (levo) i CBNM 446 (desno) za različite debljine atenuatora od gvožđa



Slika 3: Maseni udeli ^{235}U u materijalima CBNM 194 (levo) i CBNM 446 (desno) za različite udaljenosti od detektora, bez atenuatora

Diskusija i zaključak

U slučaju plutonijumskih spektara, odnosno njihove analize, referentne vrednosti masenih udela Pu-239 prikazane u [7] morale su biti korigovane na raspad i prilagođene načinu na koje FRAM softver računa masene udele. FRAM izbacuje rezultate tako da zbir masenih udela svih prijavljenih izotopa plutonijuma daje 100%. Izotop koji sa vremenom najviše utiče na ove rezultate je Pu-241, budući da se on raspada sa periodom poluraspada od 14.35 godina. Kako su spektri snimani u junu 2018. godine, sračunato je koliko je izotopa Pu-241 ostalo neraspadnuto u tom momentu, te su maseni udeli ostalih izotopa plutonijuma normirani tako da njihov zbir opet daje 100%. Merne nesigurnosti date u [7] i prikazane na slici 1 su izrazito male, budući da su ove vrednosti dobijene masenom spektrometrijom. Kao koridor greške referentne vrednosti masenog udela Pu-239, usled toga je, na graficima prikazanim na slici 1 uzeto da bude 3% vrednosti, što je (uz konsultaciju sa dostupnom literaturom iz date oblasti) u skladu sa redom veličine merne nesigurnosti u standardnim gamaspektrometrijskim merenjima. Sa slike 1 može se zaključiti da su svi rezultati koje je dao softver FRAM u dobroj saglasnosti sa referentnim vrednostima, uzimajući u obzir pomenuti koridor greške

merene vrednosti od 3%. Za potrebe analiza su spektri referentnih materijala snimani sa različitim kombinacijama atenuatora/zaštita od Cd, Fe i Pb u različitim debljinama, kako bi se ispitala mogućnost njihove primene kao efektivne zaštite od zračenja ali i materijala kontejnera. Kadmijum se koristio kako bi atenuirao intenzivno gama zračenje energije 59.5 keV koje potiče od raspada Am-241, koji nastaje raspadom Pu-241, budući da intenzitet zračenja koji potiče samo od ovog radioizotopa može da bude veći od intenziteta zračenja koji potiče od svih izotopa plutonijuma zajedno. Ovo je logičan korak, uzimajući u obzir da ovo može značajno da utiče na tačnost FRAM analize. Što se tiče analize spektara uranijumskih standardnih referentnih materijala, koridor greške referentne vrednosti masenog udela U-235, je takođe uzet da bude 3% vrednosti. Sa slika 2 i 3 se može zaključiti da su svi rezultati koje je izbacio FRAM softver u dobroj saglasnosti sa referentnim vrednostima, uzimajući u obzir pomenuti koridor greške merene vrednosti. Zbog nemogućnosti merenja nuklearnih materijala u gamaspektrometrijskoj laboratoriji u Novom Sadu, u ovom slučaju su kroz naučno-istraživačku saradnju sa JRC Karlsruhe dobijeni snimljeni spektri referentnih uzoraka nuklearnih materijala. "Sirovi" gama spektri su obrađeni u softveru namenjenom za analizu nuklearnih materijala FRAM, koji, kao takav, predstavlja veoma moćan alat za analizu istih. Posebna pažnja je posvećena specifičnostima samih merenja materijala koji u sebi sadrže značajne koncentracije uranijuma odnosno plutonijuma. Upotreba FRAM softvera za analizu nuklearnog materijala nije trivijalna i da sam način merenja i zaštita oko uzoraka koja će se koristiti u mnogome mogu da utiču na dobijene rezultate, a sa druge strane značajni su i sa aspekta zaštite kako detektora tako i osoblja koje ovim uzorcima rukuje[1].

Zahvalnica

Ovaj rad je realizovan kroz finansijsku podršku Međunarodne agencije za atomsku energiju preko IAEA CRP projekta 23159/R0 i Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Ev.br. 451-03-47/2023-01/200125)

Literatura

- [1] Andrej Vraničar, Razvoj i unapređenje nedestruktivnih metodaza analizu radioaktivnog i nuklearnog materijala, Doktorska disertacija, Novi Sad, 2023.
- [2] J. Zsigrai et al., Using FRAM to determine enrichment of shielded uranium by portable electrically cooled HPGe detectors,” in Proceedings of the 39th ESARDA Annual Meeting, 2017, pp. 80–86.
- [3] ORTEC FRAM Plutonium and Uranium Isotopic Analysis Software V6.1, ORTEC /Ametek,2022
- [4] T.E. Sampson, Using the FRAM Plutonium Isotopic System for 242Pu Isotopic Verification, Los Alamos National Laboratory Report LA-11744-M, 1992
- [5] T.E. Sampson, PLUTONIUM ISOTOPIC ANALYSIS USING PC/FRAM, Los Alamos National Laboratory Report LA-UR-03-4403, 2003
- [6] EC Certified Nuclear Reference Material 171, Certificate of Analysis, Commission of the European Communities, Joint Research Centre, Central Bureau for Nuclear Measurements, Geel, 1985.
- [7] CBNM Nuclear Reference Material 271, Certificate of Analysis, Commission of the European Communities, Joint Research Centre, Central Bureau for Nuclear Measurements, Geel, 1989

- [8] J. Zsigrai et al., Collection of medium-resolution gamma spectra of certified U reference materials, European Commission JRC Technical reports, 2015, DOI: 10.2789/052375
- [9] J. Zsigrai et al., Collection of medium-resolution gamma spectra of certified Pu reference materials, European Commission JRC Technical reports, 2015, DOI: 10.2789/382595

THE USE OF FRAM SOFTWARE IN THE ANALYSIS OF GAMMA SPECTRA OF NUCLEAR MATERIALS

Andrej VRANIČAR¹, Jovana NIKOLOV¹, Miloš TRAVAR^{1,2}, Nataša TODOROVIĆ¹

1) *University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*

2) *University of Belgrade, Institute of Physics Belgrade, Low-background laboratory for nuclear physics, Pregrevica 118, Belgrade- Zemun,*

ABSTRACT

One way to characterize nuclear materials is by using gamma spectrometry as a non-destructive method. Although FRAM software is primarily not used in routine gamma spectrometric laboratories that deal with the environmental sample analysis (NORM), as a commercial software it is used in laboratories that deal with the analysis of nuclear material. This paper presents the testing of the FRAM software by processing the gamma spectra of various standard reference nuclear materials. The mutual agreement of the mass fractions provided by the FRAM software with the reference value of the mass fractions of the specific radioisotope was analyzed.

REZULTATI ISPITIVANJA SONDE S1 SA KOMPENZACIONIM FILTEROM ZA MERENJE AMBIJENTALNOG EKVIVALENTA DOZE ZA UREĐAJ DMRZ-M15Miloš ĐALETIĆ¹, Ivana KOMATINA^{1,2}

- 1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*
- 2) *Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu, Studentski trg 10-12, Beograd*

Autor za korespondenciju: Miloš ĐALETIĆ, djaletic@vinca.rs**SAŽETAK**

Stupanjem na snagu Pravilnika o aktivnim dozimetrima fotonskog zračenja koji se koriste u zaštiti od jonizujućeg zračenja ("Sl. glasnik RS", br. 144/2022) propisani su zahtevi za aktivne dozimetre koji se koriste u funkciji zaštite zdravlja ljudi i životne sredine. Kako bi se poboljšale merne karakteristike sonde S1, uređaja DMRZ-M15, razvijen je kompenzacioni filter u obliku dodatnog poklopca sonde, oznake P2, koji se koristi tokom merenja ambijentalnog ekvivalenta doze. Zadržana je mogućnost postavljanja tankog zaštitnog poklopca oznake P1 ili potpunog uklanjanja poklopca kada se sonda ne koristi za merenje jačine doze, već samo kao detektor zračenja za otkrivanje izvora i kontaminacije. Na ovaj način je očuvana dobra osetljivost detekcije β i γ zračenja uz poboljšanje mernih karakteristika kada se uređaj koristi kao dozimetar. U radu su prikazani rezultati ispitivanja.

Uvod

Digitalni merač radioaktivnog zračenja model 15 (DMRZ-M15) razvijen je 2015. godine i kontinuirano se unapređuje i hardver i softver [1,2]. Pored univerzalne sonde S1, razvijene su i sonde S2 i S3 bazirane na fabrički energetski kompenzovanim Gajger-Milerovim detektorima [3]. U ovom radu su prikazani rezultati ispitivanja modifikovane sonde S1 dodavanjem kompenzacionog filtera P2 koji se koristi prilikom merenja ambijentalnog ekvivalenta doze $\dot{H}^*(10)$. Metrološke karakteristike su poboljšane i sada su u skladu sa Pravilnikom o aktivnim dozimetrima fotonskog zračenja koji se koriste u zaštiti od jonizujućeg zračenja [4].

Postavka merenja i korišćeni instrumenti

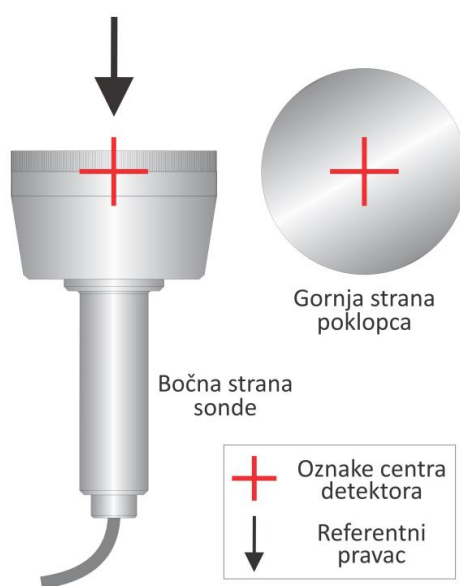
Ispitivanja su vršena prema standardu Međunarodne elektrotehničke komisije IEC 60846-1:2009 u kome su definisani zahtevi za prenosne ambijentalne merače i monitore zračenja. Zahtev koji se postavlja je da promena osetljivosti detektora za bilo koji kvalitet X i γ zračenja u opsegu energija od 80 keV do 1,5 MeV i opsegu upadnog ugla od $\pm 45^\circ$ u odnosu na osetljivost u referentnom kvalitetu i upadnom uglu (Cs-137, 40°) bude u opsegu od -29 % do +67 % [5]. Referentne vrednosti kerme u vazduhu su određene u Sekundarnoj standardnoj dozimetrijskoj laboratoriji Instituta za nuklearne nauke „Vinča“ (VINS-SSDL), preko sekundarnog standarda PTW 32002 (jonizaciona komora zapremine jednog litra). Vrednosti ambijentalnog dozno ekvivalenta utvrđene su množenjem vrednosti kerme u vazduhu odgovarajućim konverzionim koeficijentima, prema standardu ISO 4037-3 [6]. Za ispitivanje su korišćena polja zračenja uspostavljena prema standardu ISO 4037-1 [7]. Korišćeni su kvaliteti snopova radioaktivnih izvora Co-60 (S-Co) i Cs-137 (S-Cs). Kao izvor X-zračenja korišćen je generator rendgenskog zračenja Hopewell Designs X80-225 kV-E, pomoću kog je

postignut ISO kvalitet N-serije – N-60 (48 keV), N-80 (65 keV), N-100 (83 keV), N-120 (100 keV), N-150 (118 keV) i N-200 (165 keV).

Za sondu S1 razvijen je kompenzacioni filter u obliku poklopca sonde oznake P2. Zaštitni poklopac koji je sonda S1 već imala označen je kao P1. Poklopac P2 koristi se prilikom merenja $\dot{H}^*(10)$, dok se prilikom detekcije izvora i kontaminacije sonda koristi sa zaštitnim poklopcem P1 ili bez poklopca kako bi se povećala osetljivost detekcije β zračenja. Na slici 1 prikazana je sonda S1 sa poklopcima P1 i P2. Merni opseg sonde sa poklopcem P2 je od 0,1 $\mu\text{Sv/h}$ do 1000 $\mu\text{Sv/h}$ u opsegu energija od 59 keV do 1,3 MeV. Referentna tačka za pozicioniranje sonde je u preseku oznaka + prikazanih crvenom bojom na slici 2.



Slika 1. Sonda S1 sa skinutim poklopcem (vidi se prozor GM cevi) i poklopci P1 za detekciju kontaminacije i P2 za merenje jačine ambijentalnog ekvivalentnog doze

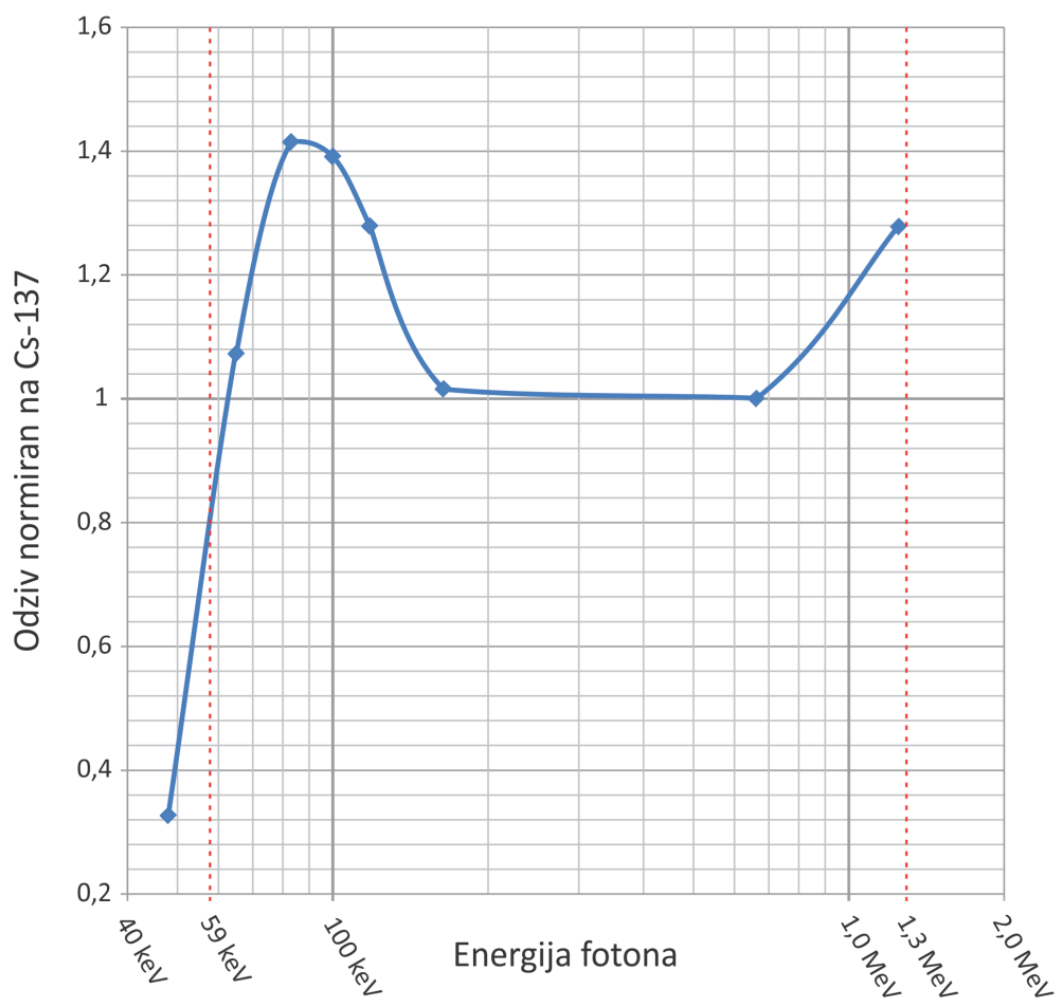


Slika 2. Oznake referentne tačke i pravca sonde S1

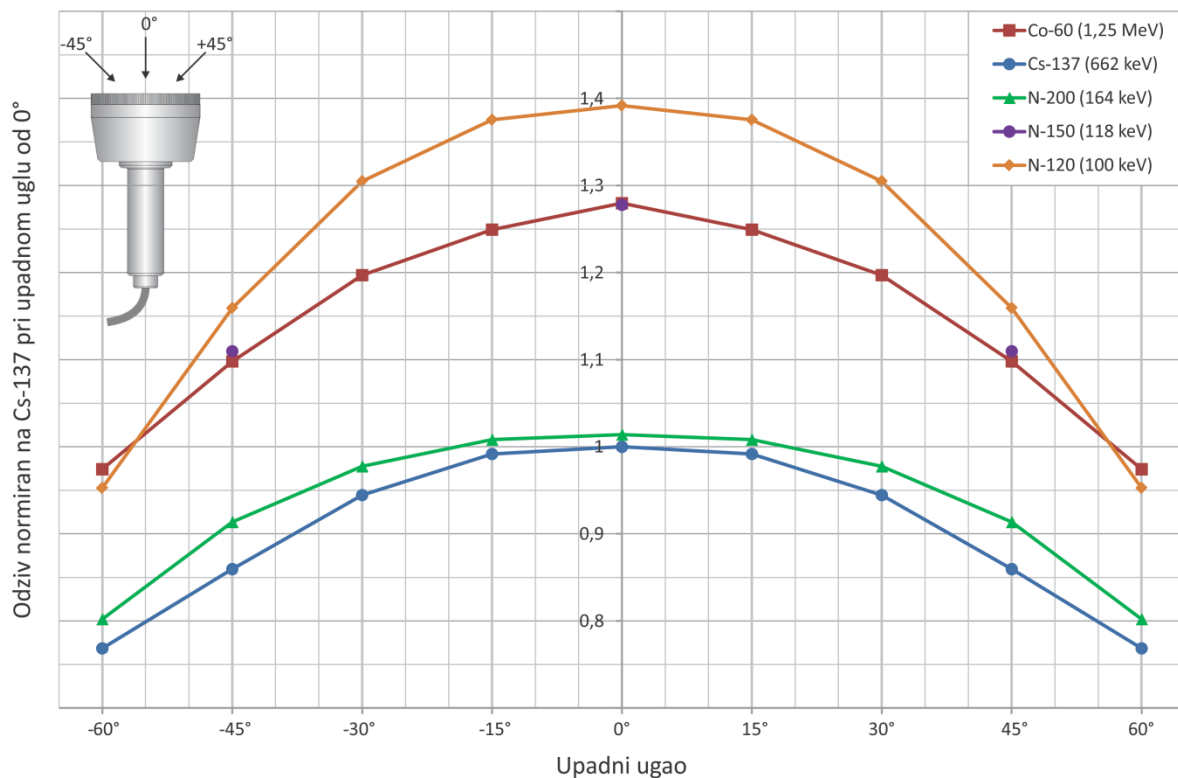
Pri referentnom uglu od 0° , kolimisani snop zračenja pada normalno na površinu poklopca P2 označenu crnom strelicom kao referentni pravac. Ugaona zavisnost u odnosu na referentni pravac, ugao i kvalitet S-Cs određena je u opsegu od $\pm 60^\circ$ sa korakom od 15° za kvalitete S-Cs, S-Co i N-seriju izuzev N-150 gde je samo određena za uglove 0° i $\pm 45^\circ$.

Rezultati ispitivanja

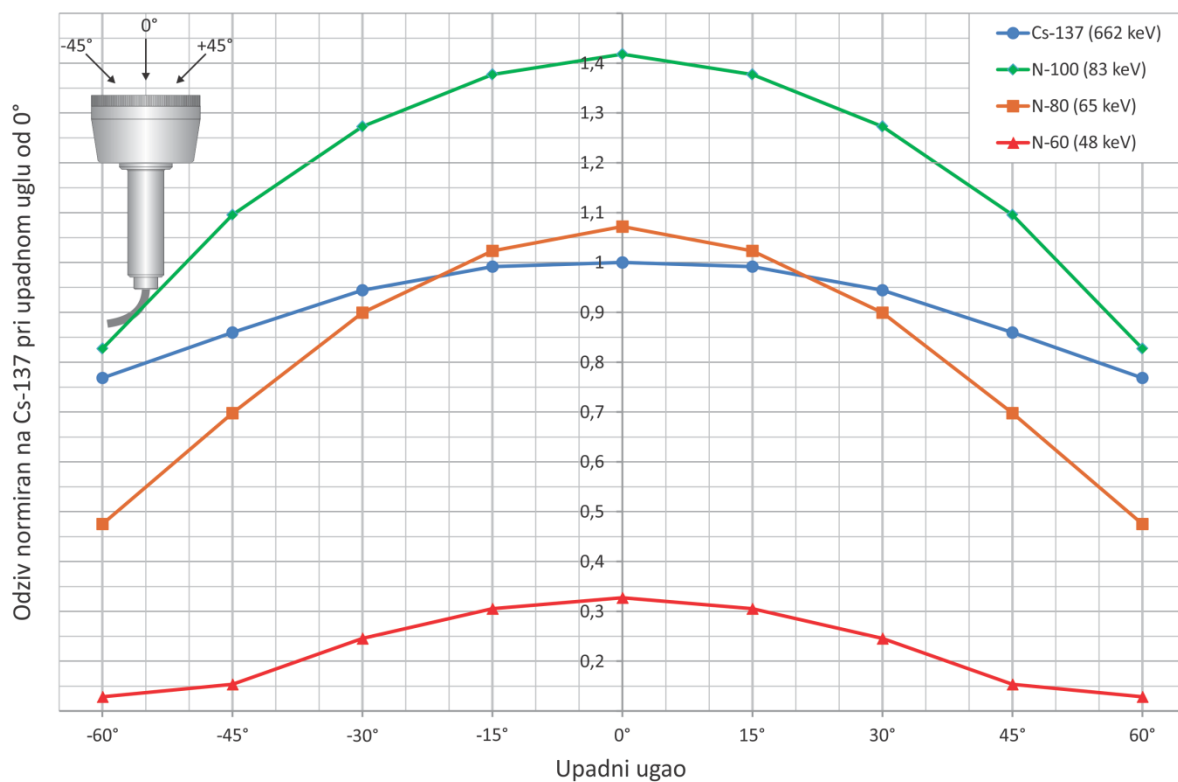
Grafik energetske zavisnosti odziva normiran na referentni kvalitet zračenja Cs-137 pri referentnom uglu od 0° prikazan je na slici 3. Uočava se očekivano povećanje osetljivosti u opsegu od 118 keV do 83 keV, dok osetljivost naglo opada daljim smanjenjem energije fotona u tačkama od 65 keV i 48 keV, zbog korišćenja kompenzacionog filtera. Isprekidanim crvenim linijama označen je deklarirani energetski opseg sonde sa poklopcem P2. Grafik ugaone zavisnosti odziva normiran na referentni kvalitet zračenja Cs-137 i ugao od 0° za kvalitete N-serije, Cs-137 i Co-60 prikazan je na slikama 4 i 5. Vrednost energetske zavisnosti odziva na ispitivanom primerku, u deklarisanom opsegu od 59 keV do 1,3 MeV, pri referentnoj orijentaciji i upadnom uglu fotona do 0° varira od -20 % do +42 %.



Slika 3. Grafik energetske zavisnosti odziva sonde S1 sa poklopcem P2 normiran na referentni kvalitet zračenja Cs-137



Slika 4. Grafik ugaone zavisnosti odziva sonde S1 sa poklopcem P2 normiran na referentni kvalitet zračenja Cs-137 i ugao od 0° za kvalitete N-120, N-150, N-200, Cs-137 i Co-60



Slika 5. Grafik ugaone zavisnosti odziva sonde S1 sa poklopcem P2 normiran na referentni kvalitet zračenja Cs-137 i ugao od 0° za kvalitete N-60, N-80, N-100 i Cs-137

Diskusija i zaključak

Kompenzacioni filter se dalje može unaprediti, ali je za sada odabrano rešenje koje je dovoljno jednostavno za proizvodnju i koje zadovoljava zahteve Pravilnika o aktivnim dozimetrima fotonskog zračenja koji se koriste u zaštiti od jonizujućeg zračenja [4]. Zahtevi standarda IEC 60846-1:2009 vezani za energetske i ugaone zavisnosti zadovoljeni su za sve kvalitete. Za kvalitet N-60 gde je se pri uglu od $\pm 45^\circ$ javlja odstupanje od -30 % sonda takođe ispunjava kriterijum standarada, jer se definisane granice proširuju za vrednost merne nesigurnosti referentne vrednosti koja iznosi 6,5 % za relativni odziv.

Literatura

- [1] Miloš Đaletić, Đorđe Lazarević, Digitalni merač radioaktivnog zračenja DMRZ-M15, XXVIII Simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Višac, 30. septembar - 2. oktobar, 2015. ISBN: 978-86-7306-135-1
- [2] Miloš Đaletić, Unapređenja digitalnog merača radioaktivnog zračenja DMRZ-M15 i prototip stacionarnog alarmnog merača DMRZ-M15A. Zbornik radova XXX simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, 2 – 4. oktobar 2019, Divčibare, Srbija, 2019. 312–317.
- [3] Miloš Đaletić, Nikola Kržanović i Miloš Živanović, Ispitivanje prototipova novih sondi S2 i S3 merača DMRZ-M15, XXXI Simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Beograd, 06-08. Oktobar, 2021. e-ISBN: 78-86-7306-161-0
- [4] Pravilnik o aktivnim dozimetrima fotonskog zračenja koji se koriste u zaštiti od jonizujućeg zračenja, Sl. gl. RS 144/22, 2022.
- [5] IEC 60846-1:2009 Radiation protection instrumentation - Ambient and/or directional dose equivalent (rate) meters and/or monitors for beta, X and gamma radiation - Part 1: Portable workplace and environmental meters and monitors, IEC, Geneva, 2009.
- [6] ISO 4037-3:2019, X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and doserate meters and for determining their response as a function of photon energy – Part 3: Calibration of area and personal dosimeters and the measurement of their response as a function of energy and angle of incidence, ISO, Geneva, 2019.
- [7] ISO 4037-1:2019, X and gamma reference radiation fields for calibrating dosimeters and doserate meters and for determining their response as a function of photon energy - Part 1: Radiation characteristics and production methods, ISO, Geneva, 2019.

**TEST RESULTS OF PROBE S1 WITH COMPENSATION FILTER
FOR MEASURING THE AMBIENT EQUIVALENT DOSE USED
WITH DMRZ-M15 SURVEY METER**

Miloš Đaletić¹, Ivana KOMATINA^{1,2}

- 1) *"VINČA" Institute of Nuclear Sciences - National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade*
- 2) *Faculty of physical chemistry, University of Belgrade, Studentski trg 10-12, Belgrade*

ABSTRACT

With the entry into force of the Rulebook on active photon radiation dosimeters used in protection against ionizing radiation ("Sl. glasnik RS", br. 144/2022), requirements for active dosimeters used in the function of protecting human health and the environment are defined. In order to improve the measurement characteristics of probe S1 used with the DMRZ-M15 survey meter, a compensation filter was developed in the form of an additional probe window cover, marked P2, which is used during the measurement of the ambient dose equivalent. The option of fitting a thin protective probe window cover marked P1 or removing the cover completely is retained when the probe is not used for dose rate measurement, but only as a radiation detector for source and contamination detection. In this way, the good sensitivity of detection of β and γ radiation is preserved while improving the measurement characteristics when the device is used as a dosimeter. The paper presents the test results.

MERNA NESIGURNOST AMBIJENTALNIH FOTONSKIH DOZIMETARA U IMPULSNOM REŽIMU RADA SA POSEBNIM OSVRTOM NA UTICAJ OSETLJIVOSTI DETEKCIJE I VREMENA MERENJA

Miloš ĐALETIĆ¹

1) *Institut za nuklearne nauke Vinča – Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Miloš ĐALETIĆ, djaletic@vinca.rs

SAŽETAK

Procena merne nesigurnosti rezultata merenja ambijentalnog ekvivalenta doze gama zračenja značajna je za utvrđivanje adekvatnosti izabranog monitora zračenja i metode merenja. Neadekvatnim izborom monitora zračenja ili njegovim neoptimalnim korišćenjem, mogu se dostići velike vrednosti merne nesigurnosti. Uvek kad je moguće, treba izabrati odgovarajući monitor zračenja i mernu metodu. U ovom radu je procenjena merna nesigurnost za više tipova monitora zračenja sa veoma različitim mernim karakteristikama. Osetljivost detektora i odabrano vreme merenja u značajnoj meri utiču na mernu nesigurnost, što je na primerima i prikazano u ovom radu. Optimalnim izborom opreme i metode merenja mogu se dobiti značajno pouzdaniji rezultati merenja.

Uvod

U praksi je često potrebno izmeriti ambijentalni ekvivalent doze gama zračenja $\dot{H}^*(10)$ radi procene izloženosti lica u zonama zračenja prilikom rada sa izvorima ili generatorima zračenja, prilikom dozimetrijske kontrole robe, monitoringa životne sredine, kao i u mnogim drugim slučajevima. Stupanjem na snagu Pravilnika o aktivnim dozimetrima fotonskog zračenja koji se koriste u zaštiti od jonizujućeg zračenja propisani su zahtevi za aktivne dozimetre koji se koriste u funkciji zaštite zdravlja ljudi i životne sredine [1]. Pravilnikom je ograničena upotreba monitora zračenja koji imaju nezadovoljavajuće merne karakteristike koje im ne dozvoljavaju da se klasifikuju kao dozimetri, već samo kao detektori zračenja (tj. indikatori). U ovom radu su prikazani praktični primeri upotrebe i budžeta merne nesigurnosti četiri monitora zračenja – dva bazirana na Gajger-Milerovom (GM) detektoru i dva bazirana na scintilacionom detektoru.

Opis prikazanih monitora zračenja i metoda ispitivanja

Monitori zračenja bazirani na GM detektoru su DMRZ-M15 sa sondom S1 i kompenzacionim filterom P2 proizvođača Institut "Vinča" - Laboratorija "Zaštita" i Inspector EXP+ proizvođača SE International. Scintilacioni monitori zračenja su SG-2R proizvođača Canberra i BDKG-04 proizvođača Atomtex. Specifikacije uređaja date su u tabeli 1. [2,3,4,5]

Vrednosti energetske zavisnosti pokazivanja u odnosu referentni kvalitet Cs-137 određene su eksperimentalno ispitivanjem monitora zračenja pri referentnoj orijentaciji u etalonskim poljima gama zračenja, izvora Cs-137 energije 662 keV i Co-60 srednje energije 1,25 MeV i X zračenja, korišćenjem rendgenskih kvaliteta N-serije – N-40 (33 keV), N-60 (48 keV), N-80 (65 keV), N-100 (83 keV), N-120 (100 keV), N-150 (118 keV) i N-200 (165 keV). Etaloniranje je obavljeno prema standardu ISO 4037-1:2019 [6] u laboratoriji za etaloniranje Laboratorije "Zaštita", Instituta "Vinča".

Tabela 1: Specifikacije monitora zračenja

Tip	DMRZ-M15 sa sondom S1 sa P2	Inspector EXP+	BDKG-04	SG-2R
Detektor	GM sa prozorom ø65 mm	GM sa prozorom ø45 mm	Plastic ø30 mm • 15 mm	NaI(Tl) ø50,8 mm • 50,8 mm
Osetljivost (Cs-137) [imp·s ⁻¹ po µSv·h ⁻¹]	8,9	5,5	70	1250
Merni opseg $\dot{H}^*(10)$	0,1 µSv/h - 1 mSv/h	0,1 µSv/h - 1 mSv/h	0,05 µSv - 10 Sv/h	0 µSv/h - 50 µSv/h
Energetski opseg	59 keV - 1,3 MeV	10 keV - 1,3 MeV	15 keV - 10 MeV	40 keV - 1,5 MeV
Energetska zavisnost	44,2 %	219 %	16,8 %	780 %

Budžet merne nesigurnosti

Budžet merne nesigurnosti određen je na osnovu podataka dobijenih laboratorijskim ispitivanjem i tokom etaloniranja osim za vrednost energetske zavisnosti za sondu SG-2R, koja kataloška vrednost. Date vrednosti su određene za po jedan primerak uređaja. Nisu očekivana značajna odstupanja od izmerenih vrednosti za druge primerke istog modela uređaja istih kataloških karakteristika, osim u slučaju pogoršanja karakteristika komponenata uređaja usled dugotrajne eksploatacije, starenja komponenata ili oštećenja. Najveći doprinos mernoj nesigurnosti daje energetska zavisnost detektora.

Tabela 2: Budžet merne nesigurnosti

Izvor merne nesigurnosti	Raspodela	Osetljivost	Relativna standardna nesigurnost			
			DMRZ-M15 sa sondom S1	Inspector EXP+	BDKG-04	SG-2R
Kalibracioni faktor	Normalna	1	5,7 %	9,2 %	3,3 %	3,2 %
Linearnost	Pravougaona	1	3,8 %	3,8 %	2,3 %	2,6 %
Energetska zavisnost	Pravougaona	1	25,6 %	126,6 %	9,7 %	450,9 %
Ponovljivost merenja	Normalna	1	1,4 %	3,3 %	0,4 %	0,2 %
Rezolucija	Pravougaona	1	0,02 %	0,04 %	0,3 %	0,03 %
Kombinovana merna nesigurnost (k = 2)			53,0 %	254,1 %	21,1 %	901,8 %

Ovo je osnovni i pojednostavljeni budžet merne nesigurnosti u kome nisu navedeni svi izvori nesigurnosti. Na mernu nesigurnost značajno utiče i zavisnost odgovora dozimetra na upadni ugao zračenja tj. ugaona zavisnost, posebno kod energetske kompenzovanih detektora. Ukoliko se dozimetar pozicionira tako da zračenje izvora dopire iz referentnog pravca, može se zanemariti. Za merenje $\dot{H}^*(10)$ ambijenta najpogodnije je koristiti sferne ili cilindrične detektore. Cilindrični detektori se pozicioniraju vertikalno, zbog optimalnog ugaonog odziva u horizontalnoj ravni, dok imaju izrazit pad osetljivosti u vertikalnoj ravni pri malim uglovima, jer se ispod detektora najčešće nalazi veći deo kućišta sonde sa elektronikom za obradu signala i stub na koji je sonda montirana.

Na detektore velike zapremine utiče i uniformnost polja, međutim ako se radi o detektorima male zapremine (u ovom radu prikazani), takođe se može zanemariti.

Uticaj rezolucije je mali, međutim može biti značajan kod instrumenata sa analognom skalom gde se može javiti i paralaksa prilikom očitavanja rezultata, što takođe povećava mernu nesigurnost.

Uticaj mrtvog vremena detektora je zanemarljiv ako dozimetar ima automatsku korekciju pokazivanja, a indirektno se predstavlja kroz linearnost.

Uticaj elektromagnetnog (EM) zračenja može biti značajan. Dobro konstruisani dozimetri imaju malu zavisnost od spoljnih EM polja, a takođe imaju i slabu emisiju EM zračenja kako ne bi uticali na druge uređaje. Pretpostavka je da se merenja vrše daleko od izvora EM zračenja, pa uticaj nije uračunat. Statička i niskofrekventna magnetna polja mogu značajno uticati na scintilacione detektore sa fotomultiplikatorom, zbog čega se fotomultiplikatori oklapaju posebnim materijalom sa visokom magnetnom permeabilnošću čime se ti uticaji svode na minimum.

Ambijentalni uslovi mogu uticati na tačnost pokazivanja i na rad samog dozimetra, posebno ako su van deklarisanog opsega rada dozimetra. Ukoliko se dozimetar koristi u ekstremnim uslovima, potrebno je uračunati u mernu nesigurnost i uticaj temperature. Ovaj podatak je često prikazan u tehničkim karakteristikama dozimetara, posebno kod predviđenih za rad u otežanim uslovima. Scintilacioni detektori su osetljivi na ambijentalne uslove, posebno NaI(Tl) koji je higroskopan, a nagle promene u temperaturi mogu dovesti do stvaranja pukotina unutar kristala što dovodi do smanjenja osetljivosti detekcije i pogoršanja rezolucije kod prenosnih spektrometara/dozimetara. Prilikom upotrebe dozimetra pri ekstremnim temperaturnim uslovima potrebno je povesti računa i o deklarisanom temperaturnom opsegu rada izvora napajanja tj. primarnih baterija ili akumulatora. Ovi izvori pri niskim temperaturama imaju niži kapacitet od deklarisanog, stoga se i autonomija rada dozimetra srazmerno smanjuje u odnosu na nominalnu.

Dugoročna stabilnost dozimetra je bitan pokazatelj ispravnosti i tačnosti pokazivanja u periodu između dva etaloniranja i jedan je od izvora merne nesigurnosti. Ukoliko se stabilnost dozimetra ne proverava periodično kontrolnim izvorom zračenja i izradom kontrolne karte, u slučaju da dođe do utvrđivanja značajne promene kalibracionog faktora prilikom etaloniranja (osetljivosti) u odnosu na prethodno etaloniranje, sva obavljena merenja dozimetrom se mogu smatrati nepouzdanim, jer ne postoji način da se utvrdi kada je došlo do promene osetljivosti dozimetra. Odluke donete na osnovu rezultata merenja su takođe nepouzdate. Stoga je nužno češće etaloniranje ili kontrola stabilnosti za dozimetre koji se koriste u situacijama kada se na osnovu rezultata merenja donose odluke. Stabilnost zavisi od kvaliteta dozimetra, konstrukcije i da li se dozimetar pravilno koristi tokom merenja, transporta i skladištenja. Mehanički potresi, nagle promene ambijentalne temperature, visok procenat relativne vlažnosti prilikom skladištenja i slično mogu negativno uticati na dozimetre, posebno na scintilacione, koji su osetljiviji od dozimetara baziranih na GM detektorima.

Osetljivost detektora i vreme merenja

Osetljivost detektora koji rade u impulsnom režimu izražena je kao broj impulsa koji se dobije na izlazu detektora pri određenoj jačini doze. U ovom slučaju je to $1 \mu\text{Sv/h}$ u veličini $\dot{H}^*(10)$. Upoređivanjem vrednosti osetljivosti iz tabele 1 vidi se da je razlika između osetljivosti različitih detektora može biti i preko hiljadu puta. Na osetljivost utiče veličina efikasne zapremine detektora i tip detektora. Gasni detektori imaju nisku osetljivost na

fotonsko zračenje u odnosu na scintilacione detektore, posebno detektore veće gustine kao što su NaI(Tl), CsI(Tl), LaBr₃(Ce) i drugi.

Standardna devijacija rezultata merenja zavisi direktno od registrovanog broja impulsa N sa detektora tokom vremena merenja t . Ova zavisnost data je izrazom:

$$1\sigma = \frac{\sqrt{N}}{N} \quad (1)$$

za nivo pokrivenosti od 68,3 %, dok je dvostruko veći broj impulsa potreban za nivo pokrivenosti od 2σ (95 %). U praksi ovo znači da osetljivost detektora direktno utiče na minimalnu dužinu vremena merenja kako bi se dobio statistički pouzdan rezultat tj. na ponovljivost merenja u budžetu merne nesigurnosti. Detektori sa malom osetljivošću nisu odgovarajući za merenje niskih jačina doza bliskih osnovnom prirodnom nivou tj. fonu čija je vrednost približno 100 nSv/h. Kod takvih dozimetara je vrednost donje granice mernog opsega najčešće 1 μSv/h ili viša, bez obzira na to što dozimetar prikazuje i niže izmerene vrednosti.

U tabeli 3 date su vrednosti odgovarajućeg vremena merenja kako bi se dobile izmerene vrednosti standardne relativne devijacije (1σ) pri različitim vrednostima $\dot{H}^*(10)$.

Tabela 3: Standardna relativna devijacija i vreme merenja

Relativna standardna devijacija [%]	$\dot{H}^*(10)$ [μSv·h ⁻¹]	Vreme merenja [s]			
		DMRZ-M15 sa sondom S1	Inspector EXP+	BDKG-04	SG-2R
20	0,08	36	57	5	1
	0,5	6	10	1	1
	1	3	5	1	1
	5	1	1	1	1
10	0,08	141	228	18	1
	0,5	23	37	3	1
	1	12	19	2	1
	5	3	4	1	1
5	0,08	562	910	72	4
	0,5	90	146	12	1
	1	45	73	6	1
	5	9	15	2	1
2	0,08	3512	5682	447	25
	0,5	562	910	72	4
	1	281	455	36	2
	5	57	91	8	1

Diskusija i zaključak

Analizom rezultata procenjene merne nesigurnosti monitora zračenja iz tabele 2, sonda BDKG-04 ima malu vrednost merne nesigurnosti, dok DMRZ-M15 ima prihvatljivu vrednost merne nesigurnosti. Oba uređaja se mogu overiti i mogu se koristiti kao dozimetri za merenje $\dot{H}^*(10)$. Monitori zračenja Inspector EXP+ (kao i modeli Ranger EXP i drugi sa istim

modelom sonde ili detektora sa otkrivenim prozorom) i sonda SG-2R imaju izrazito veliku mernu nesigurnost, ne mogu se overiti i ne mogu se koristiti kao dozimetri, već samo kao detektori (indikatori) zračenja. Najveći doprinos mernoj nesigurnosti daje izražena energetska zavisnost detektora. Ova osobina je izuzetno nepoželjna kod uređaja koji su dozimetri (merenje $\dot{H}^*(10)$), dok kod uređaja koji se koriste kao detektori (indikatori) za traženje izvora ili kontaminacije čak i povoljno utiče, jer povećava osetljivost detekcije fotona energija u ispitivanoj oblasti od 33 keV do 165 keV. Ovaj efekat se postiže i skidanjem kompenzacionog filtera tj. poklopca P2 na sondi S1 uređaja DMRZ-M15 kada se više ne koristi kao dozimetar već kao detektor kontaminacije. Ovu mogućnost ima sve više dozimetara na tržištu, pa treba strogo pratiti uputstva proizvođača kako se ne bi napravila gruba greška i dozimetar koristio bez kompenzacionog filtera prilikom merenja $\dot{H}^*(10)$.

Korišćenjem uređaja sa izrazitom energetskom zavisnošću prilikom merenja poznatog izvora zračenja moguće je smanjiti mernu nesigurnost primenom korekcionog faktora za datu energiju, izostavljanjem uticaja energetske zavisnosti iz budžeta i dodavanjem merne nesigurnosti korekcionog faktora. Međutim, treba obratiti pažnju da se u uslovima različitih od laboratorijskih prilikom etaloniranja (kolimisan snop zračenja sa minimalnim rasejanim zračenjem) javlja i rasejano zračenje nižih energija koje takođe može značajno uticati na rezultat merenja, pa je najbolje koristiti uređaj koji je klase dozimetra sa energetskom kompenzacijom. [7]

Nije retkost da se uređaji klase detektora (indikatora) koriste kao dozimetri za merenje $\dot{H}^*(10)$, jer izmerene vrednosti prikazuju u jedinicama Sv. Ispitivanjem uređaja i ograničavanjem upotrebe uređaja neodgovarajućih mernih karakteristika u skladu sa Pravilnikom, poboljšava se pouzdanost rezultata merenja što se dalje odražava i na bolju procenu radijacionog rizika na osnovu merenja $\dot{H}^*(10)$.

U tabeli 3 prikazana je zavisnost potrebnog vremena merenja u zavisnosti od vrednosti $\dot{H}^*(10)$ i osetljivosti detektora. Neki monitori zračenja imaju automatsku promenu vremena merenja, nekima se može zadati fiksno vreme merenja ili zadati statistička tačnost, dok neki imaju samo fiksno vreme merenja, sa ili bez pokretnog proseka (eng. *moving average*, usrednjavanje određenog broja prethodnih rezultata merenja). Monitori zračenja koji imaju malu osetljivost moraju duže da mere u jednoj tački pri nepromenjenoj geometriji kako bi se izmerila niska vrednost $\dot{H}^*(10)$. Često je za prenosne uređaje duže vreme merenja nepraktično, što bi značilo da prilikom dozimetrijske kontrole, sonda treba nepomično da stoji u jednoj tački više minuta ako se želi statistička tačnost od 10 %, a i duže ako je potrebna bolja tačnost. Ukoliko uređaj nema podešavanje vremena merenja, onda je potrebno upisati veliki broj rezultata merenja tokom tog intervala. Ukoliko uređaj ima opciju usrednjavanja, može se upisati i manji broj merenja, ali sa dužim vremenskim razmakom između očitavanja kako bi rezultati bili statistički nezavisni. Potrebno je naći kompromis između cene uređaja, osetljivosti detekcije, energetske zavisnosti i robustnosti. Kod merenja $\dot{H}^*(10)$ kada nije potrebna visoka tačnost, mogu se koristiti dozimetri sa energetski kompenzovanim GM detektorom. Imaju manju osetljivost detekcije fotona od scintilacionih, ali su robusni, imaju nižu cenu, lakši su za održavanje i imaju mogućnost detekcije kontaminacije ako su korišćeni detektori sa prozorom (DMRZ-M15). Za merenje niskih vrednosti i malih promena $\dot{H}^*(10)$ ili kada je potrebna bolja statistička tačnost, a jačina $\dot{H}^*(10)$ je bliska fonu, najbolje je koristiti scintilacione detektore. Scintilacioni detektori sa plastičnim detektorom imaju manju osetljivost detekcije od detektora sa NaI(Tl) pri istoj aktivnoj zapremini, ali su otporniji na spoljne uslove i mehaničke potrebe, jefiniji su i uglavnom imaju veći merni opseg i bolju inherentnu energetsku zavisnost. Monitori zračenja sa NaI(Tl) koji nemaju energetsku kompenzaciju (kao prikazana sonda SG-2R) odlični su detektori izvora fotonskog zračenja, dok se ne mogu koristiti kao dozimetri. Međutim, na

tržištu je sve više uređaja baziranih na NaI(Tl) sa softverskom energetsom kompenzacijom na osnovu energije fotona (spektrometri sa funkcijom dozimetra). Ti uređaji su skuplji od drugih ovde navedenih, potrebna je redovna kalibracija kako bi se $\dot{H}^*(10)$ ispravno izračunavala na osnovu energija spektra fotona, osetljivi su na spoljne uticaje, imaju niži merni opseg jačine doze, ali imaju najbolje merne karakteristike i osetljivost detekcije fotonskog zračenja. Još bolju osetljivost i rezoluciju od NaI(Tl) imaju CsI(Tl) i LaBr₃(Ce) scintilatori, ali uz značajno višu cenu.

Kako bi rezultati merenja $\dot{H}^*(10)$ bili upotrebljivi, lice koje koristi dozimetar mora dobro da poznaje karakteristike i ograničenja uređaja koji koristi. Referentna tačka detektora, referentna orijentacija kao i broj izmerenih vrednosti (tj. vreme merenja) su od velikog uticaja na rezultat merenja, pa se moraju naglasiti prilikom definisanja metode merenja. Takođe, prilikom merenja treba koristiti energetske kompenzovane uređaje koji su redovno etalonirani tj. overeni. Ako se javi bilo kakva sumnja u njihovu ispravnost, potrebno je obaviti proveru tačnosti merenja kontrolom stabilnosti (upoređivanjem novih i prethodnih rezultata), bilo korišćenjem kontrolnog izvora, bilo određivanjem kalibracionog faktora pri odabranoj jačini doze u etalonskom polju referentnog izvora zračenja.

Literatura

- [1] Pravilnik o aktivnim dozimetrima fotonskog zračenja koji se koriste u zaštiti od jonizujućeg zračenja, Sl. gl. RS 144/22, 2022.
- [2] Uputstvo za upotrebu, Digitalni merač radioaktivnog zračenja model 15 – DMRZ-M15, Vinča, april 2023.
- [3] Radiation Alert® Inspector EXP+ User Manual, štampana verzija
- [4] Atomtex, AT1117M Radiation Monitor User's Manual 412152.008 UM
- [5] SG-2R Gamma Probe Datasheet, Mirion Technologies (Canberra), 2017.
- [6] ISO 4037-1:2019(E), Radiological protection — X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and doserate meters and for determining their response as a function of photon energy — Part 1: Radiation characteristics and production methods, International Organization for Standardization, Geneva, 2019.
- [7] M.Z. Živanović, A.F. Šabeta, N.Lj. Kržanović, V.D. Makarić, M.V. Djaletić, M.R. Stupar, S.J. Stanković. Comparison of calibration factors for field-class dosimeters, Nuclear Technology & Radiation Protection Vol.32 No.2, 2022, 103-110, <https://doi.org/10.2298/NTRP2202103Z>

MEASUREMENT UNCERTAINTY OF AMBIENT PHOTON DOSIMETERS IN PULSE MODE OPERATION WITH SPECIAL EMPHASIS TO THE INFLUENCE OF DETECTION SENSITIVITY AND MEASUREMENT TIME

Miloš ĐALETIĆ¹

- 1) *"VINČA" Institute of Nuclear Sciences - National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade*

ABSTRACT

Assessment of the measurement uncertainty of the ambient dose equivalent is important for determining the adequacy of the selected survey meter and measurement method. Inadequate selection of the survey meter or its suboptimal use can result in high values of measurement uncertainty. Whenever possible, an appropriate survey meter and measurement method should be selected. In this paper, the measurement uncertainty was estimated for several types of survey meters with very different measurement characteristics. The sensitivity of the detector and the selected measurement time significantly affect the measurement uncertainty, which is shown in this paper with examples. Optimal selection of equipment and measurement method can provide significantly more reliable measurement results.

PRIPREMA RADIOAKTIVNIH STANDARDA ZA KALIBRACIJU GAMA SPEKTROMETARA

Ivana VUKANAC¹, Mirjana ĐURAŠEVIĆ², Milica RAJAČIĆ¹,
Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹, Nataša SARAP¹, Marija JANKOVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za Zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*
- 2) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Centar za permanentno obrazovanje, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*

Autor za korespondenciju: Ivana VUKANAC, vukanac@vin.bg.ac.rs

SAŽETAK

Rutinska merenja uzoraka iz životne sredine gama spektrometrijom zahtevaju pripremu radioaktivnih standarda različitih matriksa. Radioaktivni standardi se koriste u svim fazama procesa merenja, uključujući validaciju metoda, kalibraciju i kontrolu kvaliteta. U Laboratoriji za Zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Instituta za nuklearne nauke „Vinča” radioaktivni standardi se pripremaju korišćenjem sertifikovanog radioaktivnog rastvora različitih radionuklida. U ovom radu je opisan postupak pripreme radioaktivnih standarda koji obuhvata izbor matriksa, pripremu i spajkovanje pripremljenih matriksa sa sertifikovanim radioaktivnim rastvorom, proveru homogenosti, pakovanje standarda u odgovarajuću geometriju i njihova merenja u kontakt geometriji na gama spektrometru. Za sve materijale matriksa pripremljeni su i uzorci „blenka“ i mereni u istoj geometriji kao i kalibracioni standardi. Nakon analize snimljenih spektara, fitovanjem datih tačaka efikasnosti dobijene su kalibracione krive. U ovom radu dat je i opis budžeta merne nesigurnosti za aktivnosti radionuklida prisutnih u pripremljenim standardima.

Uvod

Svaka ispitna laboratorija akreditovana prema ISO/IEC 17025:2017 – *Opšti zahtevi za kompetentnost laboratorija za ispitivanje i etaloniranje*, mora da ima pristup opremi, uključujući tu i referentne materijale (član 6.4.1) [1]. Za referentne materijale u literaturi se mogu sresti brojni nazivi, uključujući i: referentni etaloni, kalibracioni standardi, standardni referentni materijali i materijali za kontrolu kvaliteta. Referentni materijali koji ispunjavaju uslove standarda ISO 17034 imaju sertifikat sa informacijama kojima se specificiraju karakteristike materijala kao što su homogenost i stabilnost, kao i specifična svojstva sa sertifikovanim vrednostima, njihova pridružena merna nesigurnost i metrološka sledljivost [2].

Merna oprema koja se koristi mora biti etalonirana (ISO 17025, član 6.4.6) , pri čemu ispitna laboratorija mora da uspostavlja i održava metrološku sledljivost svojih rezultata merenja pomoću dokumentovanog neprekidnog lanca etaloniranja, gde svaki od koraka doprinosi mernoj nesigurnosti (ISO 17025, član 6.5.1) [1].

U ispitnim laboratorijama gde se sadržaj radionuklida određuje gama spektrometrijski, jedan od najvažnijih zadataka je da se za detektorski sistem uradi pouzdana kalibracija efikasnosti. Imajući u vidu raznolikost uzoraka koji se ispituju, kalibraciju efikasnosti potrebno je uraditi za veliki broj matriksa u geometrijama koje se koriste u laboratoriji. Nabavka većeg broja kalibracionih standarda često nije moguća, bilo da su u pitanju nedostatak sredstava ili

nedostupnost standarda ili referentnih materijala u željenim matriksima. Kalibracija efikasnosti može se uraditi i korišćenjem različitih Monte Carlo simulacija, semi-empirijski ili numerički, ali je tada neophodno poznavati tačnu geometriju i karakteristike samog detektora. Eksperimentalno određivanje krive efikasnosti pomoću radioaktivnih standarda iste geometrije, matriksa i gustine kao uzorak čija se aktivnost ispituje je ipak najpouzdanije [3, 4, 5, 6, 7].

Jedna od mogućnosti za prevazilaženje ovog pitanja je priprema laboratorijskih radioaktivnih standarda u skladu sa potrebama, odnosno u geometrijama i matriksima koji se najčešće ispituju. U radu je opisan postupak pripreme radioaktivnih standarda spajkovanjem sertifikovanim radioaktivnim rastvorom miksa različitih radionuklida.

Materijal i metode

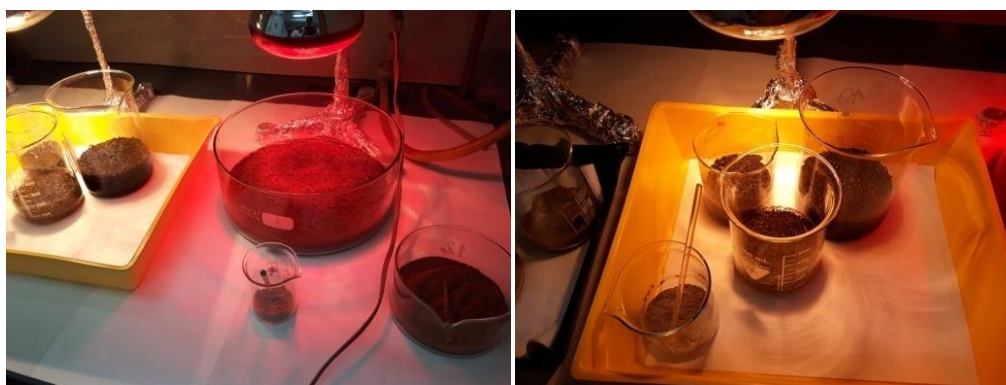
Izbor matriksa za pripremu standarda urađen je u skladu sa višegodišnjom laboratorijskom praksom, odnosno izabrani su matriksi koji se najčešće mere u laboratoriji – mineralizovana trava, mineralizovani filteri za prikupljanje aerosola, mlevena suva trava, đubrivo, mleveni mermer, ugajl, voda, zemljište i filter papir. Osim toga, pri izboru matriksa vođeno je računa o fizičkim karakteristikama materijala i dugovremenskoj stabilnosti. Naime, izabrani matriksi ne smeju biti higroskopni i moraju biti pogodni za planiran način pripreme (mogućnost suspenzije u etil alkoholu).

Mineralizovana trava i mineralizovani filteri za prikupljanje aerosola pripremljeni su u obliku homogenog pepela dobijenog žarenjem na temperaturi od 450 °C i 380 °C, respektivno, u skladu sa međunarodnim preporukama [8]. Uzorci trave sušeni su preko noći na temperaturi od 105 °C i zatim samleveni u mlinu. Đubrivo je bilo u obliku kuglica dimenzija do 2 mm, dok je mermer samleven u mlinu za kamen na frakcije dimenzije 1 mm-2 mm. Ugajl i zemljište su prvo sušeni na 105 °C, a zatim prosejani i usitnjeni u avanu. Destilovana voda je zakišeljena 0,1 M HCl do 3-4 pH (Slika 1a). Standard u obliku filter papira kružnog oblika prečnika 5 cm je pripremljen od filter papira koji se u laboratoriji koristi za uzimanje briseva sa površina na kojima se ispituje kontaminacija. Količina pripremljenog materijala određena je na osnovu plana pripreme, a za svaki standard predviđena je i količina za pripremu tzv. "blenka". S obzirom da su pripremljeni materijali uglavnom uzorci iz životne sredine, merenjem blenka se proverava koncentracija prirodnih radionuklida, a pri eksperimentalnom određivanju krive efikasnosti od spektra merenog standarda oduzima se spektar snimljenog blenka. Važno je da prirodna radioaktivnost pripremljenih materijala bude niska, ali i da u njima ne budu detektovani proizvedeni radionuklidi koji su prisutni u sertifikovanom rastvoru.

Za **spajkovanje pripremljenih matriksa** korišćen je sertifikovani rastvor miksa radionuklida (^{241}Am , ^{109}Cd , ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{133}Ba , ^{85}Sr , ^{88}Y , ^{51}Cr , ^{210}Pb) nabavljen kod Češkog Metrološkog Instituta [9] čime je obezbeđena metrološka sledivost do BIPM (Bureau International des Poids et Mesures). Korišćenjem ovog miksa radionuklida pokrivena je energetska oblast od 46 keV do 1836 keV. Masa sertifikovanog rastvora od 5.181 g gravimetrijski je podeljena na pojedinačne standarde bez ostatka. Pripremljeni matriksi su suspendovani u alkoholu i spajkovani poznatom masom sertifikovanog rastvora. Masa dodatog rastvora određena je gravimetrijski, merenjem na petodecimalnoj vagi (Mettler B6). U cilju homogenizacije tokom dodavanja rastvora, alkohol je mešan na magnetnoj mešalici (Slika 1b), nakon čega je dodat matriks. Spajkovani matriksi su sušeni korišćenjem IC lampe (1-5) dana, Slika 2.



**Slika 1: a) Zakišeljavanje destilovane vode 0,1 M HCl do 3-4 pH;
b) Mešanje alkohola sa sertifikovnim rastvorom**



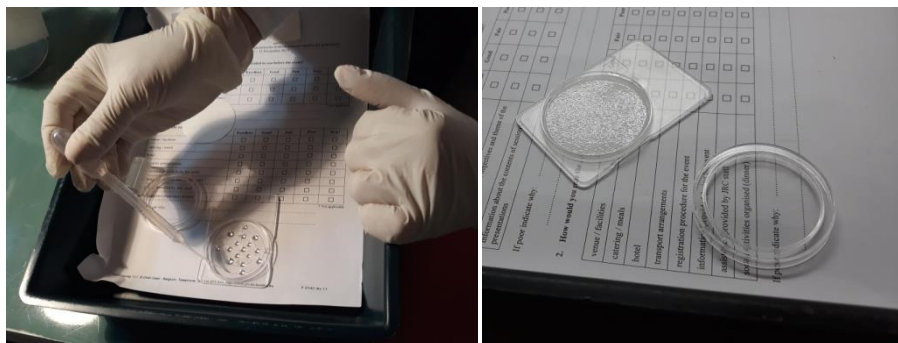
Slika 2: Sušenje matriksa pod IC lampom

Pre spajkovanja urađene su „hladne probe“ da bi se odredila tačna količina etil alkohola potrebnog za suspenziju pripremljene količine matriksa, da bi se procenilo vreme potrebno da se suspendovani matriks osuši i da bi se proverilo da li nakon spajkovanja i sušenja matriks zadržava prvobitna svojstva. Svi izabrani matriksi su se pokazali pogodnim za predviđen postupak pripreme radioaktivnih standarda. Od nabavljenog sertifikovanog rastvora je pripremljeno 13 standarda u 9 matriksa i 5 geometrija merenja (PVC cilindrična posuda od 125 ml i 250 ml, fiola, Marineli od 500 ml, PVC boca od 250 ml), Slika 3.



Slika 3: Standardi različitih geometrija i matriksa

Standard u geometriji filter papira pripremljen je uranjanjem u unapred određenu količinu rasvora radionuklida čime je obezbeđena homogena raspodela aktivnosti po površini filter papira (Slika 4). Vodeni standard pripremljen je direktnim nakapavanjem poznate mase sertifikovanog rastvora u zakišeljenu destilovanu vodu. Na Slici 5 su prikazani neki od pripremljenih standarda u procesu pripreme.

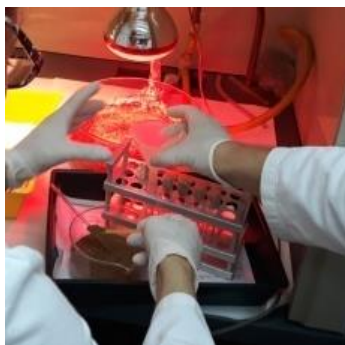


Slika 4: Priprema standarda u geometriji filter papira



Slika 5: Standardi u procesu pripreme

Najosetljiviji korak u postupku pripreme standarda je **provera homogenosti** pripremljenog spajkovanog matriksa. Homogenost je proveravana merenjem na scintilacionom *Well-type* NaI(Tl) detektoru. Za svaki od pripremljenih standarda odmerene su manje količine spajkovanog matriksa u pet epruveta (Slika 6). Visina punjenja epruveta približno je bila jednaka dubini otvora u scintilacionom detektoru da bi se postigla optimalna efikasnost brojanja. Mase merenih porcija spajkovanih matriksa varirale su od 1 g do 10 g u zavisnosti od njihove gustine. Za svaku od pet epruveta sa istim matriksom urađena je serija od 5 merenja i računata je srednja vrednost brzine brojanja po jedinici mase (g) za svaku od serija sa odgovarajućom standardnom devijacijom. Vreme merenja određeno je tako da integralni odbroj bude reda 10000, odnosno da statistička greška brojanja bude reda 1 %. Homogenost je smatrana zadovoljavajućom ako je standardna devijacija srednje vrednosti srednjih vrednosti pojedinačnih serija ispod 3 %.



Slika 6: Odmeravanje standarda u epruvete radi provere homogenosti

Ukupna aktivnost pripremljenih standarda je računata na osnovu mase sertifikovanog rastvora koja je dodata u matriks i poznate specifične aktivnosti pojedinačnih radionuklida. Nakon pripreme, pripremljeni standardi su pakovani u odgovaraju geometriju. Posude u kojima je vršeno spajkovanje, nakon pražnjenja su merene na HPGe spektrometru u cilju određivanja eventualnih gubitaka aktivnosti usled adsorpcije u zidovima posude. Na osnovu ovih, ali i na osnovu merenja masa u svim fazama pripreme, procenjeno je da je ukupan gubitak aktivnosti u postupku pripreme reda 1,5 %, što je, za svaki standard ponaosob, uvršteno u budžet merne nesigurnosti.

Nesigurnost aktivnosti pripremljenih standarda direktno utiče na nesigurnost određivanja efikasnosti i samim tim indirektno utiče na nesigurnost rezultata merenja, odnosno određivanje aktivnosti u nepoznatom uzorku. Budžet nesigurnosti aktivnosti pripremljenih standarda obuhvata:

- Nesigurnost ukupne aktivnosti sertifikovanog standardnog rastvora;
- Nesigurnost merenja mase rastvora dodatog u pripremljeni matriks;
- Nesigurnost merenja mase pripremljenog materijala;
- Nesigurnost usled gubitaka tokom postupka pripreme;
- Nesigurnost usled ispitane nehomogenosti pripremljenih matriksa;
- Nesigurnost usled razlike masa matriksa pre i posle sušenja.

Kombinovana nesigurnost ukupne aktivnosti pripremljenih standarda je manja od 5 %.

Rezultati

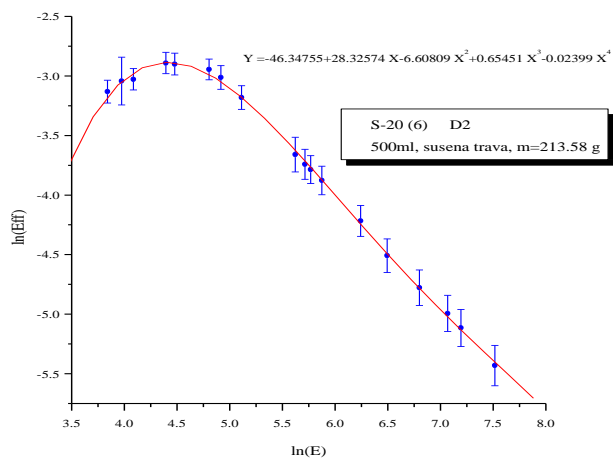
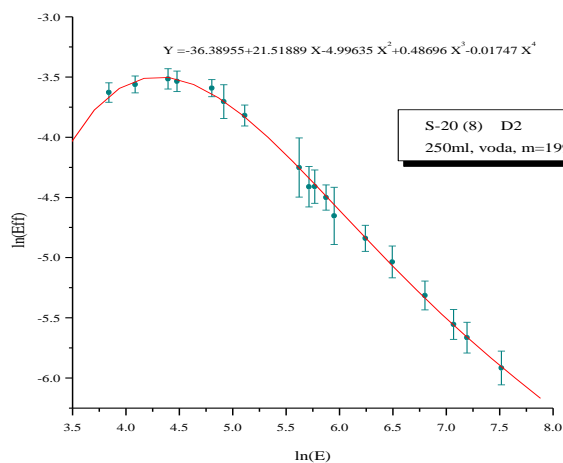
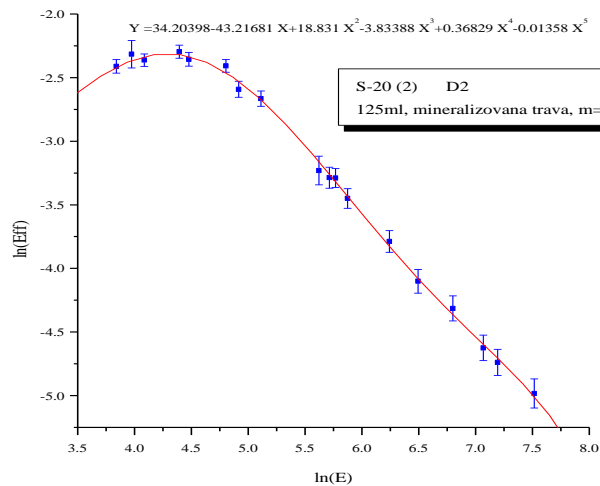
Pripremljeni standardi mereni su na poluprovodničkom HPGe spektrometru u kontakt geometriji. Standardi su mereni tako da statističke merne nesigurnosti površine ispod pojedinačnih pikova budu reda 1 %, a merenja su trajala od 8000 s do 16000 s. Spektri su analizirani pomoću GENIE2K softvera, a snimljeni spektri korigovani su oduzimanjem spektra odgovarajućeg blenka. Odbroji pojedinačnih pikova korigovani su na koincidentno sumiranje. Korekcionni faktori su računati pomoću programa EFFTRAN i MEFFTRAN [10]. Efikasnost na određenoj energiji je računata pomoću poznate formule:

$$(1) \quad \varepsilon(E) = \frac{N(E)}{t p A},$$

gde je N -odbroj ispod pika na energiji E , t -vreme merenja, p -prinos linije na energiji E , A -aktivnost merenog standarda (radionuklida koji pri raspadu emituje foton na energiji E).

Nakon određivanja efikasnosti za pojedinačne energije, kriva efikasnosti je dobijena fitovanjem datih tačaka polinomom četvrtog ili petog stepena. Primeri eksperimetalno određenih krivih efikasnosti, neposredno nakon pripreme standarda, za različite geometrije i matrikse prikazani su na Slici 7. Nesigurnosti efikasnosti dobijenih za pojedinačne energije, prikazane na slikama, predstavljaju kombinovanu mernu nesigurnost, a obuhvataju nesigurnost aktivnosti merenog standarda, nesigurnost fluorescentnog prinosa za datu gama liniju i statističku mernu nesigurnost.

Pri korišćenju standarda nakon nekog vremena treba imati u vidu da će, zbog relativno kratkog vremena poluraspada nekih radionuklida (na pr. ^{85}Sr , ^{88}Y i ^{51}Cr) u snimljenim spektrima biti manje linija pomoću kojih je moguće formirati krivu efikasnosti. Kako je validnost sertifikata rastvora miksa radionuklida 3 godine, nakon tog vremena preporuka je da se pripremljeni standardi koriste samo u cilju verifikacije ranije određenih krivih efikasnosti.



Slika 7: Krive efikasnosti za neke od pripremljenih standarda dobijene fitovanjem tačaka efikasnosti na određenim energijama. Na graficima su prikazane i funkcije fita.

Diskusija i zaključak

Postupak pripreme radioaktivnih standarda za potrebe kalibracije gama spektrometrijskih sistema opisan u ovom radu može biti veoma koristan u ispitnim laboratorijama koje se u rutinskim merenjima sreću sa velikim brojem različitih materijala čiju je aktivnost potrebno ispitati. Spajkovanje pripremljenih matriksa u tačnoj fazi pokazalo se kao mnogo prihvatljivije u odnosu na ranije primenjivanu tehniku spajkovanja pomoću aktivnog uglja [11, 6]. Dobijene krive efikasnosti proverene su uspešnim učešćem u interkomparacijama.

Zahvalnica

Istraživanje je finansijski podržano od strane Ministarstva nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] Opšti zahtevi za kompetentnost laboratorija za ispitivanje i etaloniranje, SRPS ISO/IEC 17025:2017, Institut za Standardizaciju Srbije, 2017.
- [2] General requirements for the competence of reference material producers, International Standard ISO 17034, International Organization for Standardization, Switzerland, 2016.
- [3] J. Krneta Nikolić, M. Rajačić, D. Todorović, M. Janković, N. Sarap, G. Pantelić, I. Vukanac, 2018. Semiempirical efficiency calibration in semiconductor HPGe gamma-ray spectroscopy. *J. Spectrosc.* <https://doi.org/10.1155/2018/5392658>. , Article ID5392658.
- [4] D. Novković, A. Kandić, M. Đurašević, I. Vukanac, Z. Milošević, L. Nadđerđ, "Coincidence Summing of X- and γ - rays in γ -ray spectrometry", *Nuclear Instruments and Methods in Physical Research A*, 578, 2007, 207-217.
- [5] D. Novković, L. Nadđerđ, M. Đurašević, I. Vukanac, A. Kandić, Z. Milošević, „The direct measurement of ^{133}Ba activity by the sum-peak method“, *Nuclear Instruments and Methods in Physical Research A*, 608, 2009, 116-120.
- [6] I. Vukanac, M. Djurašević, A. Kandić, D. Novković, L. Nadđerđ, Z. Milošević. Experimental determination of the HPGe spectrometer efficiency curve. *Appl. Radiat. Isot.* 66, 2008, 792-95.
- [7] I. Vukanac, M. Đurašević, J. Krneta Nikolić, G. Pantelić, M. Rajačić, M. Janković, N. Sarap, D. Todorović, Preparation and validation of laboratory radioactive standards for experimental calibration in gamma ray spectrometry, *Radiation Physics and Chemistry*, Volume 183, 2021, p.p. 109407.
- [8] Measurements of Radionuclides in Food and Environment, Method for Determining Gamma Emitters, IAEA Technical Reports Series No. 295, Vienna, 1989.
- [9] CMI (Czech Metrological Institute), Radioactive Standard Solutions, ER X 1035-SE-40507-22, Prague, 2022.
- [10] Jelena Nikolić, Tim Vidmar, Dejan Joković, Milica Rajačić, Dragana Todorović, Calculation of HPGe efficiency for environmental samples: comparison of EFFTRAN and GEANT4, *Nuclear Instruments and Methods in Physical Research A*, Volume 763, 2014, 347-353.
- [11] M. Taskaeva E. Taskaev, I. Penev, On the preparation of efficiency standards for gamma-ray spectrometers. *Appl. Radiat. Isot.* 47/9, 1996, 981-990.

PREPARATION OF RADIOACTIVE STANDARDS FOR CALIBRATION OF GAMMA SPECTROMETER

Ivana VUKANAC¹, Mirjana ĐURAŠEVIĆ², Milica RAJAČIĆ¹,
Jelena KRNETA NIKOLIĆ¹, Nataša SARAP¹, Marija JANKOVIĆ¹

- 1) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Radiation and Environmental Protection Department, Belgrade, Serbia*
- 2) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Permanent Education, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

The routine measurements of environmental samples using gamma-ray spectrometry indicate the needs for preparing radioactive standards for various matrices. The radioactive standards are used in all phases of the measurement process, including method validation, calibration and quality control. In the Radiation and Environmental Protection Department in the "Vinča" Institute of Nuclear Sciences, radioactive standards are prepared using a certified radioactive solution of mixed radionuclides. The procedure for radioactive standards preparation, which includes matrix selection and preparation, spiking with a certified radioactive solution, homogeneity check, matrix packing in the appropriate geometry and measurement of the prepared standards using a gamma spectrometer, is described in this paper. For all matrix materials, "blank" samples were prepared in the same manner as the standard materials and measured in the same geometry as the calibration samples. After the analysis of recorded spectra and evaluation of the obtained data for efficiency at given energies, calibration curves were obtained by fitting. The uncertainty budget of the activity for all radionuclides present in the prepared standards is also defined in this paper.

ODREĐIVANJE SR-89 I SR-90 ČERENKOVLJEVIM BROJENJEM

Ivana SOHA¹, Gorana KARANOVIĆ¹, Željko GRAHEK¹1) *Institit Ruđer Bošković, Bijenička c. 54, Zagreb, Hrvatska**Autor za korespondenciju: Željko GRAHEK, zgrahek@irb.hr*

SAŽETAK

Opisana je metodologija za brzo određivanje Sr-89 i Sr-90 u normalnim i izvanrednim situacijama. Metodologija se temelji na istovremenom izdvajanju stroncija i itrija iz uzoraka i kvantitativnom određivanju Sr-89 i Sr-90 Čerenkovljevim brojanjem. Metodologija kvantitativnog određivanja Čerenkovljevim brojanjem temelji se na praćenju promjena aktivnosti Sr-89 i prirasta Y-90 u uzorku tijekom vremena. Tim principom Sr-89 i Sr-90 mogu se odrediti s prihvatljivom točnošću kada je omjer aktivnosti Sr-89/Sr-90 čak i veći od 10:1. Dobiveni rezultati su pokazali da se korištenjem tekućinskog scintilacijskog brojača niske razine osnovnog zračenja Sr-89 i Sr-90 mogu odrediti u širokom rasponu koncentracija aktivnosti unutar 2-3 dana. Točnost određivanja Sr-89 i Sr-90 ovisi o određivanju razlike između vremena odvajanja itrija te vremenskog intervala između dva brojenja.

Uvod

Određivanje Sr-89/Sr-90 je komplicirano i dugotrajno zbog njihovih radiokemijskih svojstava. Oba izotopa su čisti beta emiteri te njihovo kvantitativno određivanje zahtijeva kemijsku izolaciju čistog stroncija iz uzorka te izolaciju Y-90 nakon postizanja radiokemijske ravnoteže tako da čitav postupak traje najmanje šesnaest dana. Zbog toga se razvoj novih postupaka određivanja fokusira na redukciju vremena određivanja što je posebno važno u izvanrednim situacijama (nuklearni akcidenti) kada je brzo dobivanje točnog i pouzdanog rezultata od posebne važnosti za donošenje odluka o mjerama zaštite zdravlja. Razvojem novih visoko selektivnih kromatografskih postupaka izolacije u kombinaciji s detekcijom mogući je razvoj brzih i jednostavnih metoda njihova simultanog određivanja. Jedna od najjednostavnijih metoda simultanog određivanja Sr-89 i Sr-90 je metoda Čerenkovljevog brojenja na scintilacijskom brojaču. Metoda se temelji na činjenici da je srednja energija emitiranih elektrona Sr-90 niža od praga potrebnog za postizanje Čerenkovljevog zračenja te činjenici da energije emitiranih elektrona Y-90 i Sr-89 proizvode Čerenkovljevo zračenje. S obzirom da su vremena poluraspada Y-90 i Sr-89 dovoljno različita moguće je njihovo kvantitativno određivanje. Stoga je svrha ovog rada opisti princip kvantitativnog određivanja Sr-89/Sr-90 Čerenkovljevim brojenjem.

Metodologija

Princip određivanja je slijedeći: ^{89,90}Sr izoliraju se iz uzorka uz istovremeno odjeljivanje ⁹⁰Y i broje sukcesivno na tekućinskom scintilacijskom brojaču u otopini dušične kiseline tijekom 64 sata. Bilježi se aktivnost u minimalno dva različita vremenska intervala [1-3]:

$$A_{T_1} = \varepsilon_1 \cdot f_{11} \cdot A_{89_{Sr}} + \varepsilon_2 \cdot f_{21} \cdot w_1 \cdot A_{90_Y} \quad (1)$$

$$A_{T_2} = \varepsilon_1 \cdot f_{12} \cdot A_{89_{Sr}} + \varepsilon_2 \cdot f_{22} \cdot w_2 \cdot A_{90_Y} \quad (2)$$

Aktivnost ⁸⁹Sr i ⁹⁰Y se izračuna iz izraza:

$$A_{89Sr} = \frac{(A_{T1} - A_B)f_{22}w_2 - (A_{T2} - A_B)f_{21}w_1}{\varepsilon_1(f_{11}f_{22}w_2 - f_{12}f_{21}w_1)} \quad (3)$$

$$A_{90Y} = \frac{(A_{T2} - A_B)f_{11} - (A_{T1} - A_B)f_{12}}{\varepsilon_2(f_{11}f_{22}w_2 - f_{12}f_{21}w_1)} \quad (4)$$

a koncentracija aktivnosti iz izraza:

$$Ac(^{89}Sr) = \frac{A_{89Sr}}{R \cdot Q} \cdot e^{\lambda t} \quad ; \quad Ac(^{90}Y) = \frac{A_{90Y}}{R \cdot Q} \cdot e^{\lambda t} \quad (5)$$

$$L_d = 2.71 + 4.65 \cdot \sqrt{A_B \cdot t_c} \quad ; \quad MDA = \frac{L_d}{K} \quad ; \quad K = \varepsilon \cdot R \cdot t_c \cdot Q \quad (6)$$

A_{T1} – izmjerena aktivnost u prvom intervalu t_1 (cps),

A_{T2} – izmjerena aktivnost u drugom intervalu t_2 (cps)

A_{89Sr} – izračunata aktivnost ^{89}Sr (dps), A_{90Y} – izračunata aktivnost ^{90}Y (dps)

A_c – koncentracija aktivnosti ($Bq (kg/L)^{-1}$), A_B – osnovno zračenje (cps)

ε_1 – efikasnost detekcije ^{89}Sr , ε_2 – efikasnost detekcije ^{90}Y

$f_{11} = e^{-\lambda t_1}$ – faktor raspada ^{89}Sr u t_1 , $f_{12} = e^{-\lambda t_2}$ – faktor raspada ^{89}Sr u t_2

f_{21}, f_{22} – faktori raspada ^{90}Y za vrijeme brojenja t_c

λ – konstanta raspada ($\ln 2/t_{1/2}$), t_c – vrijeme brojenja

w_1, w_2 – udio ravnoteže, R – kemijsko iskorištenje

Q – količina uzorka (kg ili L), L_d – granica detekcije (impulsi),

MDA – minimalna koncentracija aktivnosti i ($Bq/kg/L$)

Rezultati i diskusija

Općenito govoreći ova metoda temelji se na praćenju promjene ukupne aktivnosti tijekom vremena. Aktivnost pojedinog izotopa može se odrediti samo u slučaju kada su konstante raspada mjerenih izotopa dovoljno različite (kao u slučaju Y-90 i Sr-89) da omogućuju pouzdano mjerenje promjena aktivnosti u određenom vremenskom intervalu. Određivanje je moguće samo u slučaju kada su ispunjeni slijedeći uvjeti:

- promjena aktivnosti između dva brojenja treba biti takva da daje značajnu razliku koja osigurava pouzdanost određivanja,
- omjer aktivnosti izotopa treba biti u granicama utvrđenim statističkim izračunom greške brojenja za dane razine aktivnosti.

Nadalje poznato je da u fisijskom fall outu Sr-89 i Sr-90 mogu biti u širokom rasponu aktivnosti (uz prisutnost i drugih izotopa Y i Sr). Stoga je za njihovo pouzdano određivanje potrebno poznavati u kojim omjerima Sr-89/Sr-90 se mogu odrediti. U tu svrhu poznati omjeri aktivnosti Sr-89 i Sr-90 mjereni su u različitim vremenskim intervalima (10, 24, 36, 48, 64 sata, nakon odjeljivanja Y-90 od Sr-90, a aktivnost Sr-89 i Sr-90 izračunata je iz relacija 3 i 4. Dobiveni rezultati prikazani su u Tabeli 1. Rezultati pokazuju da se izračunata i nominalna aktivnost ne razlikuju više od 10% kada je nominalni omjer aktivnosti $^{89}Sr/^{90}Sr$ 10:1. Realno nominalni omjer Sr-89/Sr-90 10:1, daje omjer na brojaču 6:1 (ili $^{90}Sr/^{89}Sr$ 1:17) zbog različitih efikasnosti detekcije. Međutim kada omjer prelazi tu granicu odstupanje

postaje značajno za izotop s nižom aktivnošću. Razlog je razumljiv jer je ukupna aktivnost detektirana na brojaču jednaka sumi aktivnosti oba izotopa pa kad je aktivnost jednog od izotopa u razini (ili niže) od pogreške brojenja određivanje nije moguće.

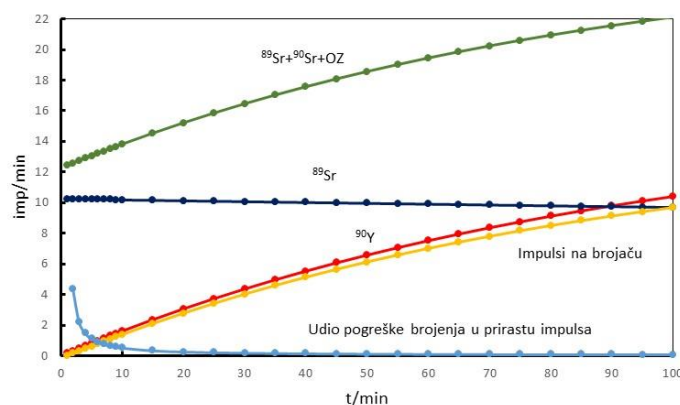
Na Slikama 1-3 prikazano je kako se aktivnost pojedinog izotopa mijenja tijekom vremena proteklog od izolacije do brojanja u ovisnosti o omjeru aktivnosti Sr-89/Sr-90. Naime na tim slikama simuliran je način određivanja oba izotopa kada su u različitim omjerima aktivnosti zastupljeni u uzorku.

Tabela 1: Određivanje ^{89}Sr i ^{90}Sr za različite omjere aktivnosti

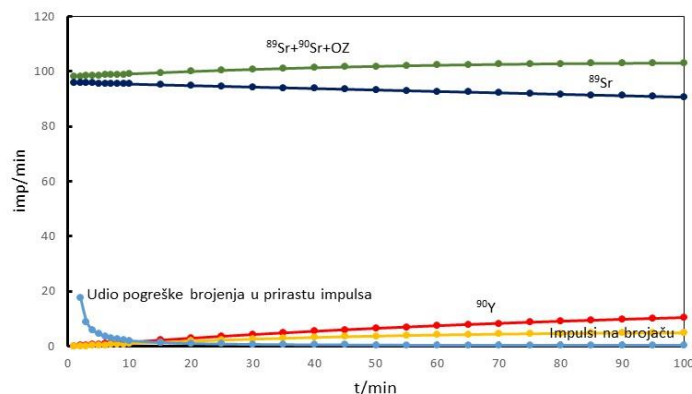
$A^{89}\text{Sr}/A^{90}\text{Sr}$	^{89}Sr (dpm)*	^{89}Sr calc (dpm)**	E(%)	^{90}Sr (dpm)*	^{90}Sr c (dpm)**	E(%)	$\epsilon A^{89}\text{Sr}/\epsilon A^{90}\text{Sr}$
1:33	349±3.5	545±30	+56.2	11659±160	11200±210	-3.9	1:51
1:19	209±3.1	248±20	+18.7	3925±40	3740±90	-4.9	1:28
1:4.6	838±9	931±25	+11.1	3925±40	3740±90	-4.9	1:7
1:1.5	2234±22	2360±40	+5.4	3886±40	3820±90	-1.70	1:2.3
1:1.1	3490±35	3540±40	+1.4	3886±40	3760±90	-3.24	1:1.7
60:1	6981±70	7130±105	+2.1	116±1.6	-	-	38:1
17:1	7050±71	7100±105	+0.7	427±6.0	234±40	-45.2	11:1
6:1	7050±71	6990±100	-0.8	1166±16	1095±90	-6.1	3.6:1

*dpm-dezintegracija po minuti, **srednja vrijednost računata± standardna devijacija, E – odstupanja računata i mjerene aktivnosti ($\epsilon_{89\text{Sr}} = 0,34$, $\epsilon_{90\text{Sr}} = 0,53$).

Simulacija se temelji na aktivnostima koje su prisutne u ERA interkomparacijskim uzorcima. Kao što se odmah može uočiti Sr-89 se lako određuje u slučaju da je njegova aktivnost ista ili veća od aktivnosti Sr-90. U tom slučaju aktivnost Sr-89 izračuna se iz prvog brojenja odmah nakon izolacije s obzirom da je prirast Y-90 vrlo mali i gotovo da ne utječe na točnost određivanja. Međutim određivanje Sr-90 ovisi o vremenu proteklom između dva brojanja. Ako je interval između dva brojenja prekratak prirast itrija može biti manji od pogreške brojenja.

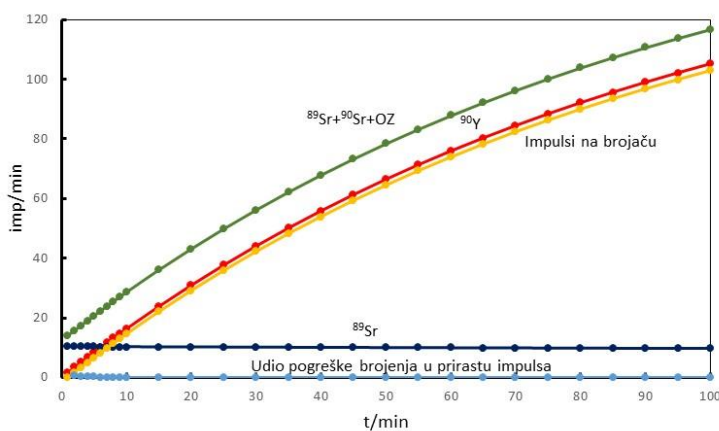


Slika 1. Simulacija raspada Sr-89 i Sr-90 tijekom mjerenja Čerenkovljevim brojenjem na TriCab 3180 scintilacijskom brojaču. Omjer aktivnosti Sr-89/Sr-90 2:1. Mjereno u dušičnoj kiselini.



Slika 2. Simulacija raspada Sr-89 i Sr-90 tijekom mjerenja Čerenkovljevим бројњем на TriCab 3180 scintilaciјском бројачу. Omjer aktivnosti Sr-89/Sr-90 10:1. Mjereno u dušičnoj kiselini.

Da bi se izbjegla ta nesigurnost potrebno je osigurati minimalan vremenski interval između dva brojenja koji će osigurati pouzdano određivanje. Iz slika 1 i 2 može se vidjeti da je vremenski interval od 48 sati dovoljan da se osigura dovoljna razlika u broju impulsa za pouzdano određivanje. Naime, ako se pretpostavi da prirast itrija mora biti barem dvostruko veći od pogreške brojenja ukupnih impulsa nakon 48 sati pogreška brojenja će biti dovoljno mala da omogućí pouzdano određivanje Sr-90 čak u slučaju da je aktivnost Sr-89 deset puta veća od aktivnosti Sr-90. Međutim, kada je aktivnost Sr-90 veća od aktivnosti Sr-89 tada aktivnost Sr-89 nije moguće odrediti odmah već se mora pratiti prirast Y-90 tijekom vremena te računati aktivnost Sr-89. Na slici 3 prikazan je takav slučaj. Primjenivši prethodno opisan princip da pogreška brojenja mora biti manja od prirasta impulsa na brojaču uočljivo je da se aktivnost Sr-90 može odrediti u vrlo kratkom intervalu a zatim i aktivnost Sr-89. Potrebno je napomenuti da osnovno zračenje (OZ) može također utjecati na točnost određivanja (pogotovo niskih aktivnosti) ako instrument na kojem se mjeri ima visok i/ili nestabilan nivo osnovnog zračenja. U tom slučaju će fluktuacije osnovnog zračenja biti pripisane impulsima uzorka što u konačnici dovodi do pogreške u određivanju. Stoga je kod ovakvog načina određivanja potrebno raspolagati s instrumentom stabilnog osnovnog zračenja.



Slika 3. Simulacija raspada Sr-89 i Sr-90 tijekom mjerenja Čerenkovljevим бројњем на TriCab 3180 scintilaciјском бројачу. Omjer aktivnosti Sr-89/Sr-90 1:10. Mjereno u dušičnoj kiselini.

Ovakav način određivanja svakodnevno se koristi u radu našeg laboratorija te se kontinuirano testira određivanjem oba izotopa u interkomparacijskim uzorcima.

Tabela 2. Rezultati određivanja Sr-89 i Sr-90 Čerenkovljevim brojenjem u Eckert&Zieglerovim i ERA interkomparacijskim uzorcima

ERA	Izotop	Naš rezultat [Bq/L]	ERA rezultat [Bq/L]	Z-vrijednost	Interval prihvatljivosti [Bq/L]
R-116	Sr-89	2.44	2.45	-0.062	1.89 – 2.87
	Sr-90	1.50	1.46	0.243	1.11 – 1.81
R-121	Sr-89	2.18	2.19	-0.039	1.54 – 2.83
	Sr-90	1.60	1.51	0.566	1.22 – 1.81
R-127	Sr-89	2.27	2.08	1.200	1.76 – 2.40
	Sr-90	1.04	1.03	0.158	0.88 – 1.18
E&Z		Naš rezultat [Bq/L]	E&Z rezultat [Bq/L]	Omjer E&Z/N	Rezolucija/ocjena
2014	Sr-89	310800	296000	1.05	17/Agreement
	Sr-90	33411	29637	1.13	12.5/Agreement
2017	Sr-89	290000	296000	0.98	17/ Agreement
	Sr-90	28400	34000	0.83	12.5/ Agreement

U Tabeli 2 prikazani su rezultati određivanja u interkomparacijskim uzorcima organizatora Eckert&Ziegler i ERA Waters. Iz rezultata proizlazi da se oba izotopa mogu pouzdano i točno odrediti opisanom metodologijom tj. ovakav način određivanja može se koristiti za njihovo simultano određivanje u širokom rasponu aktivnosti. Na kraju treba napomenuti da u slučaju određivanja niskih aktivnosti kao što su primjerice interkomparacijski uzorci ERA stabilnost osnovnog zračenja instrumenta je od ključne važnosti za točnost određivanja. Naime ako pogledamo razinu aktivnosti Sr-89 i Sr-90 za npr. R-116 i to prevedemo u stvarne impulse koje registrira instrument vidjet ćemo da za aktivnosti od 2.45 Bq/L Sr-89 i 1.46 Bq/L Sr-90 nakon 5 sati od odjeljivanja Y-90 instrument bi trebao registrirati 9.4 imp/min Sr-89 i 0.46 imp/min Sr-90 (računato za 200 mL uzorka, 100% iskorištenja i efikasnosti detekcije 0.34 za Sr-89 i 0.53 Y-90). Prirast Y-90 nakon 48 sati trebao bi biti 4.2 imp/min a pad aktivnosti Sr-89 0.3 imp/min. S obzirom da niti jedan instrument paralelno s uzorkom ne registrira osnovno zračenje nego se ono mjeri odvojeno, bitno je da fluktuacija bude što manja kako bi se izbjegla pogreška u određivanju. Ako se pogleda interval prihvatljivosti (1.11-1.81 Bq/l) i preračuna na imp/min za dane uvjete to iznosi 3.18-5.18 imp/min za dani primjer. Tipično osnovno zračenje za TriCarb 3180 za Čerenkovljevo brojanje je cca 2 imp/min tako da je za 100 minuta brojenja samo statistička pogreška brojenja za osnovno zračenje cca 7% ($\sqrt{200}/200$) ili ± 0.25 imp/min za donju granicu intervala prihvatljivosti. Stoga se lako može vidjeti da uz dodatne fluktuacije zbog primjerice okolišnih uvjeta to značajno može doprinjeti ozbiljnoj pogrešci u određivanju. Utjecaj fluktuacije osnovnog zračenja može se izbjeći povećanjem količine uzorka uzetog za analizu (veća aktivnost), ali to komplicira postupak kemijske izolacije i često dovodi do gubitka tj. smanjenja iskorištenja koje u realnim uvjetima nikad nije 100%, nego se kreće najčešće između 50-90% ovisno o kompleksnosti uzorka iz kojeg se stroncij izolira [3].

Zaključak

Opisan je način simultanog određivanja Sr-89 i Sr-90 Čerenkovljevim brojenjem. Iz rezultata proizlazi da se oba izotopa mogu pouzdano i točno odrediti opisanom metodologijom. Pokazano je kako se Sr-89 i Sr-90 mogu odrediti s prihvatljivom točnošću čak i kada je omjer aktivnosti Sr-89/Sr-90 veći od 10:1. Korištenjem tekućinskog scintilacijskog brojača niske razine osnovnog zračenja moguće je odrediti Sr-89 i Sr-90 u širokom rasponu koncentracija aktivnosti unutar 2-3 dana a točnost određivanja Sr-89 i Sr-90 ovisi o određivanju razlike između vremena odvajanja itrija te vremenskog intervala između dva brojenja.

Literatura

- [1] Grahek Ž, Karanović G, Nodilo M, Rapid determination of $^{89,90}\text{Sr}$ in wide range of activity concentration by combination of yttrium, strontium separation and Cherenkov counting, *Journal Radioanal. Nucl. Chem.*, 292 (2012) 555-569.
- [2] I. Cocha, S. Neufuss, Ž. Grahek, M. Němec, M. Nodilo, J. John, The effect of counting conditions on pure beta emitter determination by Cherenkov counting, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 310 (2016) 891-903.
- [3] Ž. Grahek, S. Dulanská, G. Karanović, I. Cocha, I. Tucaković, M. Nodilo, L. Mátel, Comparison of different methodologies for the ^{90}Sr determination in environmental samples, *J. Environ. Radioact.* 181 (2018) 18-31.

DETERMINATION OF SR-89 AND SR-90 BY CHERENKOV COUNTINGIvana СОНА¹, Gorana KARANOVIĆ¹, Željko GRAHEK¹1) *Ruđer Bošković Institute, Bijenička c. 54, Zagreb, Croatia***Corresponding author:** *Željko GRAHEK, zgrahek@irb.hr***ABSTRACT**

Determination of Sr-89/Sr-90 is complicated and time-consuming due to their radiochemical properties. Both isotopes are pure beta emitters, and their quantitative determination requires the chemical isolation of pure strontium from the sample and the isolation of Y-90 after achieving radiochemical equilibrium, so that the entire procedure takes at least sixteen days. For this reason, the development of new determination procedures focuses on reducing the determination time. It can be achieved with application of detection methods that enable their simultaneous determination. One of the simplest methods of simultaneous determination of Sr-89 and Sr-90 is the method of Cherenkov counting on a scintillation counter. The method is based on the fact that the mean energy of the emitted electrons of Sr-90 is lower than the threshold necessary to achieve Cherenkov radiation and the fact that the energies of the emitted electrons of Y-90 and Sr-89 produce Cherenkov radiation. Therefore the methodology for rapid determination of Sr-89 and Sr-90 is described. The methodology is based on simultaneous isolation of strontium from samples and quantitative determination of Sr-89 and Sr-90 by Cherenkov counting within three days. The methodology of quantitative determination by Cherenkov counting is based on the successive counting of Sr-89 and Y-90 in the sample over time. With this principle, Sr-89 and Sr-90 can be determined with acceptable accuracy when the Sr-89/Sr-90 activity ratio is greater than 10:1. The paper shows that using a low levels liquid scintillation counter Sr-89 and Sr-90 can be determined in a wide range of activity concentrations. The accuracy of Sr-89 and Sr-90 determination depends on determining the difference between the yttrium separation time and the time interval between the two counts.

ANALIZA FLUKSA I DOZNIH EFEKATA TERESTRJALNOG SKYSHINE ZRAČENJA

Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹, Jan HANSMAN¹, Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹, Sofija FORKAPIĆ¹, Kristina DEMIRHAN¹

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

Autor za korespondenciju: Danijel VELIMIROVIĆ, danijel.velimirovic@df.uns.ac.rs

SAŽETAK

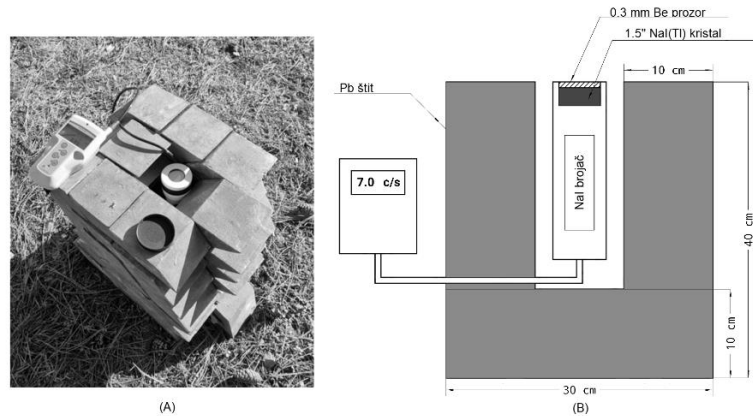
Prisustvo i odgovarajuća distribucija prirodno prisutnih radionuklida U-238, Th-232 (i njihovih potomaka) kao i K-40 u zemljištu i stenama dovodi do emisije gama zračenja u gornju hemisferu-atmosferu. Kao posledica interakcije gama zračenja sa gasovima u atmosferi dolazi do rasejanja unazad (air backscattering). Ovaj proces u potpunosti modifikuje energijsku distribuciju inicijalnog emisionog spektra iz zemljišta, dovodeći do emisije rasejanog zračenja iz atmosfere ka površini Zemlje (terestrijalno skyshine zračenje). Ova distribucija rasejanog atmosferskog zračenja ima kontinualni karakter sa maksimumom na oko 65 keV. Fluks rasejanog zračenja iz gornje hemisfere meren je eksperimentalno i simuliran primenom Geant4 softvera. Takođe, simulacionim pristupom analizirana je apsorbovana doza za stanovništvo na nivou mora kao rezultat skyshine radijacije.

Uvod

Efekti i značaj niskoenergijskog fotonskog zračenja, ispod 100 keV, koje dolazi iz gornje hemisfere (atmosfere) retko su izučavani. Spektralna distribucija niskoenergijskih atmosferskih fotona ima kontinualan karakter i sastoji se od dve komponente koje se međusobno preklapaju. Prva komponenta nastaje kao rezultat sekundarnih i tercijarnih procesa interakcije kosmičkog zračenja sa Zemljinom atmosferom, dok druga komponenta ima poreklo u gama zračenja emitovanom naviše iz Zemljine kore, a koje se potom rasejava u atmosferi unazad ka podlozi (*skyshine* zračenje). Obe komponente imaju maksimum na oko 60 keV - 80 keV i teško ih je eksperimentalno razlučiti. U tom smislu, radi izučavanja *skyshine* zračenja neophno je koristiti Monte Karlo simulacije, obzirom da u ovom slučaju nema dorinosa događaja kosmičkog porekla.

Eksperimentalno merenje skyshine fluksa

U cilju merenja fluksa gama zračenja rasejanog unazad u vazduhu, korišćen je detekcioni sistem prikazan na Sl. 1. Ovaj sistem je baziran na scintilacionom NaI brojaču (dijametar kristala 38 mm, debljina 3 mm) sa berilijumskim prozorom debljine 0.2 mm, detekcione površine od 8 cm², dizajniranim za detekciju niskoenergijskog fotonskog zračenja (5 keV - 200 keV). Detektor je zaštićen od gama zračenja sa donje strane i lateralno pomoću 10 cm debelog olovnog štita, omogućavajući na taj način detekciju fotona koji dolaze samo iz gornje hemisfere (atmosfere). Srednja brzina brojanja registrovana detektorom u ovoj eksperimentalnoj postavci iznosila je 7.0 c/s. Uzimajući u obzir da je fonska brzina brojanja detektora kompletno zatvorenog u olovni štiti (sa Pb slojem odozgo) iznosila 1.5 c/s, sledi da je neto brzina brojanja iz gornje hemisfere 5.5 c/s [1].



Slika 1. Eksperimentalna postavka korišćena za merenje fluksa gama zračenja rasejanog unazad iz atmosphere (A) i šematski prikaz postavke (B)

Koristeći ovaj eksperimentalni podatak, kao i efikasnost detekcije od 72% u energijskom regionu od 30 keV – 350 keV, dobijenu iz Monte Karlo simulacija, određen je eksperimentalni fluks fotona iz gornje hemisfere:

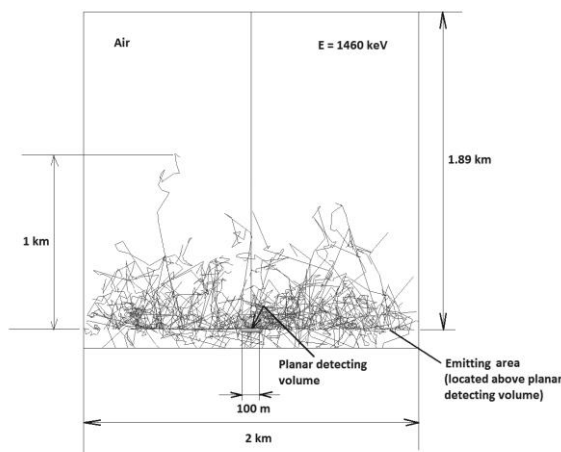
$$(1) \quad \Phi_{exp} = \frac{R_{net}}{\varepsilon S_{prozor}} = \frac{5.5 \text{ s}^{-1}}{0.72 \cdot 8 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2} \approx 9600 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$$

Imajući u vidu da ovom merenom fluksu doprinos daje terestrijalno *skyshine* zračenje, kao i niskoenergijski fotonski fluks kosmičkog porekla (koji približno iznosi $3000 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [2], sledi da je neto vrednost terestrijalnog *skyshine* fluksa:

$$(2) \quad \Phi_{exp-skyshine} = \Phi_{exp} - \Phi_{cosmic} \approx 9600 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1} - 3000 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1} \approx 6600 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$$

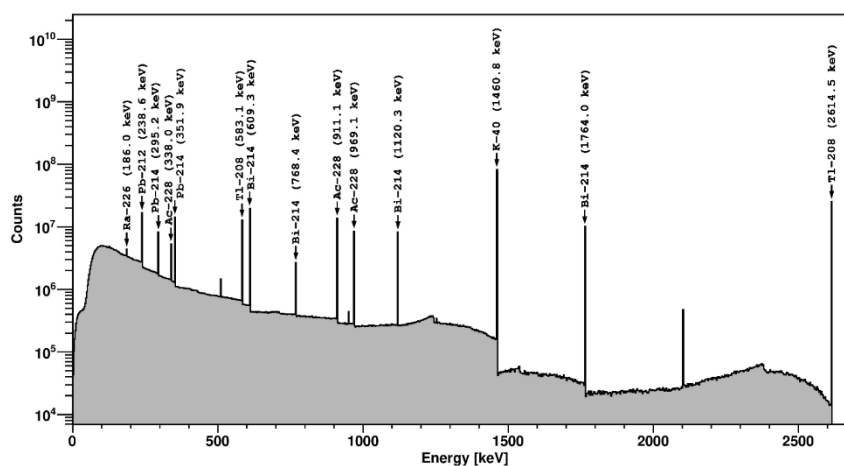
Simulacije skyshine zračenja

Da bi se simulacionim pristupom odredio fluks terestrijalnog *skyshine* zračenja, načinjena je simulaciona postavka primenom Geant4 [3] simulacionog paketa, data na sl. 2. Naime, fotonska raspodela koja je odgovarala sledećim koncentracijama Ra-226, Th-232 i K-40: 30 Bq/kg, 30 Bq/kg, 395 Bq/kg [4], respektivno, generisana je iz diska prečnika 2 km ka gornjoj hemisferi ispunjenoj vazduhom, dok je detekciona površina imala planarnu geometriju prečnika 100 m, radi prikupljanja statistički značajne raspodele unazad rasejanog zračenja. Generisana fotonska raspodela je uključivala posledice emisije iz sloja zemljišta (interakcije i transport fotona kroz matricu debljine 25 cm i gustine 1160 kg/m^3 , odgovarajućeg elementarnog sastava: O – 47%, Si – 35%, Al – 8%, Fe – 3.9%, C – 2.1%, Ca – 1.4%, K – 1.3%, Na – 0.6%, Mg – 0.6%, N – 0.1% [5]). Detekciona površina je bila postavljena neposredno ispod transparentne emisije površine kako u zoni detekcije ne bi dolazilo do perturbacije spektra usled ekraniranja dela emisije površine.



Slika 2. Prikaz simulacione postavke sa emisioom površinom u vidu diska prečnika 2 km i detekcione površine prečnika 100 m.

Emisioni spektar ka gornjoj hemisferi prikazan je na slici 3.



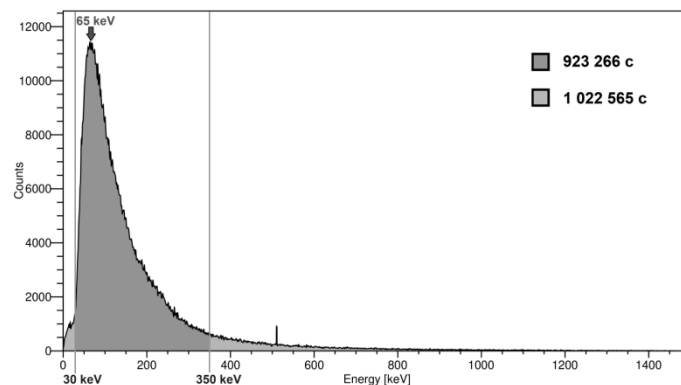
Slika 3. Simulirani gama spektar iz matrice zemljišta debljine 25 cm

Za potrebe simulacije generisano je $5 \cdot 10^8$ raspada Ra-226, kao i Th-232, uz $6.6 \cdot 10^9$ raspada K-40. Budući da su ukupne aktivnosti diska zemljišta iz koga je posmatrana emisija gama zračenja, uzimajući u obzir ranije navedene koncentracije aktivnosti, iznosile $2.7 \cdot 10^{10}$ Bq Ra-226, $2.7 \cdot 10^{10}$ Th-232 i $3.6 \cdot 10^{11}$ Bq K-40 sledi da je odgovarajuće ekvivalentno vreme emisije zračenja iznosilo:

$$(3) \quad \Delta t^* = \frac{\Delta N_{Ra226}}{A_{Ra226}} = \frac{\Delta N_{Th232}}{A_{Th232}} = \frac{\Delta N_{K40}}{A_{K40}} = \frac{5 \cdot 10^8}{2.7 \times 10^{10} \text{ Bq}} = \frac{5 \cdot 10^8}{2.7 \times 10^{10} \text{ Bq}} = \frac{6.6 \times 10^9}{3.6 \times 10^{11} \text{ Bq}} = 0.0185 \text{ s}$$

Na bazi emisionog spektra (Slika 3) i odgovarajućeg ekvivalentnog vremena, dobijen je fluks emitovanog zračenja iz matrice zemljišta u gornju hemisferu od $13900 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [1].

Sa druge strane, spektar simuliranog detektovanog zračenja nakon rasejanja unazad na vazduhu, prikazan je na slici 4. Integralni odbroj u spektralnom regionu 30 keV – 350 keV iznosio je ~ 923000 .



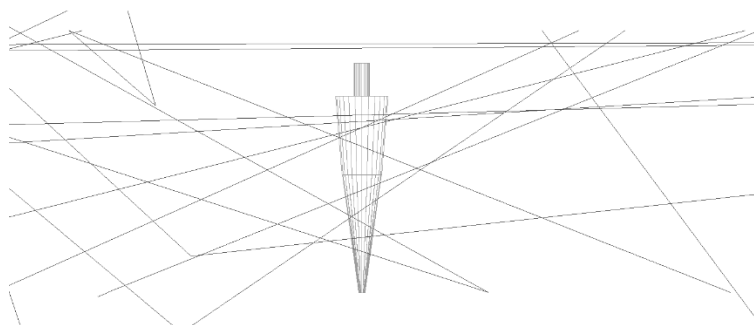
Slika 4. Spektar unazad rasejanog gama zračenja dobijen iz simulacija

Na osnovu podataka o ekvivalentnom vremenu, broja detektovanih događaja, kao i veličini detekcione površine, izračunata je vrednost simuliranog *skyshine* fluksa:

$$(4) \quad \Phi_{sim-skyshine} = \frac{N_{detected}}{S \Delta t^*} \approx 6400 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$$

Apsorbovana doza *skyshine* zračenja

Apsorbovana doza usled *skyshine* zračenja određivana je u simulacijama za vodeni fantom mase 86 kg, slika 5.

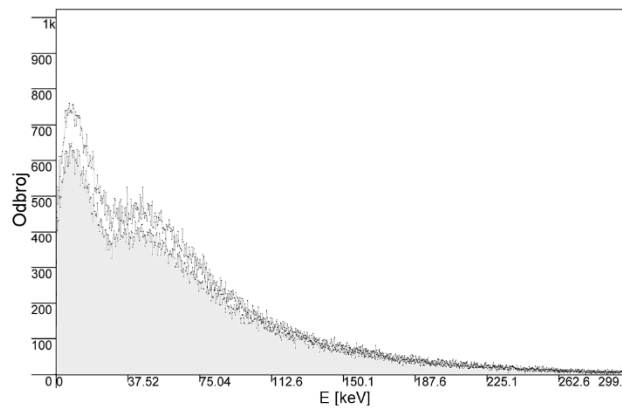


Slika 5. Prikaz vodenog fantoma korišćenog u simulacijama

Simulacija emisije *skyshine* zračenja čija raspodela odgovara distribuciji sa slike 4 izvršena je iz diska poluprečnika 50 m ka donjoj hemisferi u kojoj je lociran vodeni fantom, uzimajući u obzir fluks *skyshine* radijacije od $\sim 6400 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Emitovano je ukupno 10^9 fotona, što je odgovaralo ekvivalentnom vremenu od 20 s. Na osnovu deponovane energije u vodenom fantomu i ekvivalentnog vremena izračunata je brzina apsorbovane doze usled *skyshine* zračenja koja iznosi 0.03 mGy/god. Ova vrednost odgovara brzini ekvivalentne doze od 0.029 mSv/god.

Ukoliko se izvrši simulacija apsorbovane doze od strane gama zračenja koje dolazi neposredno iz podloge (matrica zemljišta debljine 25 cm), pri fluksu od $13900 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ proizilazi da je odgovarajuća brzina doze 0.35 mGy/god.

Efekat albeda u odnosu na *skyshine* zračenje usled prisustva zemljane podloge dovodi do izvesnog povećanja brzine doze: 0.033 mGy/god. Spektar deponovane energije u fantomu usled *skyshine* zračenja, bez efekta albeda (donji spektar) i sa ovim efektom (gornji spektar) vidljiv je na slici 6.



Slika 6. Spektar deponovane energije u fantomu usled *skyshine* zračenja (gornji spektar sa albedom od podloge, donji spektar bez albeda od podloge)

Diskusija i zaključak

Rezultati eksperimentalnih merenja i simulacija primenom softvera Geant4 pokazuju relativno visoku vrednost *skyshine* fluksa od oko $6400 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, sa maksimumom kontinualne distribucije na oko 65 keV. Iako ova vrednost fluksa premašuje fluks kosmičkih miona oko 40 puta, odgovarajuća godišnja ekvivalentna doza za stanovnika iznosi samo oko 0.03 mSv, što je 3% od ekvivalentne godišnje doze za stanovništvo. Simulacioni rezultati pokazuju da maksimum deponovane energije *skyshine* zračenja u vodenom fantomu leži na oko 10 keV. Ipak budući da se radi o niskoenergijskom fotonском zračenju potrebno je dodatno analizirati dozno opterećenje površinskih delova tela (kože) usled prisustva ovog jonizujućeg zračenja. U poređenju sa fluksom gama zračenja iz podloge, koji iznosi $13900 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, *skyshine* fluks je relativno slabiji za oko 50%, pri čemu je spektralna distribucija *skyshine* zračenja potpuno drugačija od emisionog gama spektra iz matrice zemljišta, koji sadrži diskretne energije i komptonски rasejano zračenje. Stoga ovaj emisioni spektar iz zemljišta dovodi do 10 puta veće ekvivalentne godišnje doze za stanovništvo (0.35 mSv/god).

Reference

- [1] Velimirovic et al., Terrestrial-origin skyshine at sea level, *Radiation Physics and Chemistry*, Volume 204, Article number 110716, 2023.
- [2] Mrdja, D., et al., Study of radiation dose induced by cosmic-ray origin low-energy gamma rays and electrons near sea level. *J. Atmos. Sol. Terr. Phys.* 123, 55–62, 2015.
- [3] Geant4 Agostinelli, S., et al. (Geant4 Collaboration), Geant4 – a simulation toolkit. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 506, 250–303, 2003.
- [4] Bikit, I., et al., Radioactivity of the soil in Vojvodina (northern province of Serbia and Montenegro). *J. Environ. Radioact.* 78, 11–19, 2005.
- [5] Mrdja, D., et al., Improvement of in-situ gamma spectrometry methods by Monte-Carlo simulations. *J. Environ. Radioact.* 188, 23–29, 2018.

ANALYSIS OF FLUX AND DOSE EFFECTS OF TERRESTRIAL SKYSHINE RADIATION

Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹, Jan HANSMAN¹, Jovana KNEŽEVIĆ RADIĆ¹, Sofija FORKAPIĆ¹, Kristina DEMIRHAN¹

1) *University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics, Novi Sad, Serbia,*

ABSTRACT

The presence and appropriate distribution of naturally occurring radionuclides U-238, Th-232 (and their progenies) as well as K-40 in soil and rocks leads to the emission of gamma radiation into the upper hemisphere (atmosphere). Air-backscattering occurs as a result of the interaction of gamma radiation with gases in the atmosphere. This process completely modifies the energy distribution of the initial emission spectrum from the soil, leading to the emission of scattered radiation from the atmosphere to the Earth's surface (terrestrial skyshine radiation). This distribution of scattered atmospheric radiation has a continuous character with a maximum at about 65 keV. The flux of scattered radiation from the upper hemisphere was measured experimentally and simulated using Geant4 software. In addition, the absorbed dose for the population at sea level as a result of skyshine radiation was analyzed using a simulation approach.

**KALIBRACIJA LSC DETEKTORA U OKVIRU RAZVOJA METODE ZA
MERENJE URANIJUMA U PODZEMNIM VODAMA**

Jovana NIKOLOV¹, Srđan VUKOVIĆ², Andrej VRANIČAR¹, Ivana STOJKOVIĆ³,
Nataša TODOROVIĆ¹, Snežana PAPOVIĆ⁴, Milan VRANEŠ⁴

- 1) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Departman za fiziku, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*
- 2) *Tehnološki fakultet Zvornik, Univerzitet u Istočnom Sarajevu, Karakaj 34a, Zvornik*
- 3) *Fakultet tehničkih nauka, Univerzitet u Novom Sadu, Trg Dositeja Obradovića 6, Novi Sad*
- 4) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Departman za hemiju, Trg Dositeja Obradovića 3, Novi Sad*

Autor za korespondenciju: Jovana NIKOLOV, jovana.nikolov@df.uns.ac.rs

SAŽETAK

U radu su prikazani preliminarni rezultati razvoja metode tečne scintilacione spektrometrije (LSC) za merenje koncentracije uranijuma u podzemnim vodama. U okviru validacije metode u Laboratoriji za nuklearnu fiziku, PMF Novi Sad, primenjena je modifikovana standardna ISO 13169:2018(E) metoda. Umesto preporučenog scintilacionog koktela korišćen je drugi dvofazni scintilacioni koktel, a isto tako je i umesto preporučenog standardnog referentnog materijala korišćen drugi koji je dostupan u laboratoriji. Priprema kalibracionih uzoraka i blank uzoraka je obavljena prema preporukama iz standardne metode. U ovom radu biće prikazani rezultati podešavanja PSA (Pulse Shape Analysis) parametra koji pomaže u razdvajanju alfa od beta događaja i predstavlja prvi korak prilikom kalibracije LSC detektora.

Uvod

Podzemne vode predstavljaju veće zalihe sveže vode od površinskih voda i predstavljaju ključni element u velikom broju geoloških i fizičko-hemijskih procesa. Raznovrsnost geološke strukture zemljišta na našoj planeti, utiče da svako nalazište ima geološki uticaj na karakteristike vode. Hemijski sastav je pod uticajem sastava stena, uslova toka i vremena boravka u podzemlju. Kontrolisan je hemijskim i fizičkim procesima kao što su adsorpcija-desorpcija, kompleksiranje i taloženje - rastvaranje [1].

Uranijum je prisutan i u hidrosferi i atmosferi, i u svim živim organizmima. Površinske i podzemne vode su glavni transporteri uranijuma koji usmeravaju njegovu migraciju. Sadržaj uranijuma u podzemnim vodama značajno varira ($5 \cdot 10^{-8}$ – $2,7 \cdot 10^{-3}$ g/l) na šta utiče karakter soli i gasova rastvorenih u vodi. Kisele vode i vode bogate kiseonikom prevodiće nerastvorni U^{4+} jon u rastvorni U^{6+} i time povećati migracionu sposobnost uranijuma, ali i njegovu koncentraciju u toj vodi. Obrnuto, metan rastvoren u vodi uz prisustvo SO_4^{2-} jona ili samo odsustvo kiseonika izazvaće redukciju U^{6+} do U^{4+} jona čija su jedinjenja slabo rastvorna i lako se hidrolizuju. Na česticama gline ta uranijumova jedinjenja će se adsorbovati, u fosfatima izomorfno zameniti kalcijum, a u prisustvu hidrata istaložiti [2].

Uranijum je nađen i u živim organizmima pa se stoga smatra i bioelementom. Ispitivanja su pokazala da je nakupljanje uranijuma različito po organima, što uranijumu daje dodatni značaj sa aspekta zdravstvene zaštite i zaštite životne sredine. Zaključno, razmatrajući rasprostranjenost radioaktivnih elemenata u prirodi, može se reći da je koncentracija

prirodnih radionuklida u Zemljinoj kori veoma mala. Jedan od najrasprostranjenijih među njima je uranijum. Koncentracija uranijuma u Zemljinoj kori se kreće u opsegu od 1.1 – 10 ppm [3]. Ova vrednost odgovara koncentraciji aktivnosti u opsegu od 13.5 – 123 Bq/kg za U-238. Raspodela uranijuma u geosferi je difuzna.

Većinu svojih potreba za vodosnabdevanje pijaćom vodom Srbija zadovoljava iz sopstvenih podzemnih voda. Kada su u pitanju vode za piće neophodna je hemijska, bakteriološka i radiološka ispravnost. U okviru radiološke karakterizacije podzemnih voda, metoda kojom bi se dopunio spektar mogućih radioloških ispitivanja je svakako i merenje koncentracije uranijuma u podzemnim vodama, a tečni scintilacioni detektor Quantulus 1220 zbog svojih izuzetnih karakteristika pasivne zaštite omogućava merenje čak i izuzetno niskih koncentracija aktivnosti.

Materijali i metode

Najpoželjnija analitička metoda za određivanje uranijuma u podzemnim vodama jeste tečna scintilaciona spektrometrija. LSC tehnike su veoma zastupljene, primenjuju se u biološkim, hemijskim i fizičkim laboratorijama i naukama koje uključuju zaštitu i unapređenje životne sredine. Pogodne su za monitoring niskih radioaktivnosti u čovekovom okruženju, detekciju pojedinačnih događaja raspada u istraživanjima fundamentalne nuklearne fizike, kao i za merenja visokih aktivnosti u istraživanjima, dozimetriji i primeni radioizotopa, sve do kontrole radioaktivnosti u nuklearnoj industriji.

U ovom istraživanju koristili smo tečni scintilacioni detektor Quantulus 1220TM. Niskofonskim tečnim scintilacionim spektrometrom Quantulus 1220TM mogu se ispitivati veoma niski nivoi radioaktivnosti. Njegove glavne odlike su visoka stabilnost i napredno razdvajanje α i β spektra. Zahvaljujući PSA (Pulse Shape Analysis), kolu omogućeno mu je simultano generisanje α/β spektra uzoraka. Pravilno podešavanje PSA diskriminatora osigurava dobijanje tačnih i pouzdanih rezultata [4].

LSC metoda podrazumeva mešanje uzoraka vode sa scintilacionim koktelom i hemikalijom zaduženom za ekstrakciju uranijuma kao što je navedeno u ISO 13169:2018(E) [5].

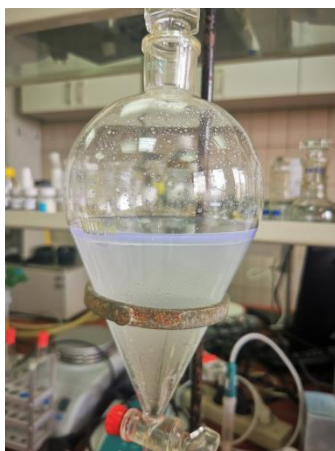
U ovom radu napravljena je modifikacija preporučene metode ISO 13169:2018(E). Umesto preporučenog scintilacionog koktela Betaplate korišćen je Mineral Oil, oba proizvođača Perkin Elmer. Isto tako umesto upotrebe dva različita standard referentna materijala, alfa i beta emitera, u ovom slučaju korišćen je samo standard prirodnog uranijuma koji ima i alfa i beta emisije i on je u jednom slučaju posmatran kao alfa emitter a u drugom kao beta emitter. Pripremljen je uzorak sa novim scintilacionim koktelom, standardom prirodnog uranijuma i supstancom koja poboljšava proces ekstrakcije. Izuzetno je značajna upotreba dvofaznog scintilacionog koktela jer je prvobitna zapremina vode od koje se kreće 500 ml. Dodatkom ekstraktora celokupna količina uranijuma biva izvučena iz vode i zarobljena u gušćoj fazi, a to je zapravo deo gde se nalazi scintilacioni koktel. Nakon ekstrakcije uzorak je snimljen na Quantulus 1220TM detektoru. Na identičan način pripremljen je i blank uzorak. Da bi se dodatno redukovali pozadinski efekti podešen je analizator oblika impulsa PSA. Snimanjem krivih $\tau = f(\text{PSA})$ napravljeno je podešavanje PSA parametara. Faktori τ_α i τ_β računaju se za svaki PSA nivo po formuli [6]:

$$(1) \quad \tau_\alpha [\%] = \frac{\alpha \text{ odbroj u } \beta \text{ prozoru}}{\text{ukupni } \alpha \text{ odbroj}} \cdot 100$$

$$(2) \quad \tau_\beta [\%] = \frac{\beta \text{ odbroj u } \alpha \text{ prozoru}}{\text{ukupni } \beta \text{ odbroj}} \cdot 100$$

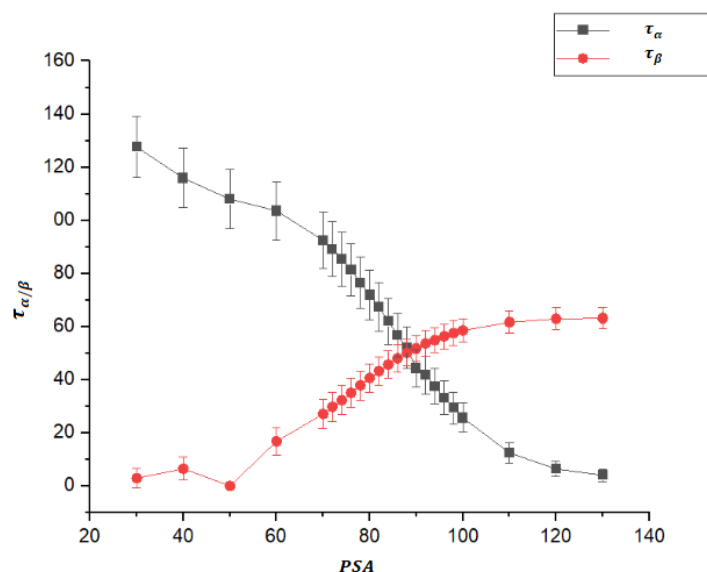
Rezultati i diskusija

Na slici 1 prikazan je postupak pripreme uzorka – ekstrakcija uranijuma iz uzorka vode i separacija sa dvofaznim scintilacionim kotelom.



Slika 1: Postupak pripreme uzorka.

Da bi se omogućilo razlikovanje alfa od beta događaja u spektru, i dodatno smanjili pozadinski efekti, potrebno je pre početka merenja na detektoru podesiti analizator oblika impulsa PSA snimanjem krivih $\tau = f(PSA)$. Na osnovu dobijenih rezultata dobili smo vredost koju je potrebno podesiti prilikom daljih merenja sa scintilacionim koktelom Mineral Oil, što je prikazano na slici 2.



Slika 2: Podešavanje PSA parametra za merenja ukupne α/β aktivnosti (merenjem referentnih standarda uranijuma)

Procedura kalibracije podrazumeva snimanje spektara standarda, u ovom slučaju korišten je standard prirodnog uranijuma sertifikovane aktivnosti od Češkog metrološkog instituta koji je u tečnom stanju. Pripremljen je uzorak prema procedure iz ISO 13169:2018(E) [5] metode uz dodatak male zapremine stadarda kako bi se dobila nominalna aktivnost uzorka od 100 Bq u vialu od 20 ml. Ovako pripremljen uzorak meren je na različitim vrednostima PSA, rezultati su grafički prikazani na slici 1. Izabrani interval ispitivanja za PSA parameter je bio

od 30 do 130 sa korakom 10. Optimalna PSA vrednost dobijena u ovom slučaju sa upotrebom dvofaznog scintilacionog koktela Mineral Oil proizvođača Perkin Elmer, dobija se iz preseka PSA krivih i u našem slušaju iznosi 89. Dalja istraživanja podrazumevaju pripremu seta kalibracionih standarda koji će se meriti upravo na ovoj eksperimentalno određenoj PSA vrednosti, kako bi se odredila efikasnost detekcije i naravno merenje realnih uzoraka podzemnih voda.

Zaključak

Tehnika tečne scintilacione detekcije se pokazala kao izuzetno dobra i pogodna za merenje uranijuma u vodi [7]. Modifikacija i razvoj nove metode predstavlja korak ka boljem razumevanju i kontroli radioaktivne kontaminacije podzemnih voda. Precizna detekcija i merenje koncentracije uranijuma omogućavaju pravovremeno reagovanje i zaštitu životne sredine i zdravlja ljudi. Ova metoda ima potencijal da postane standardna praksa u monitoringu vodnih resursa i zaštiti životne sredine. Dobijenim inicijalnim rezultatima u postupku kalibracije pokazano je da se modifikovana metoda [5] može koristiti za merenje uranijuma u podzemnim vodama. Dalja istraživanja će dati preciznije podatke. U planu je tetiranje i drugih dvofaznih scintilacionih koktela koji bi mogli da pokažu sličan odgovor.

Literatura

- [1] S. Đurđević, M. Komatina, Z. Nikić, S. Međedović, S. Komatina Petrović, H. Anđelski, S. Stanojević, N. Bogunović, Ž. Kerkez. Pijaće mineralne vode razvojna šansa Srbije, Print Company, Beograd, 2011, 22-37
- [2] S. Forkapić, Istraživanje gasovitih radioaktivnih produkata uranijuma i torijuma, doktorska disertacija, Novi Sad, 2013
- [3] O.S. Andreeva, V.I. Badjin, A.N. Kornilov. Natural and depleted uranium. Atomizdat, Moscow 1979 (in Russian).
- [4] Instrument Manual, Wallac 1220 Quantulus – Ultra Low Level Liquid Scintillation Spectrometer, 2005, PerkinElmer, 1220–931–06, Finland
- [5] INTERNATIONAL STANDARD, ISO 13169; Water quality-Uranium-Test method using alpha liquid scintillation counting; Switzerland, ISO 2018.
- [6] I. Stojković, Optimizacija tečnog scintilacionog spektrometra za ispitivanje alfa i beta emitera u vodama, doktorska disertacija, Novi Sad, 2015
- [7] Pereira, A.J.S.C., Pereira, M.D., Neves, L.J.P.F. et al. Evaluation of groundwater quality based on radiological and hydrochemical data from two uraniferous regions of Western Iberia: Nisa (Portugal) and Ciudad Rodrigo (Spain). Environ Earth Sci 73, 2717–2731 (2015). <https://doi.org/10.1007/s12665-014-3500-6>

CALIBRATION OF LSC DETECTOR FOR THE DEVELOPMENT OF METHOD FOR MEASURING URANIUM IN GROUNDWATER

Jovana NIKOLOV¹, Srđan VUKOVIĆ², Andrej VRANIČAR¹, Ivana STOJKOVIĆ³,
Nataša TODOROVIĆ¹, Snežana PAPOVIĆ⁴, Milan VRANEŠ⁴

- 1) *Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*
- 2) *Faculty of Technology Zvornik, University of East Sarajevo, Karakaj 34a, Zvornik*
- 3) *Faculty of Technical Sciences, University of Novi Sad, Trg Dositeja Obradovića 6, Novi Sad*
- 4) *Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Department of Chemistry, Trg Dositeja Obradovića 3, Novi Sad*

ABSTRACT

This paper presents the preliminary results of the development of the liquid scintillation spectrometry (LSC) method for measuring the concentration of uranium in groundwater samples. Within the validation of the method in the Nuclear Physics Laboratory, Faculty of Sciences Novi Sad, a modified standard ISO 13169:2018(E) method was applied. Different two-phase scintillation cocktail was used instead of the recommended scintillation cocktail, and different standard reference material that is available in the laboratory was used instead of the recommended one. The preparation of calibration samples and blank samples was carried out according to the recommendations of the standard method. This paper will present the results of setting the PSA (Pulse Shape Analysis) parameter, which helps in separating alpha from beta events and is the first step in calibrating the LSC detector.

**ЗАШТИТА ОД ЗРАЧЕЊА
У МЕДИЦИНИ**

**RADIATION PROTECTION
IN MEDICINE**

ANALIZA RASEJANJA ZRAČENJA OD ZAUSTAVLJAČA SNOPA KOD LINEARNIH MEDICINSKIH AKCELERATORA

Milomir MILAKOVIĆ^{1,2}, Nevena IGNJATOV², Nikola JOVANČEVIĆ², Miodrag KRMAR²

- 1) *IMC Banja Luka - Member of the Affidea Group, Ivana Franje Jukića 9, 78000 Banja Luka, RS-BiH*
- 2) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Departman za fiziku, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*

Autor za korespondenciju: Milomir MILAKOVIĆ, milomir.milakovic@affidea.com

SAŽETAK

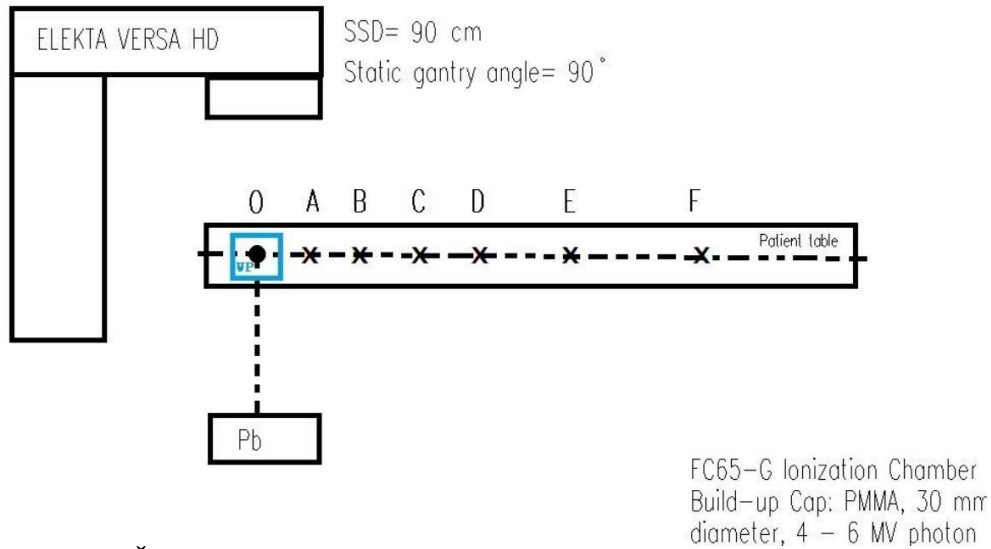
U ovom radu su izvršena preliminarna eksperimentalna istraživanja uticaja rasejanog zračenja od zaustavljača snopa na ukupnu dozu zračenja koju može primiti pacijent tokom terapijskog tretmana. Utvrđeno je da povećanje doze može iznositi oko 10% i dati su predlozi za buduća merenja.

Uvod

Linearni medicinski akceleratori koji se koriste za terapijske svrhe mogu biti opremljeni sa zaustavljačem snopa (beam stoper) koji vrši apsorpciju zračenja nakon terapije. Postojanje zaustavljača snopa omogućava lakše projektovanje mera zaštite prilikom korišćenja ovih uređaja [1, 2, 3]. Međutim, problem koji može nastati jeste da rasejano zračenje od zaustavljača snopa ima uticaj na ukupnu dozu koju primi pacijent. U ovom radu je analiziran uticaj zaustavljača snopa na prisustvo zračenja u okolini linearnih medicinskih akceleratora. To je uređeno putem eksperimentalnih merenja i ovde će biti predstavljeni preliminarni rezultati koji će biti osnova budućih istraživanja.

Merenje

Eksperimentalna merenja su izvršena u Kliničkom centru Vojvodine u Novom Sadu. Korišćen je medicinski linearni akcelerator koji ne poseduje zaustavljač snopa. Da bi se mogao ispitati uticaj rasejanog zračenja od zaustavljača snopa na dozu zračenja koju može primiti pacijent korišćeni su olovni blokovi dimenzija 5 cm*10 cm*10 cm koji su bili postavljeni u snop zračenja simulirajući zaustavljač snopa. Četiri ovakva bloka su bila postavljena na rastojanju od 90 cm od terapijskog stola (slike 1 i 2). Merenja su vršena sa i bez olovnih blokova da bi se mogao utvrditi eventualni doprinos rasejanog zračenja. Doza zračenja je merena duž terapijskog stola u tačkama kako je prikazano na slici 1. Rastojanje mernih tačaka od izocentra je: A=50 cm, B=60 cm, C=80 cm, D=100 cm, E=130 cm i F=180 cm. Za mjerenje doze zračenja korišćena je jonizaciona komora FC65-G sa bildup kapom prečnika 30 mm. Merenja su sprovedena pri dve maksimalne energije zračenja od 6 MeV i 10 MeV. Pri svakom merenju je emitovano 500 monitorskih jedinica (MU). Ovakva postavka eksperimenta omogućava određivanje mogućeg uticaja rasejanog zračenja na apsorbovanu dozu zračenja, takođe omogućava analizu da li i u kolikoj meri rasejanje zavisi od energije zračenja i kakva je prostorna raspodela ovog uticaja.



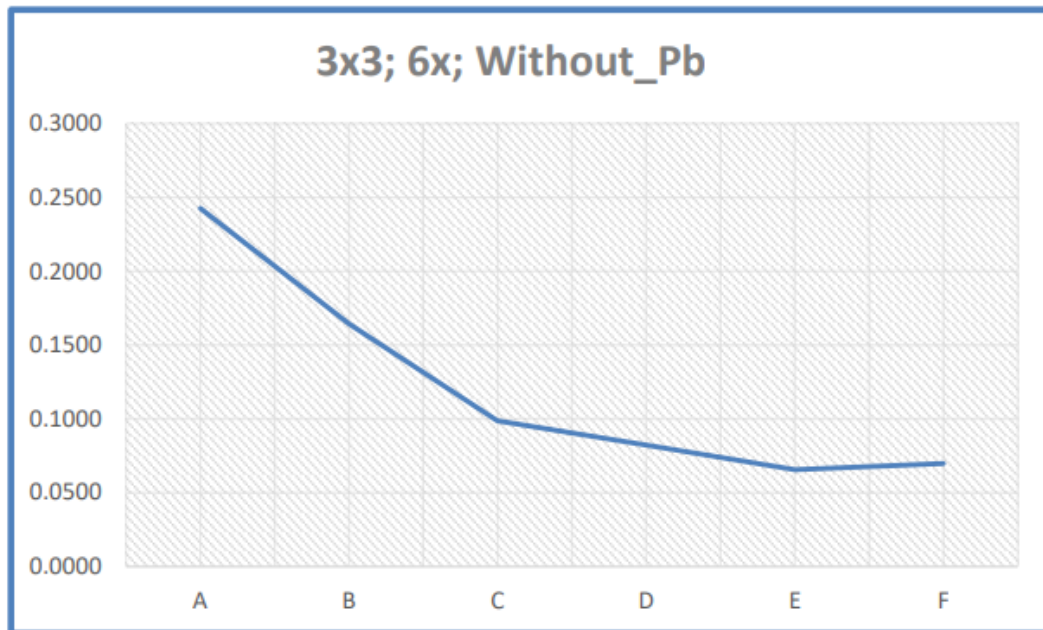
Slika 1: Šema eksperimentalne postavke sa oblezenim mernim tačkama.



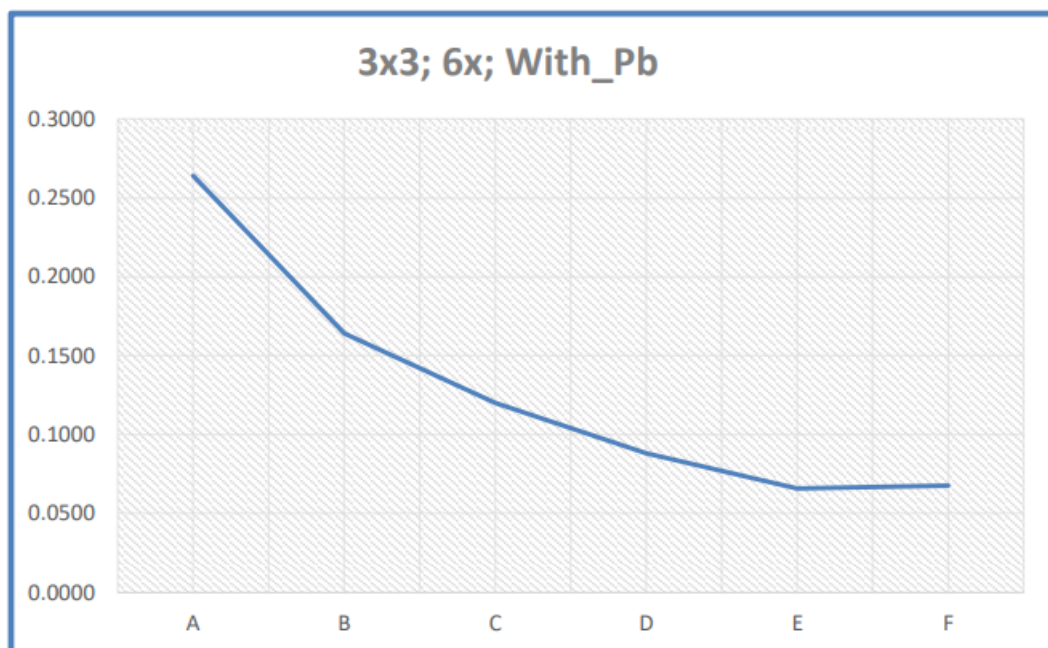
Slika 2: Eksperimentalna postavka.

Rezultati

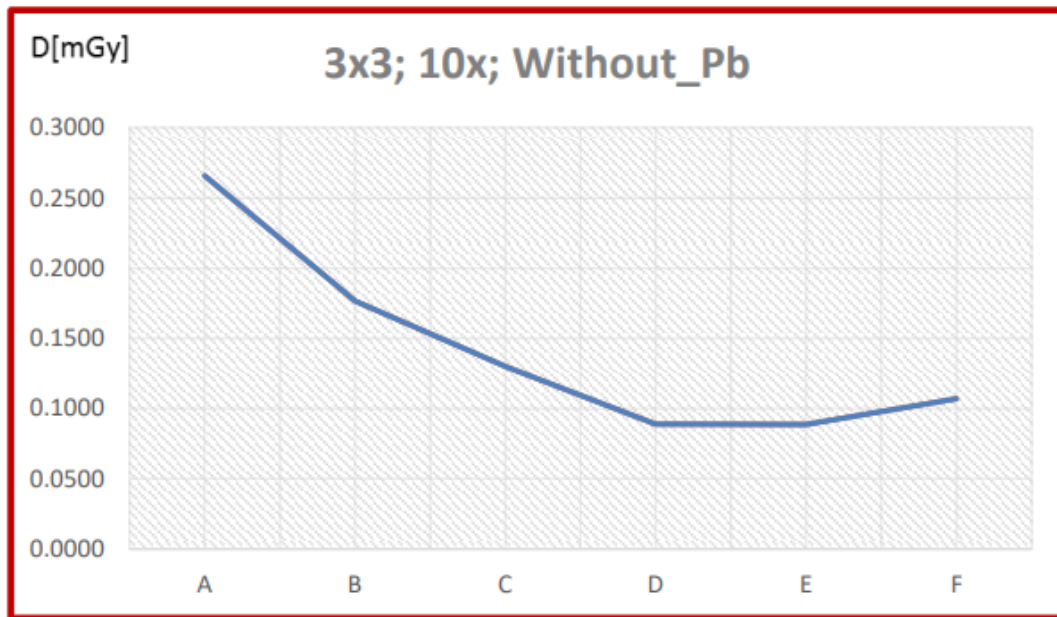
Rezultati dozimetrijskih merenja na raziličim rastojanjima od izocentra, sa i bez olovnih blokova u snopu zračenja, kao i pri dve različite energije zračenja su prikazani na slikama 3, 4, 5 i 6. Odnosi izmerenih doza sa i bez olovnih blokova u polju zračenja prikazani su na slikama 7 i 8.



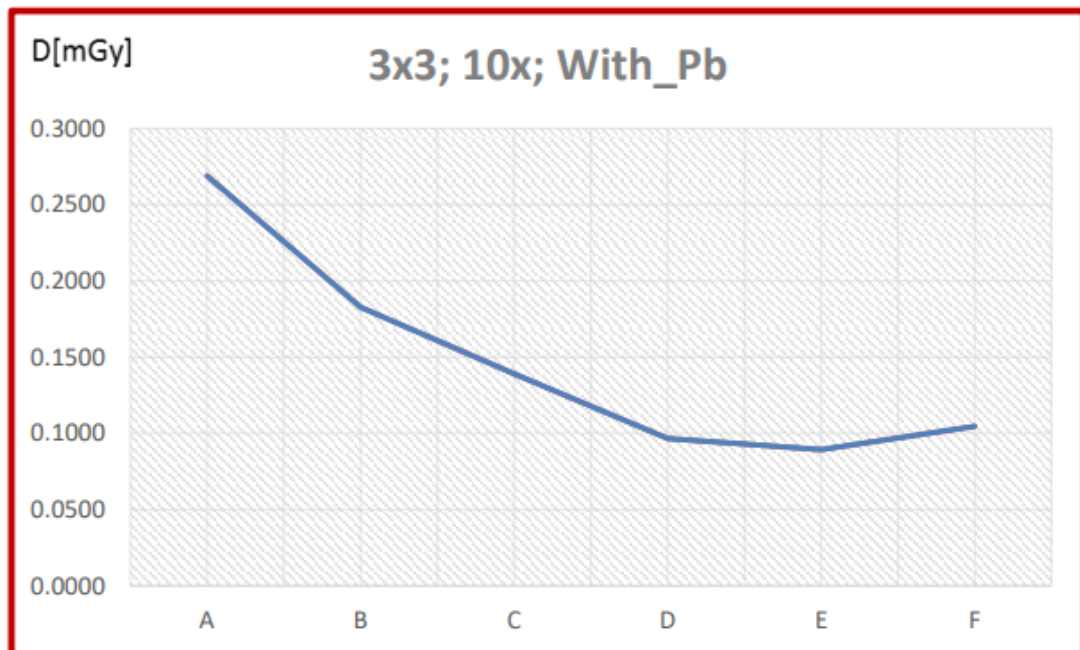
Slika 3: Izmerene doze, D [mGy] na različitim mernim tačkama, pri energiji zračenja od 6 MeV i veličini polja od 3*3cm bez olovnih blokova.



Slika 4: Izmerene doze, D [mGy] na različitim mernim tačkama, pri energiji zračenja od 6 MeV i veličini polja od 3*3 cm sa olovnim blokova.

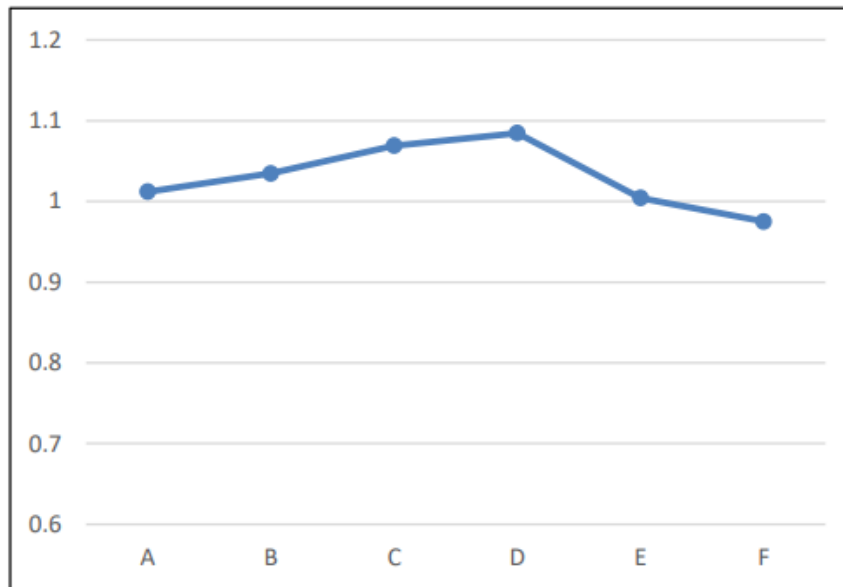


Slika 5: Izmerene doze, D [mGy] na različitim mernim tačkama, pri energiji zračenja od 10 MeV i veličini polja od 3*3 cm bez olovnih blokova.



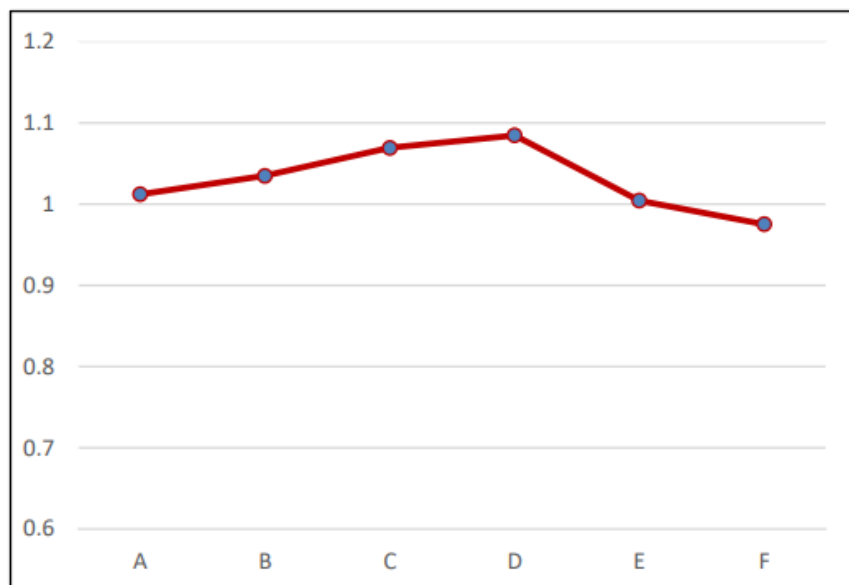
Slika 6: Izmerene doze, D [mGy] na različitim mernim tačkama, pri energiji zračenja od 10 MeV i veličini polja od 3*3 cm sa olovnim blokova.

6 MeV



Slika 7: Odnos imerenih doza, sa i bez olovnih blokova na razilicitim mernim tacnama, pri energiji zracenja od 6 MeV i velicini polja od 3*3cm.

10 MeV



Slika 8: Odnos imerenih doza, R, sa i bez olvonih blokova na razilicitim mernim tacnama, pri energiji zracenja od 6 MeV i velicini polja od 3*3cm.

Diskusija i zaključak

Dobijeni rezultati u ovom radu pokazuju da je i sa i bez prisustva olovnih blokova u snopu zracenja izmerena doza zracenja duž terapijskog stola opada sa rastojanjem od izocentra. Međutim, u slučaju prisustva olovnih blokova izmerene su doze zracenja koje su do 10% veće (slike 7 i 8). Zapaža se da se najveća razlika uočava pri rastojanjima od oko 50 cm od

izocentra. Ovaj trend može biti objašnjen prostornom raspodelom rasejanog zračenja. Odnos izmerenih doza zračenja ima približno isti trend za energije zračenja od 6 MeV i 10 MeV. U oba slučaja se uočava ista razlika izmerenih doza sa i bez olovnih blokova, s tim što je pri energijama od 10 MeV izmerena neznatno veća doza. Ovde prezentovani preliminarni rezultati upućuju na to da prisustvo zaustavljača snopa može pruzrokovati povećanje doze primljene od strane pacijenta. Da bi se tačnije utvrdio ovaj doprinos potrebno je izvršiti novu seriju merenja koja će imati precizniju geometrijsku postavku i potrebno je uporediti ove efekte za različite vrste akceleratora i različite geomtrije terapijskih prostorija. Takođe, u ovoj analizi mogu pomoći i Monte Karlo simulacije što će biti deo budućih istraživanja.

Literatura

- [1] Kirstie Caravani, Rebecca Murry, Brendan Healy, Characterisation of in-room leakage and scattered radiation for the Varian Halcyon linear accelerator, Physical and Engineering Sciences in Medicine <https://doi.org/10.1007/s13246-021-01084-1>. 2021
- [2] Kry SF, Bednarz B, Howell RM, Dauer L, Followill D, Klein E, Paganetti H, Wang B, Wu CS, George XX (2017) AAPM TG 158: measurement and calculation of doses outside the treated volume from external-beam radiation therapy. Med Phys 44:e391–e429. <https://doi.org/10.1002/mp.12462>
- [3] Martin M, McGinley P (2020) Shielding techniques for radiation oncology facilities, 3rd edn. Medical Physics Publishing, Madison, WI

ANALYSIS OF RADIATION SCATTERING FROM BEAM STOPPERS AT LINEAR MEDICAL ACCELERATORS

Milomir MILAKOVIĆ^{1,2}, Nevena IGNJATOV², Nikola JOVANČEVIĆ², Miodrag KRMAR²

- 1) *IMC Banja Luka - Member of the Affidea Group, Ivana Franje Jukića 9, 78000 Banja Luka, RS-BiH*
- 2) *Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*

ABSTRACT

In this work, a preliminary experimental study of the influence of scattered radiation from beam stoppers on the total radiation dose that can be received by the patient was performed. It was found that the dose increase could be about 10 % and suggestions for future measurements were given.

UNAPREĐENJE ZAŠTITE MEDICINSKOG OSOBLJA KOJE UČESTVUJE U FLUOROSKOPSKI VOĐENIM INTERVENTNIM PROCEDURAMA UVOĐENJEM POLUAUTOMATSKOG SISTEMA UPRAVLJANJA VISEĆIM ZAŠTITNIM ЕКРАНOM

Vojislav ANTIĆ¹

1) *Univerzitetски клинички центар Србије, Pasterova 2, Beograd*

Autor za korespondenciju: Vojislav ANTIĆ¹, antic.vojislav@gmail.com

SAŽETAK

Medicinsko osoblje koje učestvuje u fluoroskopski vođenim interventnim procedurama je najizloženije jonizujućem zračenju, imajući u vidu kompletan spektar primene jonizujućih zračenja u medicinske svrhe. Patentirano je u svetu jedinstveno rešenje za poluautomatsko upravljanje visećim zaštitnim ekranom, koje će u značajnoj meri da redukuje njihovo izlaganje (inicijalnim merenjima sa prototipskim sistemom na fantomu je dokumentovano umanjenje, u veoma širokom opsegu, u zavisnosti od pozicije sistema cev-detektor, odnosno od pozicije gde se nalazi izloženi radnik). Osmišljena su dva proizvoda RBP - "Radiation Brainscreen Protector", kompletno rešenje u sinergiji sa novim rendgen aparatima sa C-lukom, odnosno RBI - "Radiation Brainscreen Interface", kojim bi se postojeći rendgen uređaji i odgovarajući zaštitni екрани uvezali u zajednički sistem. Predviđeno je da se екран pozicionira inicijalno ali i tokom intervencije prepozicionira u realnom vremenu, ukoliko dođe do promene radnih uslova (a time i distribucije rasejanog X-zračenja), a na način koji osigurava mehaničku bezbednost pri korišćenju.

Profesionalno izlaganje jonizujućem zračenju u interventnoj radiologiji

Radiodijagnostika jeste in-vivo dijagnostička nuklearna medicina, medicinska dijagnostička radiologija koja koristi jonizujuće zračenje i stomatološka radiologija [1]. Sa aspekta izlaganja pacijenata jonizujućem zračenju, dominantni doprinos je pri kompjuterizovanoj tomografiji, dok je profesionalno izlaganje najizrazitije u interventnoj radiologiji. Dok za medicinsko izlaganje granice doza teoretski ne postoje, u praksi se ostvaruju kroz sve rafiniraniju primenu načela zaštite od zračenja - opravdanosti (principijalne, opšte i individualne) i optimizacije (u procesu traganja za kompromisom između kvaliteta dijagnostičke informacije koju pruža radiološka slika i doze koju primi pacijent). Indirektno, pogotovo u domenu interventnih radioloških procedura, izlaganje pacijenata utiče na izlaganje izloženih radnika, za koje je zakonski predviđeno maksimalno 20 mSv efektivne doze na godišnjem nivou, usrednjeno na pet godina (u toku jedne godine dozvoljeno je 50 mSv efektivne/ekvivalentne doze). Fundamentalni principi zaštite od zračenja su vreme (što manje izlaganja), rastojanje (što veće od izvora zračenja) i adekvatne barijere (u skladu sa tipom i snagom izvora). Set operativnih mera - lokalna pravila i procedure, koje se odnose na zaštitu i pacijenata i izloženih radnika, uključuje generalna, inicijalna, specifična i napredna pravila, i zadatak je profesionalaca u zaštiti od jonizujućih zračenja da te mere i promovišu i unapređuju. Od ključnog značaja za smanjenje izlaganja osoblja je planiranje izlaganja (pacijent, karakteristike uređaja, delikatnost intervencije), da prijemnik slike bude što bliže pozicioniran telu pacijenta a istovremeno distanca rendgenske cevi bude pažljivo podešena, korišćenje što uže kolimacije, korišćenje automatske kontrole ekspozicije, korišćenje i pravilno pozicioniranje strukturalne zaštite, ograničavanje broja osoba prilikom radiografske ekspozicije odnosno fluoroskopije, korišćenje ličnih zaštitnih sredstava

(zaštitnih kecelja, okovratnika i naočara), obučenosť u vezi ponašanja/kretanja tokom rada u zoni jonizujućih zračenja i rotacija kadrova, bazirana na stepenu izloženosti.

Strukturalna zaštita od jonizujućih zračenja u interventnoj radiologiji

Strukturalne barijere za zaštitu od jonizujućih zračenja se mogu podeliti na primarne, čiji je cilj da slabe jonizujuće zračenje koje direktno dolazi iz rendenske cevi. i sekundarne – strukture koje slabe cureće i rasejano zračenje. Osobe u sali gde se vrše interventne procedure, vrata, prozori, staklo na komandnoj konzoli, ne smeju biti primarne barijere. Kada se ovo usvoji, dolazi se do toga da je glavni izvor izloženosti osoblja zračenje rasejano od pacijenta. U cilju zaštite od jonizujućih zračenja, uvođenje strukturalnih barijera štiti kompletnu interventnu ekipu (neke manje, neke više), pa predstavljaju (kao sekundarne barijere) tzv. kolektivna zaštitna sredstva. U ovu svrhu koriste se zaštitne olovne zavesice, koje se montiraju sa strane i ispod pacijent stola (ova druga primarno štiti od curećeg zračenja), gornja zaštitna ploča koja se takođe montira na pacijent sto i viseći ekran koji ima esencijalni značaj, zato što štiti glavu i gornji deo tela operatera (gde se nalazi najveći broj vitalnih, radiosenzitivnih organa, osim onih u donjem abdomena koje štiti donja zavesica – gonade, debelo crevo, mokraćna bešika i dr.). Ovaj rad je posvećen unapređenju zaštite visećim ekranom.

Stanje tehnike

Olovni providni ekrani se koriste kao zaštita od jonizujućih zračenja više od 100 godina [2]. Razvijeni su, i razvijaju se u kontinuitetu unapređenja u obliku, dimenzijama (dovoljno veliki, a da budu operativni, odnosno da ne remete svojom veličinom klinički rad), unapređenja u mehanizmima pomeranja i rešenjima za zglobne strukture, kao i u završnoj obradi samog olovnog stakla (zaobljene ivice, uglačanost itd.) a i pojavili su se i alterantivni materijali, kao i rešenja sa kombinacijom različitih materijala, sve u cilju povećanja efikasnosti zaštitne barijere. Kao izuzetno značajan pomak je uvođenje zavesice na donjem kraju visećeg ekrana [3], kojim se dodatno zaustavlja rasejano zračenje. Istovremeno, koriste se i dodatni pokretni zaštitni paravani [4], kao i koncepcija kojom se štiti najizloženiji radnik [5] – ali ne i ostali članovi radnog kolektiva. Postoje i pokušaji da se uvede dodatna zaštita koji štiti izvor zračenja [6], ali oni imaju više nedostataka, kao što su kolizije pri kosim projekcijama, nemogućnost implementacije sa savremenim *flat panel* detektorima, uticaj na medicinsku sliku – artefakti i odsustvo vizuelnog kontakta sa pacijentom.

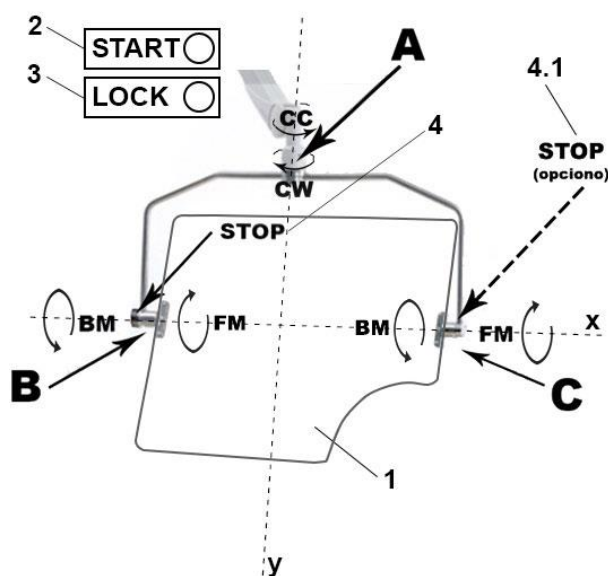
Sa druge strane, uobičajena situacija je da se ekran i dalje manuelno pozicionira i taj položaj se ne menja tokom intervencije, bez obzira da li je eventualna promena uslova (ne postoji komunikacija između ekrana i rendgen aparata) promenila i distribuciju rasejanog zračenja. Logika, proračuni i merenja ukazuju da bi se integracijom rendgen uređaja i ekrana u jedan sistem, odnosno upravljanjem, repozicioniranjem i kontrolom pozicije ekrana, izloženost osoblja u značajnoj meri smanjila.

Najbliži principu na kome je zasnovano unapređeno rešenje koje je predmet ovog rada, a to je primena automatskog upravljanja u cilju smanjenja (štetnog) uticaja jonizujućih zračenja, je sistem za automatsko pozicioniranje detektora u zavisnosti od pozicije rendgenske cevi, takođe u cilju sprečavanja primarnog zračenja i ograničenja izlaganja rasejanom zračenju [7]. Kod ovog patenta, pomeranje je bazirano na višeosnoj robotskoj ruci. Sa druge strane, ovo rešenje se ne može primeniti na specifične rendgen sisteme koji su namenjeni za fluoroskopijom praćene interventne procedure, za čije izvođenje je neophodan adekvatan radni prostor između tela pacijenta i detektora.

Principijalno rešenje

Polazište ka rešenju je povezivanje rendgen uređaja sa C-lukom i ekrana u jedinstven sistem, na način da je ekran deo uređaja ili da postoji poseban uređaj (ekran sa kontrolnom jedinicom) koji je povezan sa rendgen uređajem preko odgovarajućeg interfejsa.

Jedan od postojećih standardnih tipova ekrana se koristi [8], sa izrezom koji se prilagođava telu pacijenta - za bolje pozicioniranje iznad pacijenta, koji ima potrebne stepene slobode kretanja (sa pokretnim mehanizmima u zglobovima A, B i C, tako da preko pokretnog mehanizma u zglobu A ekran može da se okreće oko y ose - u smeru skazaljke na satu (CW) ili suprotno od smera skazaljke na satu (CC) a preko pokretnih mehanizama u zglobovima B i C ekran može da se pomera gornjom ivicom napred (FM) odnosno donjom ivicom napred (BM)), Slika 1.

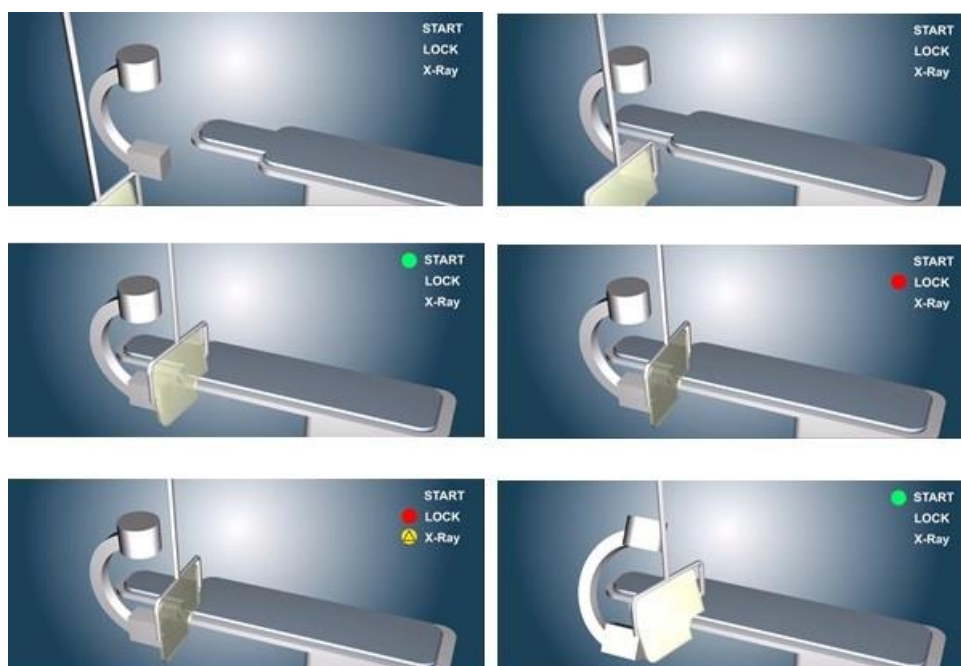


Slika 1: Prikaz pomeranja ekrana lateralno u smeru skazaljke na satu (CW)/suprotno od smera skazaljke na satu (CC), oko y ose, odnosno gornjom ivicom napred (FM)/donjom ivicom napred (BM), oko x ose.

Patentnom prijavom [8] je predviđeno da se kao i do sad ekran postavi manuelno ali se nakon toga zakrivljenjem lateralno u smeru kazaljke na satu/suprotno smeru kazaljke na satu, odnosno gornjom ivicom napred/donjom ivicom napred ekran prepozicionira (koriguje mu se pozicija) automatski, kako bi se obezbedila efikasnija zaštita za medicinsko osoblje – izložene radnike.

Ekran je u kontinuitetu pozicioniran u cilju maksimalne zaštite celokupnog medicinskog osoblja [9]. Da bi se ovo potvrdilo, izvršene su opsežne simulacije i proračuni. Repozicioni deo doprinosa inovaciji zasniva se na sposobnosti sistema da prati sve moguće promene u orijentaciji sistema rendgenska cev - detektor - pacijent sto i pozicioniranju osoblja. Repozicioniranje se može izvesti i u suprotnom smeru i u smeru kazaljke na satu, kao i zakrivljenjem unazad i unapred, da bi se pozicija ekrana prilagodila različitoj geometrijskoj postavci (trenutni položaj visećeg ekrana u prostoru, trenutna angulacija integrisanog sistema koga čine rendgenska cev i detektor u odnosu na centralnu osu pacijent stola, trenutna pozicija pacijent stola, geometrijska šema koja odgovara rasporedu operatera, visine opratera) na bazi informacije o distribuciji rasejanog zračenja za sve referentne tačke i sve angulacije. Svi navedeni parametri značajno utiču na intenzitet rasejanog zračenja. Predviđeno je i da

sistem daje kontrolu operaterima o omogućavanju i onemogućavanju ekspozicije rendgenskim zracima dok se ne izvrši pravilno repozicioniranje. Od početka do kraja, ekranu se dodeljuje odgovarajući indikator statusa (aktivan, pasivan, zaključan). Ako je indikator statusa aktivan ili pasivan, zračenje je onemogućeno, odnosno ekspozicija je moguća samo ako je ekran zaključan. Definisana je, kao apsolutni imperativ, pouzdan način upravljanja ekranom sa tehničkog i kliničkog aspekta, koji garantuje potpunu mehaničku bezbednost pri korišćenju. Koristeći podatke o poziciji i parametrima izloženosti sačuvanim u Izveštaju o strukturi doze zračenja, sa učitanim mapama izmerenih doza rasejanog zračenja, preko relevantnog softvera se sistemski procenjuje doza koju primaju pojedinačni medicinski radnici koji učestvuju u fluoroskopski vođenoj interventnoj proceduri. Ovo je od velike važnosti jer se može koristiti za promenu radnih navika kako bi se prilagodila pravilna distribucija doze među medicinskim osobljem. Može se koristiti i kao efikasan alat ako je potrebno izvršiti retrospektivne proračune doze.



Slika 2. Iseči iz videa [10]. Nakon optimalnog inicijalnog pozicioniranja, predviđeno je relevantno repozicioniranje ekrana, kada se uslovi izlaganja promene, i ne može se vršiti ekspozicija pre nego što se ponovo ne uspostavi nova optimalna pozicija

Projekat

Preliminarna merenja pokazuju 1,5 - 8 puta manju izloženost primenom poluautomatskog sistema upravljanja zaštitnim ekranima [8, 9, 10] u odnosu na zaštitu pasivnim ekranima, u zavisnosti od pozicije izloženih radnika i načina izvođenja intervencije. Pozicija zaštitnog ekrana se prilagođava, pri čemu je onemogućena ekspozicija dok ekran nije u optimalnoj poziciji, Slika 2, rezultirajući kratkoročnom efikasnošću (smanjenju doze po proceduri) i dugoročnom efikasnošću (tako da se godišnja granica doze nikad ne premašuje, omogućavajući svom osoblju da radi tokom cele kalendarske godine). Pored ličnog individualnog očuvanja zdravlja zaposlenih, koristi će imati i medicinski centri, jer će njihovo osoblje biti manje odsutno i zdravije - moći će da rade kontinuirano, sa znatno manjim procentom isključenih zaposlenih zbog profesionalne bolesti.

Proizvođači rendgenskih uređaja imali bi komparativnu prednost na tenderima jer će zaposlenim radnicima da garantuje bolju zaštitu. Proizvođači zaštitne opreme će dobiti priliku da prošire svoj portfolio kroz OEM ("*Original equipment manufacturer*") saradnju.

Definisana su dva tipa proizvoda:

1. "*Radiation Brainscreen Protector*"-RBP
2. "*Radiation Brainscreen Interface*"-RBI.

Interfejs, jer se proizvod može primeniti na svim postojećim rendgen uređajima sa C-lukom, i kompletan proizvod, odmah inicijalno sa novoprodučenim rendgen uređajima sa C-lukom.

Nakon detaljnih merenja i opsežnijih kompjuterskih simulacija, matematički model za repozicioniranje je postepeno zaokružen i to za različite tipove rendgen uređaja sa C-lukom.

Napravljena je mehanička studija i prototip, što je uspešno predstavljeno na Evropskom kongresu medicinske fizike u Dablinu prošle godine, kao i u okviru Srpskog lekarskog društva. Razmatrani su i drugi tehničko-tehnološki aspekti za pravljenje odgovarajućeg interfejsa.

Potpisan je predugovor o saradnji sa firmom Visaris iz Zemuna, vodećim proizvođačem rendgen uređaja na Balkanu, a vode se i pregovori sa vodećim svetskim proizvođačima zaštitne opreme ("*Mavig*", "*MarShield*", "*Ray-Bar Engineering Corp*"), kao i rendgen uređaja sa C-lukom ("*Siemens*", "*General Electric*").

Sledeći koraci su razvoj softvera, prema izvedenom proračunu, i razvoj hardvera od prototipa do primenjivog sistema. To podrazumeva da se nabave komponente, obezbedi laboratorija za ispitivanja, konstruišu kretni sistemi, implementiraju mikrokontroleri, koji će na bazi ulaznih informacija i matematičkog modela indukovati softver da definiše optimalnu poziciju ekrana. Nakon toga idu ispitivanja u kliničkim uslovima, proveru/unapređenje mehaničke sigurnosti i bezbednosti, ispravke, podešavanja. Osim toga, neophodno je i predhodno ugovaranje sa proizvođačima rendgen uređaja sa C-lukom, imajući u vidu da su nam potrebne relevantne informacije o poziciji i radnim parametrima uređaja (koje treba relevantni mikroracunar da obrađuje u nastojanju da izračuna optimalnu poziciju ekrana, inicijalno, i u realnom vremenu). Ceo proces treba da se dokumentuje, a nakon završnih testiranja, treba pojačati domen marketinga i patentne zaštite.

Za sve navedeno u neophodni su i ljudski i finansijski resursi. Izvršena je procena koliko bi proizvod koštao, a da se isplati projekat već za 3-5 godina, imajući u vidu i dosadašnje troškove, patentna prava i dr. Preliminarna procena je da bi cena interfejsa trebala da bude oko 4000 evra (za postojeće uređaje, gde već postoji zaštitni ekran) a kompletnog sistema dvostruko više.

Inovativni koncept se može primeniti i u drugim situacijama izloženosti zaposlenih radnika jonizujućem zračenju, što implicira formiranje stručnog tima okupljenog oko projekta, koji bi razmotrio dalju eksploataciju patenta.

Zaključak

Ovaj rad ima za cilj da motiviše da se postavljaju pitanja, pronalaze rešenja i istrajava na putu praktične komercijalne realizacije. Da se ima hrabrosti, volje i strpljenja da se znanje implementira u praksi. Duboko verujem da je to naša obaveza prema životnim okolnostima koje su nam omogućile da budemo tu gde jesmo.

Literatura

- [1] Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti, "Sl. glasnik RS", br. 95/2018 i 10/2019.
- [2] Rollins, W., Fur ther Precautions in Using X-Light in Diagnosis, Boston Med. Surg. J. 149, 1903.
- [3] Protective Shield OT80001, 2, 3, Mavig
- [4] US 7 391 042B2 "Radiation protection system and method for using the same",2008.
- [5] US 2011/0253914 A1"System and Method for Providing a Suspended Personal Radiation Protection System (Zero Gravity)", 2011.
- [6] US 8,439,564 B2 "Fluoroscopy Operator Protection Device", 2013.
- [7] US 6,554,472 B1"X-ray positioner with lead shield protection device", 2003.
- [8] Antic, V., Postupak pozicioniranja viseceg ekrana za potrebe zaštite od jonizujućih zračenja pri fluoroskopski vođenim interventnim procedurama, P-2020/0462, Zavod za intelektualnu svojinu, 2020.
- [9] Antic V., Semi-automatic positioning of the protective screen based on integration with C-arm X-ray device, Nuclear Technology and radiation protection, Vol. 36, Issue 1, pp. 85-90, 2021.
- [10] Antic V., Simulacija automatskog prepozicioniranja viseceg ekrana za potrebe zaštite od jonizujućih zračenja pri fluoroskopski vođenim interventnim procedurama, A-94/2020, Zavod za intelektualnu svojinu, 2020.

**IMPROVING THE PROTECTION OF MEDICAL STAFF PARTICIPATING
IN FLUOROSCOPICALLY GUIDED INTERVENTIONAL PROCEDURES BY
INTRODUCING A SEMI-AUTOMATIC SYSTEM FOR MANAGING A
CEILING-SUSPENDED PROTECTIVE SCREEN**

Vojislav ANTIĆ¹

1) *University Clinical Center of Serbia, Pasterova 2, Belgrade*

ABSTRACT

Medical personnel participating in fluoroscopy guided intervention procedures are the most exposed to ionizing radiation, bearing in mind the complete spectrum of application of ionizing radiation for medical purposes. A worldwide unique solution for the semi-automatic control of the ceiling-suspended protective screen has been patented, which will significantly reduce their exposure (initial measurements with the prototype system on the phantom documented a reduction, in a very wide range, depending on the position of the tube-detector system, i.e. positions where the exposed worker is located). Two products were designed: RBP - "Radiation Brainscreen Protector", a complete solution in synergy with new C-arm X-ray devices and RBI - "Radiation Brainscreen Interface", which would connect existing C-arm X-ray devices and corresponding protective screens into a common system. It is envisaged that the screen will be positioned initially, but also repositioned during the intervention, in real time, if there is a change in working conditions (and thus the distribution of scattered X-radiation), in a way that ensures mechanical safety during use. As a byproduct, by processing data on the position and exposure parameters, saved in the radiation dose structure report, with loaded maps of measured scattered radiation dose rates, it is possible to, through appropriate software, systemically assess the dose for exposed workers.

**NOVI PRISTUP U KONSTRUKCIJI ZAŠTITE U
BRAHITERAPIJI-BRAHITERAPIJSKA KOMORA**

Jovan STANKOVIĆ¹, Zoran MIRKOV², Kata DABIĆ-STANKOVIĆ^{3,4},
Zorica OBRADOVIĆ⁵, Katarina RAJKOVIĆ⁶

- 1) *Akademija strukovnih studija – Beograd, Odsek visoka zdravstvena škola, Cara Dušana 254, Zemun, jovs60@gmail.com*
- 2) *Institut za medicinu rada i radiološku zaštitu „Dr D. Karajović“, Deligradska 29, Beograd, kiza.mirkov@gmail.com*
- 3) *Medicinski fakultet Banja Luka, Save Mrkalja 14, Banja Luka, BiH*
- 4) *InternationalMedicalCenters – Affidea, Dvanaest beba bb, Banja Luka, BiH, kata.dabic.stankovic@gmail.com*
- 5) *Institut za nuklearne nauke - Vinča, Centar za permanentno obrazovanje, Kosančićev venac 29, Beograd, zoobradovic71@gmail.com*
- 6) *Akademija vaspitačko medicinskih strukovnih studija, Kosančićeva 36, Krusevac, katar1970@yahoo.com*

Autor za korespondenciju: Jovan STANKOVIĆ, jovs60@gmail.com

SAŽETAK

Brahiterapijski uređaji sa izvorima velike aktivnosti (> 370 GBq) postavljaju se u posebne zaštitne bunkere, debljine zaštitnog betonskog zida oko 70 cm, što zahteva opsežnije građevinsko-tehničke radove i povećava cenu izrade (preko 100.000 Eura).

Da bi se prevazišao problem ograničenog prostora unutar odeljenja brahiterapije, predložemo izradu „brahiterapijske komore“ koja bi bila smeštena u aplikacionoj sali minimalne površine 30 m². Komandni pult brahiterapijskog uređaja bi se nalazilo u parapetom/paravanom odvojenom delu sale. Brahiterapijska komora, pojedinačnih dimenzija (V x Š) oko 2 m, u obliku ćiričnog slova P (Π), izrađuje se od olovnih ploča debljine 5 cm. Sa jedne strane komore (ulaz za pacijenta) navlačiće se pokretni/motorizovani paravan (debljine zida: 5 cm; dimenzija V x Š oko 2,3 m). U toku zračenja pacijent i uređaj se nalaze u komori. Cena izrade ove brahiterapijske komore sa pripadajućim elementima ne bi prelazila cenu izrade klasičnog brahiterapijskog bunkera.

Uvod

Brahiterapija (BT) predstavlja vid radioterapije kod koga se zatvoreni radioaktivni izvori zračenja dovode u kontakt ili u neposrednu blizinu mete (tumora). Terapijske doze zračenja u brahiterapiji su u opsegu (5-200) Gy, a mogu se aplikovati u kratkom vremenu (nekoliko minuta) ili u dužem vremenskom intervalu. U savremenoj brahiterapiji visokim brzinama doze (HDR-BT) (*High-dose-Rate*), danas se najčešće koriste izvori Ir-192 velikih aktivnosti (100-370) GBq. Ovi izvori zračenja se u terapijsku poziciju dovode automatski korišćenjem svremenih brahiterapijskih uređaja (Slika 1.).



Slika 1. Najčešće korišćeni uređaji za HDR-BT: 1- Gammamed (Varian), 2- Flexitron (Elekta), 3 - SagiNova (BEBIG Medical GmbH), 4 - MicroSelectron (Elekta), 5 - Bravos (Varian). (slike direktno preuzete sa Web stranica proizvođača)

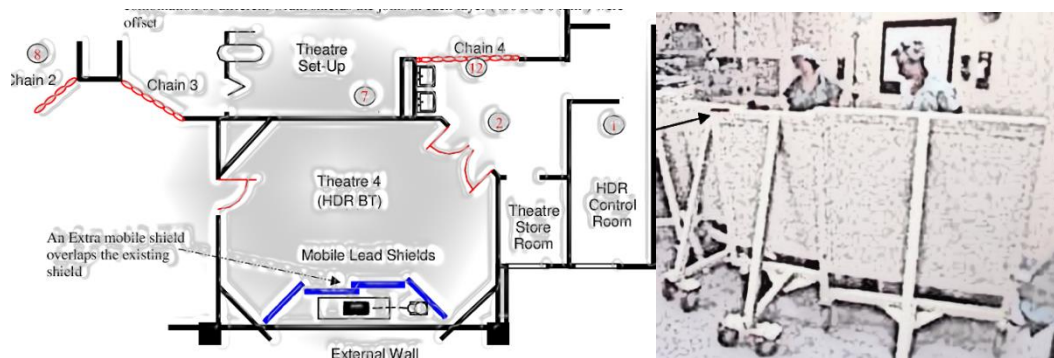
S obzirom da u toku terapije, kod svih uređaja (Slika 1.), radioaktivni izvor zračenja napušta zaštitni kontejner, HDR-BT uređaj i pacijent se postavljaju u posebne zaštitne sobe/bunkere minimalne površine od (15-20) m², u obliku lavirinta i debljine zaštitnih betonskih zidova oko (70-100) cm (Slika 2).



Slika 2. Brahiterapijski bunker sa ostalim prostorijama (predlog IAEA; direktno preuzeto).[1]

U praksi se sreću i slučajevi da brahiterapijski bunker istovremeno služi i kao sala za aplikaciju vodiča izvora, ali u tom slučaju površina prostora mora biti relativno velika (30-50) m² zbog poslova koji se u njoj obavljaju, što poskupljuje konstrukciju zaštitnih zidova i ulaznih vrata u salu. Slično (improvizovano rešenje)¹ sa primenom mobilnih olovniha paravana (debljine oko 2 cm) predstavio je u svojoj Doktorskoj tezi *W. Toye* (Slika 3.) [2]

¹Krajnje improvizovano rešenje, koje se eventualno može primeniti u koliko se tretira 1 pacijent na dan (5 nedeljno).



**Slika 3. Prikaz dodatne zaštite primenom pokretnih olovnih paravana (direktno preuzeto).
(1 – šematski prikaz odeljenja brahiterapije, 2 – fotografija postavke)**

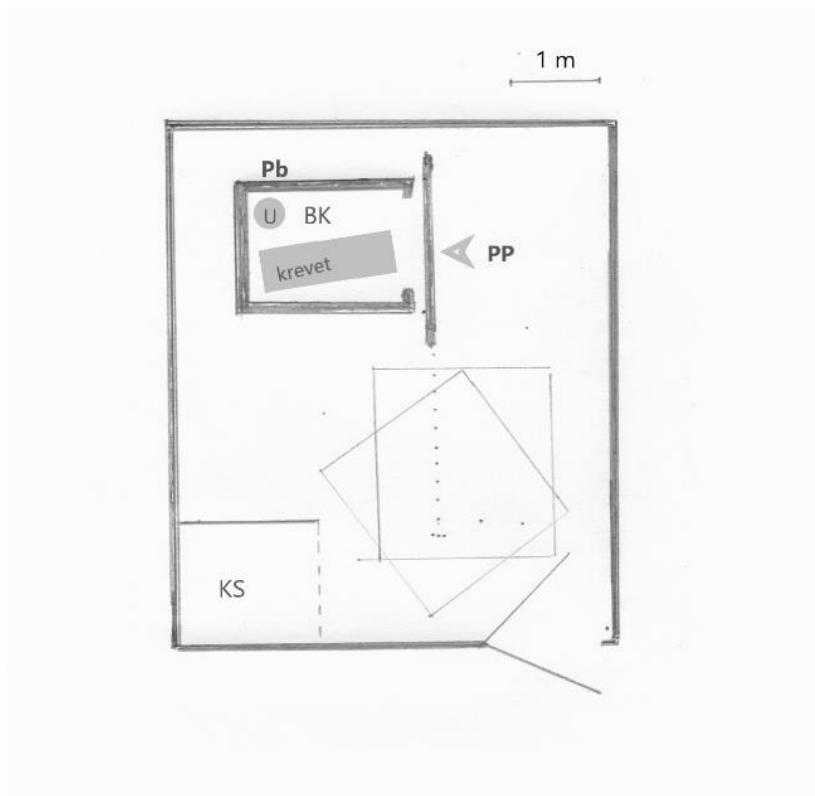
Rešenje da se HDR-BT uređaj smesti u postojeći bunker uređaja za spoljašnju radioterapiju, često se zbog prekida u radu uređaja za spoljašnju radioterapiju i mogućih zakonskih prepreka, pokazalo kao nepraktično.

Nije redak slučaj da se planira i proširenje postojećih kapaciteta/usluga u radioterapijskim centrima uvođenjem HDR-BT. Naknadna izgradnja/ugradnja brahiterapijskog bunkera, pored iznalaženja adekvatnog prostora u postojećem okruženju, zahteva sprovođenje opsežnijih građevinsko-tehničkih radova i remeti obavljanje redovnih aktivnosti u okviru radioterapijskog centra. Pored brahiterapijskog bunkera neophodno je obezbediti prostor za komandnu sobu.

Da bi se prevazišli ovi problemi, predlažemo izradu „brahiterapijske komore“ koja bi bila smeštena u prostor aplikacione sale, minimalne površine od 30 m², a koja bi obezbedila adekvatnu zaštitu od jonizujućeg zračenja (Slika 4.).

Metoda/tehničko rešenje

Brahiterapijska komora bi bila izrađena od olova (ploče/cigle) i smeštena u poziciju koja je najudaljenija od ulaza u aplikacionu salu. Komora se postavlja tako da obezbedi prolaz od minimalno 70 cm između zida prostorije i zida komore u svim pravcima, osim kod ulaza u komoru gde je neophodno obezbediti minimalno 2 m, radi nesmetanog transporta pacijenta (na terapijskom stolu/kreветu) iz aplikacione sale u komoru. Komandni pult uređaja bi se nalazio u parapetom/paravanom odvojenom delu sale u najudaljenijoj poziciji od brahiterapijske komore (Slika 4.).



Slika 4. Šematski prikaz položaja brahiterapijske komore i komandnog pulta u okviru aplikacione sale-jedno od mogućih rešenja. (BK-brahiterapijska komora, PP- pokretni paravan, U-brahiterapijski uređaj, KS-komandna soba)

Aplikaciona sala bi se mogla koristiti bez ikakvih ograničenja po osnovu zaštite od jonizujućih zračenja, osim u toku samog ozračivanja, kada bi se u sali nalazio samo strukovni medicinski radiolog/radijacionionkolog (brahiterapeut)/radiološki fizičar u poziciji komandnog pulta. U toku zračenja unutrašnjost brahiterapijske komore bi predstavljala kontrolisanu zonu, a aplikaciona sala nadgledanu zonu. U hodnicima i prostorijama oko aplikacione sale u toku ozračivanja mogu se naći lica iz kategorije stanovništva, jer bi godišnji ekvivalent efektivne doze u tom prostoru bio manji od 0,3 mSv za stanovništvo. Znaci upozorenja na prisustvo zračenja bi se postavili samo na stranice komore i ulazni paravan/vrata komore.

Brahiterapijska komora, dimenzija (V x Š x D) oko (2 x 1,5 x 2) m u obliku ćiričnog slova P (П), izrađuje (Slika 3) se od olovnih ploča/cigli debljine 5 cm.² Sa strane ulaza za pacijenta navlačiće se pokretni/motorizovani paravan (debljine zida: 5 cm; dimenzija V x Š približno (2,3 x 1,8) m.

U toku zračenja pacijent i uređaj se nalaze u komori, a ulazni paravan/vrata komore postavljen u poziciju „zatvoren“ (Slika 2.).³

²Odeljenje radioterapije se nalazi u prizemlju/suterenu zgrade tako da se ne razmatra zaštita u pravcu poda. U većini slučajeva neophodno je štiti i pozicije ka plafonu, jer se na spratu iznad komore mogu nalaziti radne prostorije u kojima bi se mogli naći pojedinci iz stanovništva.

³Po pravilu ulazna vrata komore su u poziciji „zatvoren“ osim za vreme transporta pacijenta iz aplikacione sale u komoru.

Proračun debljine zaštitnih barijera brahiterapijske komore je zasnovan na teorijskim osnovama apsorpcije zračenja pri prolazu kroz materiju (jedn. 1.). Proračun debljine zaštitnog paravana (d) (jedn. 2.) vršenje korišćenjem iterativnog postupka za određivanje faktora nagomilavanja (B) kao funkcije debljine zaštite [2]. Vrednosti za masene apsorpcione koeficijente $(\mu/\rho)_t$ i faktor nagomilavanja B uzete su iz literature [3,4].

$$(1) \quad I(d) = I_0 \cdot B \cdot e^{-\mu d}$$

$$(2) \quad d = (\mu/\rho)_t^{-1} \cdot \rho^{-1} \cdot \ln(W \cdot U \cdot T \cdot B \cdot f \cdot H^{-1} \cdot r^{-2})$$

gde su:

I_0 - intenzitet zračenja/doza u referentnoj tački bez paravana

$I(d)$ – intenzitet zračenja/doza u referentnoj tački iza paravana

d – debljina barijere (cm)

μ - linearni apsorpcioni koeficijent (cm^{-1})

B – faktor nagomilavanja

$(\mu/\rho)_t$ – maseni apsorpcioni koeficijent (cm^2/g)

ρ – gustina materijala paravana (g/cm^3)

W – nedeljno radno opterećenje ($\text{mSv m}^2/\text{nedelja}$)

U – faktor korišćenja (usmerenost zračnog snopa/polja)

T – vremenski faktor (upotreba okolnog prostora)

f – faktor sigurnosti (minimalna odstupanja u kvalitetu materijala i/ili tehničkoj izradi)

H – granična efektivna doza (mSv)

r – rastojanje do kontrolne tačke (m)

Proračun debljine zaštitne barijere (debljine zida brahiterapijske komore) izvršen je za maksimalno 45 pacijenata/nedeljno (9 pac./dnevno) sa prosečnom terapijskom dozom od 7 Gy po pacijentu, na udaljenosti od izvora u pacijentu ne većoj od 10 cm. Odatle nedeljno-radno-dozno opterećenje bi iznosilo maksimalno $W = 315 \text{ Gy}/10 \text{ cm}^2 \cdot \text{nedelja}$, tj. na rastojanju od 1 m (aproksimativno od spoljašnje ivice zida komore) iznosila bi $W = 3,15 \text{ Gy}/\text{m}^2 \cdot \text{nedelja}$ tj. $3150 \text{ mSv}/\text{m}^2 \cdot \text{nedelja}$.⁴ Faktor usmerenosti zračnog snopa (U) jednak je 1, jer je reč o tačkastom izotropnom izvoru zračenja, dok je u najrigoroznijem slučaju vremenski faktor korišćenja okolnog radnog prostora van aplikacione sale $T = 1$. Faktor sigurnosti proračuna (f) je podešen na vrednost 2. Maseni apsorpcioni koeficijent za gama zračenje energije oko 350 keV (srednja energija gama zračenja izotopa Ir-192) $(\mu/\rho)_t$ procenjen je na $0,25 \text{ cm}^2/\text{g}$. Pri proračunu korišćeni su uslovi za godišnju efektivnu dozu (H) za okolinu (stanovništvo) od $0,3 \text{ mSv}/\text{god}$ dok za izložene radnike ($6 \text{ mSv}/\text{god}$) nije vršen proračun, zbog koncepcije izrade instalacije.

Izračunati faktori nagomilavanja posle I, II i III iteracije su bili $B_I = 1$, $B_{II} = 2,4$ i $B_{III} = 2,5$ a odgovarajuće/izračunate debljine zida brahiterapijske komore (d) su 4 cm, 4,3 cm i 4,3 cm.

⁴S obzirom da je reč o gama zračenju energija oko 350, radijaciono težinski faktor/faktor kvaliteta je 1.

Radi dodatne sigurnosti debljine zidova i motorizovanog paravana bi trebalo da budu oko 5 cm.

Masa olova brahiterapijske komore sa motorizovanim paravanom bi iznosila oko 10600 kg (zidovi+ plafon - 8250 kg; motorizovani pokretni paravan - 2350 kg).

Cena izrade ove brahiterapijske komore sa pripadajućim elementima (projektovanje, materijal, ugradnja, nosači, šine, motor, audio-vizuelni nadzor, ...) bi iznosila oko 80000 Euro, od čega bi cena olova iznosila oko 38000 Euro (paritet: 420 din./3,58 Euro po kg, u maloprodaji na dan 01.07.2023.god.).

Da bi se održao zadovoljavajući kvalitet vazduha u prostoriji aplikacione sale sa brahiterapijskom komorom (odgovarajući koeficijent unipolarnosti za slobodne lake jone) neophodno je obezbediti od 4-6 izmena celokupnog vazduha na čas u toku zračenja i 15 minuta po završenoj terapiji.

Umesto zaključka

- ✓ Inovativno rešenje konstrukcija brahiterapijske komore u okviru aplikacione sale (po prvi put dat predlog) dalo bi mogućnost uvođenja usluga HDR-BT i u slučaju ograničenih prostornih kapaciteta radioterapijskog centra;
- ✓ Izbor olova kao materijala za izradu zaštitnih zidova brahiterapijske komore, određene debljine, osigurao bi adekvatnu zaštitu izloženih radnika i pojedinaca iz stanovništva i obezbedio adekvatnu kontrolu kako kontrolisane tako i nadgledane zone;
- ✓ Na osnovu dosadašnjeg iskustva rezultati merenja jačine ambijentalnih ekvivalenta doze u okolini brahiterapijske komore bi trebalo da budu u skladu sa Zakonskim preporukama;
- ✓ Aplikaciona sala bi se mogla koristiti bez posebnih uslova, osim u toku samog zračenja pacijenta kada bi predstavljala nadgledanu zonu;
- ✓ Prostor oko aplikacione sale bi se mogao koristiti bez posebnih uslova i u toku zračenja;
- ✓ Ukupna cena izrade brahiterapijske komore i dodatnog prilagođavanja prostora aplikacione sale ne bi prelazila 80.000 Eura, što je kompatibilno sa cenom izgradnje „klasičnog“ brahiterapijskog bunkera;
- ✓ Interesantno bi bilo pratiti uticaj predloženog rešenja na dalji trend u konstrukciji prostora Odeljenja HDR-BT;
- ✓ Zaštitni zidovi ovako dizajnirane brahiterapijske komore bi trebalo da predstavljaju adekvatnu zaštitu i u slučaju da se umesto radioaktivnog izvora ¹⁹²Ir koristi radioaktivni izvor Co-60, maksimalne aktivnosti 130 GBq (na osnovu merenja jačine ambijentalnih ekvivalenta doze u okolini brahiterapijske komore). U tom slučaju bi celokupni prostor aplikacione sale predstavljao kontrolisanu zonu, a zid komandne sobe i ulazna vrata aplikacione sale bi morali da budu izrađeni od olova minimalne debljine od 2 cm.⁵

⁵Računato u odnosu na odnos gama konstanti (Γ) za Co-60 i Ir-192.

Literatura

- [1] International Atomic Energy Agency. Radiotherapy facilities: Master planning and concept design considerations. Vienna: International Atomic Energy Agency; 2014. 31p. Human Health Reports No. 10.
- [2] W. Toye, HDR Brachytherapy: Improved Methods of Implementation and Quality Assurance, School of Applied Sciences Science Engineering and Technology Portfolio RMIT University, 2007.
- [3] J. Stanković, Osnovi radiološke fizike u radioterapiji, Beograd 1997.
- [4] J. E. Martin, Physics for Radiation Protection, Wiley-VCH VerlagGmbH&Co. KgaA, 2013.

**A NEW APPROACH IN THE CONSTRUCTION OF PROTECTION IN
BRACHYTHERAPY – BRACHYTHERAPY CHAMBER**

Jovan STANKOVIĆ¹, Zoran MIRKOV², Kata DABIĆ-STANKOVIĆ^{3,4},
Zorica OBRADOVIĆ⁵, Katarina RAJKOVIĆ⁶

- 1) *Academy for Applied Studies Belgrade - The College of Health Sciences, Cara Dusana 254, Zemun, Serbia*
- 2) *Serbian Institute of Occupational Health „Dr D. Karajovic“, Deligradska 29, Belgrade, Serbia*
- 3) *IMC Affidea, Banja Luka, Republic of Srpska, BiH*
- 4) *Faculty of medicine, University of Banja Luka, Republic of Srpska, BiH*
- 5) *Vinca Institute of Nuclear Sciences – Belgrade, Serbia*
- 6) *Academy of Applied Preschool Teaching and Health Studies, Krusevac, Serbia*

ABSTRACT

Brachytherapy units with high activity sources (> 370 GBq) are placed in special protective treatment rooms, with concrete wall thickness of about 70 cm, which requires more extensive construction and technical works that increases the cost of production (over 100.000 Euros).

In order to overcome the problem of limited space within the brachytherapy department, we propose construction of a "brachytherapy chamber" that would be located in the application theatre with a minimum area of 30 sqm. The control unit would be located in a separated part of the treatment room. The brachytherapy chamber, with an individual dimensions (H x W) of about 2 m, in the shape of the Cyrillic letter P (П), is made of lead plates 5 cm thick. On one side of the chamber (patient entrance) a movable/motorized screen (wall thickness: 5 cm; dimensions HxW each approx. 2.3 m) will be constructed. During radiation, the patient and the unit are in the chamber. The construction cost of this brachytherapy chamber with associated elements would not exceed the cost of making a classic brachytherapy treatment room.

EKSPERIMENTALNI MODEL ZA PROCENU MOGUĆEG RADIOPROTEKTIVNOG EFEKTA BILJNOG EKSTRAKTA

Katarina M RAJKOVIĆ¹, Mirijana ĐUREŠEVIĆ², Zorica OBRADOVIĆ²,
Zorana MILANOVIĆ², Aleksandar VUKADINOVIĆ², Marko PERIĆ²,
Dragana STANKOVIĆ², Drina JANKOVIĆ²

- 1) *Akademija vaspitačko-medicinskih strukovnih studija u Kruševcu, Odsek tehničko-tehnoloških studija, Kosančićeva 36, Kruševac*
- 2) *Institut za nuklearne nauke „Vinča”, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*

Autor za korespondenciju: Katarina RAJKOVIĆ, katar1970@yahoo.com

SAŽETAK

Tc-99m-radiofarmaceutici se koriste u različitim dijagnostičkim procedurama u nuklearnoj medicini. Da bi se minimizirali štetni efekti jonizujućeg zračenja na zdrava tkiva, intenzivno se istražuju radioprotektivne osobine biljnih ekstrakata. Ljuska ploda crnog oraha sadrži mešavinu različitih farmakološki aktivnih jedinjenja koja imaju antioksidativno dejstvo i za koje se pretpostavlja da mogu imati i potencijalno radioprotektivno dejstvo. U tom kontekstu, cilj rada je bio da se proceni radioprotektivni efekat ekstrakta ljuske ploda crnog oraha. U ovoj studiji primenjen je eksperimentalni model koji se zasnivao na proceni uticaja ekstrakta na biodistribuciju Tc-99m-radiofarmaceutika po organima eksperimentalnih životinja (pacovi). Ekstrakt ljuske crnog oraha doveo je do smanjenog nakupljanja Tc-99m-radiofarmaceutika u pojedinim organima pacova. Rezultati dobijeni na osnovu eksperimentalnog modela sugerišu moguću upotrebu ekstrakta ljuske ploda crnog oraha kao radioprotektivnog sredstva u slučajevima planiranog izlaganja jonizujućem zračenju u nuklearnoj medicini.

Uvod

Radiofarmaceutik je radioaktivnik koji se koristi za dijagnozu i terapijski tretman. Skoro 80% radiofarmaceutika koji se koriste u nuklearnoj medicini u dijagnostičke svrhe su jedinjenja obeležena sa Tc-99m [1-3]. Razlog za tako istaknut položaj Tc u kliničkoj upotrebi su njegove povoljne fizičke i radijacione karakteristike. Vreme poluraspada od 6 sati dozvoljava primenu Tc-99m u dijagnostičke svrhe. Tc-99m-dimerkaptosukcinska kiselina (DMSA) se koristi za procenu oštećenja korteksa, procenu regionalne bubrežne funkcije i otkrivanje anomalija bubrežnog parenhima, zbog svoje lokalizacije u proksimalnim tubulima. Tc-99m-DMSA se vezuje za sulfhidrilne grupe proksimalnih bubrežnih tubula [4]. Međutim, Tc-99m-DMSA emituje jonizujuće zračenje koje može izazvati oštećenje kritičnih makromolekula, kao što je DNK [5].

Dokazano je da ekstrakti lekovitih biljaka mogu da promene biodistribuciju radiofarmaceutika, što može imati značajan uticaj na interpretaciju scintigrama, kvalitet dijagnostičke slike ili dobijanje pogrešnih rezultata [1-5]. Neki autori su opisali da ekstrakt biljke može da utiče na biodistribuciju Tc-99m-radiofarmaceutika [1-5]. Kako se biodistribucija radiofarmaceutika u životinjskom organizmu može promeniti uz istovremenu upotrebu prirodnih i/ili sintetičkih lekova [6], postavlja se pitanje da li možemo predvideti radioprotektivnu aktivnost biljnih ekstrakata na osnovu njihovog uticaja na biodistribuciju radiofarmaceutika.

Kako zelena ljuska ploda crnog oraha sadrži mešavine različitih farmakološki aktivnih jedinjenja [7-9] koja imaju antioksidativno dejstvo, pretpostavljeno je da ona mogu imati radioprotektivni potencijal, odnosno potencijal da spreče štetno dejstvo slobodnih radikala, nastalih interakcijom jonizujućeg zračenja sa vodom u ljudskom organizmu. U tom kontekstu, cilj rada bio je da se proceni radioprotektivni efekat ekstrakta ljuske ploda crnog oraha na osnovu eksperimentalnog modela, koji se zasnivao na proceni uticaja ekstrakta na biodistribuciju Tc-99m-DMSA po organima pacova.

Materijali i metode

Priprema ekstrakta

Plodovi crnog oraha sakupljeni su na lokalitetu Aleksinac, jugoistočni region Srbije. Zelena ljuska je osušena na vazduhu i mlevena tako da su dobijene čestice biljnog materijala prosečne veličine 0,75 mm.

Tečni ekstrakt je pripremljen prema protokolu koji je opisan u radu Rajković i saradnika [9]. Samleveni materijal je pomešan sa 70% (v/v) etanolom i izvršena je 4 h refluks ekstrakcija, na temperaturi ključanja rastvarača u odnosu 4:1 rastvarač-čvrsta materija. Suspenzija biljnih čestica u rastvaraču je ohlađena na sobnu temperaturu, filtrirana pod vakuumom, da bi se tečni ekstrakt odvojio od čvrstog ostatka.

Tretman životinja

Beli zdravi pacovi Wistar (mužjaci, 1 mesec, težine $(89,4 \pm 3,4)$ g) su gajeni u laboratorijskim uslovima za eksperimentalne svrhe (Univerzitet u Beogradu, Institut za biološka istraživanja „Siniša Stanković”, Nacionalni institut Republike Srbije, Beograd, Srbija). Ekstrakti su aplikovani pacovima per os (sondom) u dozama od $6,9 \text{ mg kg}^{-1}$ telesne težine (t.t.), $10,3 \text{ mg kg}^{-1}$ t.t. ili $13,7 \text{ mg kg}^{-1}$ t.t. jednom dnevno u zapremini od $0,1 \text{ cm}^{-3}$ tokom 10 dana. Šest životinja iz svake dozne grupe dobilo je radiofarmaceutik 11. dana. Istovremeno, dodatna kontrolna grupa životinja (6 životinja) je korišćena za određivanje nakupljanja radiofarmaceutika po organima, bez prethodnog tretmana sa ekstraktima. Kontrolna grupa je dobila rastvor 0,9% NaCl.

Tokom ovog perioda, životinje su bile smeštene na sobnoj temperaturi i imale su slobodan pristup hrani i vodi. Jedanaestog dana, $0,1 \text{ cm}^{-3}$ (približno 148 kBq) Tc-99m-DMSA je ubrizgano u repnu venu. Korišćen je Tc-99m-DMSA komercijalni komplet (Laboratorija za radioizotope, Institut za nuklearne nauke „Vinča”, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Srbija).

Scintigrafija

Životinje su snimljene korišćenjem BRUKER® In-Vivo Extreme II uređaja, SAD. Životinje su smeštene u komoru za snimanje nakon prve anestezije intraperitonealnom (i.p.) injekcijom ketamina/ksilazina ($90/10 \text{ mg kg}^{-1}$ i.p.). Slike se snimaju u jednoj bočnoj poziciji za snimanje, sa vremenom ekspozicije od 2 s do 25 s, pomoću CDD kamere.

Biodistribucija radiofarmaceutika

Zdravi Wistar beli pacovi su anestezirani injekcijom ketamin/ksilazin ($90/10 \text{ mg kg}^{-1}$ i.p.), a potom žrtvovani cervikalnom dislokacijom u različitim vremenskim intervalima: 30 min i 2 h, nakon injekcije Tc-99m-DMSA. Radioaktivnost u organima od interesa je merena gama brojačem sa NaI(Tl) detektorom (Vizard 2480, Perkin Elmer USA).

Eksperiment sproveden na pacovima odobren je od strane etičke komisije Instituta za nuklearne nauke „Vinča”, Instituta od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerziteta

u Beogradu, kao i Ministarstva poljoprivrede i zaštite životne sredine Republike Srbije i usklađen je sa Direktivom EU 2010/63/. EU i nacionalni zakon o dobrobiti životinja (dozvola br. 323-07-10190/2020-05).

Statistička analiza

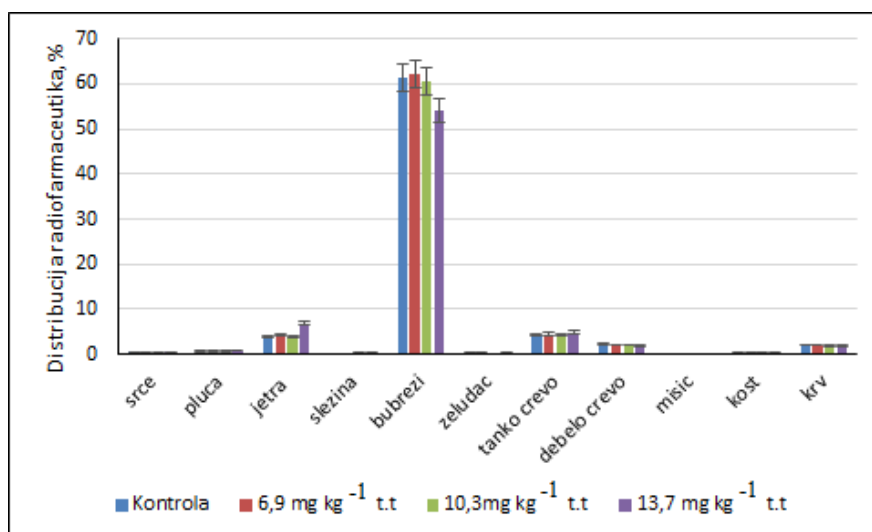
Svi eksperimentalni podaci su izraženi kao srednja vrednost \pm standardna devijacija (SD). Da bi se utvrdila značajnost razlike između tretirane i kontrolne grupe pacova korišćena je jednofaktorska analiza varijanse (ANOVA). Od metoda analitičke statistike za poređenje numeričkih obeležja posmatranja između dve grupe korišćen je t-test. Vrednost $p < 0,05$ smatrana je statistički značajnom. Za obradu podataka i statističku analizu korišćen je program Microsoft Excel.

Rezultati

Ispitivana je biodistribucija Tc-99m-DMSA u tri grupe pacova, tretiranih različitim dozama ekstrakta: $6,9 \text{ mg kg}^{-1} \text{ t.t.}$, $10,3 \text{ mg kg}^{-1} \text{ t.t.}$, ili $13,7 \text{ mg kg}^{-1} \text{ t.t.}$ kao i kontrolnoj grupi (bez prethodnog tretmana ekstraktom). Distribucija Tc-99m-DMSA je praćena merenjem radioaktivnosti u organima od interesa u odnosu na standard. Radioaktivnost organa je merena u NaI(Tl) gama brojaču (PerkinElmer 2480 WIZARD counter) i izračunata je pomoću jednačine :

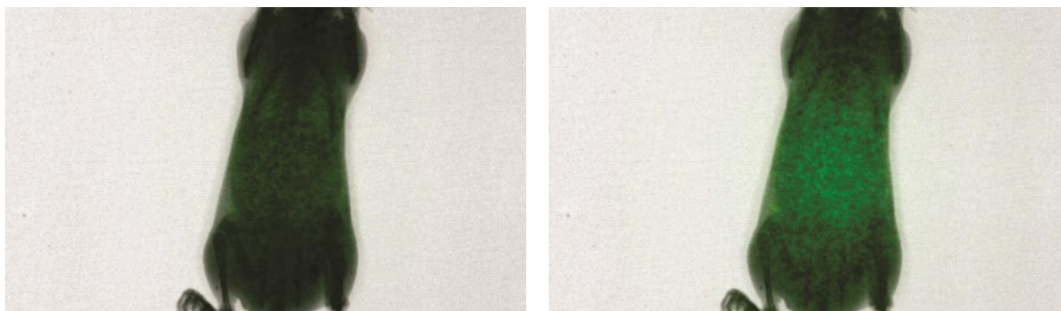
$$(1) \text{ distribucija radiofarmaceutika}(\%) = \frac{\left(\frac{\text{imp}}{\text{min}}\right)_{\text{organ}}}{\left(\frac{\text{imp}}{\text{min}}\right)_{\text{telo}}} \cdot 100.$$

Rezultati nakupljanja Tc-99m-DMSA po organima pacova prikazani su na slici 1. Za pacove tretirane ekstraktom u dozi od $13,7 \text{ mg kg}^{-1} \text{ t.t.}$ primećeno je značajno veće nakupljanje ovog radiofarmaceutika u jetri, dok je niže u bubrezima, u poređenju sa kontrolnom grupom ($p < 0,05$). U grupama tretiranim dozama od $6,9 \text{ mg kg}^{-1} \text{ t.t.}$ i $10,3 \text{ mg kg}^{-1} \text{ t.t.}$ nije bilo statistički značajne razlike u nakupljanju Tc-99m-DMSA po organima između tretirane grupe i kontrolne grupe (slika 1).



Slika 1: Nakupljanje Tc-99m-DMSA po organima zdravih pacova, tretiranih ekstraktima zelene ljuske crnog oraha

Slika 2 prikazuje Tc-99m-DMSA scintigrame pacova – kontrolne grupe i tretirane grupe u dozi od $13,7 \text{ mg kg}^{-1}$ t.t. Na osnovu dobijenih rezultata ne može se uočiti razlika između kontrolne i tretirane grupe.



Slika 2: Scintigrami pacova: Tc-99m-DMSA kontrolne grupe (desno), Tc-99m-DMSA tretirane grupe (levo).

Diskusija

Tc-99m-DMSA je radiofarmaceutik koji se koristi za dobijanje slike visoke rezolucije korteksa bubrega i za procenu funkcije bubrežnog parenhima, sa boljom osetljivošću i specifičnošću od drugih tehnika. Rezultati ove studijesu pokazali da je tretman zdravih pacova ekstraktima zelene ljuske crnog oraha u dozi od $13,7 \text{ mg kg}^{-1}$ t.t. doveo do značajno većeg nakupljanja Tc-99m-DMSA ($p < 0,05$) u jetri. S obzirom na bubrege kao organe od interesa za ovaj radiofarmaceutik, tretiranje životinja ekstraktom u dozi od $13,7 \text{ mg kg}^{-1}$ t.t. značajno je smanjilo bubrežno nakupljanje, u poređenju sa kontrolnom grupom. Manje nakupljanje Tc-99m-DMSA u bubrezima verovatno je posledica manjeg vezivanja ovog radiofarmaceutika za metalotionein u prisustvu bioaktivnih jedinjenja ekstrakta. Iako su bubrezi kritični organi za ovaj radiofarmaceutik, smanjeno nakupljanje ovog radiofarmaceutika u njima smanjuje dozu zračenja koju oni prime, a istovremeno je dovoljno da se dobije dobar scintigrafski snimak bubrega. Povećano nakupljanje u jetri ukazuje na ubranu razgradnju i eliminaciju ovog radiofarmaceutika, koji se nalazi u krvi. Ovaj radiofarmaceutik, odnosno količina koja se nije vezala za bubrežni parenhim, nalazi se u krvi i izlučuje se većim delom putem bubrega, a manjim putem jetre.

Manje nakupljanje Tc-99m-DMSA u bubrezima, pod uticajem ekstrakta ljuske crnog oraha, u skladu je sa prethodnim istraživanjem, u kome je ekstrakt *A. muricata* imao negativan uticaj na nakupljanje istog radiofarmaceutika u urinu, bubrezima i krvi pacova [4]. Međutim, u našem istraživanju je još dokazano i da ekstrakt ljuske crnog oraha nije ometao dobijanje scintigrama visokog kvaliteta (slika 2).

Hemijska jedinjenja ekstrahovana iz zelene ljuske pripadaju grupi fenolnih jedinjenja [7-9]. Značajan sadržaj fenolnih jedinjenja u ovom ekstraktu [9] predstavlja hemijsku osnovu za njihovu antioksidativnu i radioprotektorsku aktivnost. Zbog toga je bilo neophodno proučiti ne samo efekte ovog ekstrakta na distribuciju radiofarmaceutika koji se koriste u nuklearnoj medicini ili terapiji, već i definisati njihovu radioprotektivnu dozu, koja neće ometati dijagnostičku proceduru.

Studije o prirodnim agensima kao radioprotektorima su komplikovane činjenicom da su ova jedinjenja multifunkcionalna. Dobijeni rezultati ukazuju na potencijalnu upotrebu ovog ekstrakta kao radioprotektora u slučajevima planiranog izlaganja zračenju. Takođe, ova studija ukazuje na potencijalnu upotrebu crnog oraha kao sredstva za prevenciju drugih toksičnih efekata, s obzirom na to da se radioprotektori koriste kao profilaktička strategija protiv neželjenih efekata raznih hemijskih jedinjenja.

Zaključak

Radiofarmaceutici se koriste za *in vivo* snimanje biohemijskih, fizioloških i patoloških procesa u organizmu čoveka. Međutim, postoji nekoliko problema povezanih sa kliničkom upotrebom radiofarmaceutika, jer mnogi faktori, kako spoljašnji tako i *in vivo*, mogu promeniti očekivanu distribuciju radiofarmaceutika i dati lažno pozitivnu i lažno negativnu interpretaciju dobijenih rezultata imogućnost postavljanja pogrešne dijagnoze (obmanjujuće informacije koje mogu ili maskirati ili oponašati određene simptome bolesti). Po farmakopeji, dozvoljeno je nakupljanje radiofarmaceutika: u bubrezima više od 40%, a u jetri manje od 10%, tako da ekstrakt zelene ljuske crnog oraha u preporučenim koncentracijama ne remeti te procenite i samim tim neće dovesti do postavljanja pogrešne dijagnoze. Ovi rezultati sugerišu potencijalnu upotrebu dnevne radioprotektivne doze ekstrakta crnog oraha u slučajevima planiranog izlaganja zračenju (scintigrafija) bez mogućnosti pogrešne dijagnoze.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Ev. br. 451-03-68/2023-14/ 200017). Zahvaljujemo se Aleksandri Milić, diplomiranom profesoru srpskog jezika i književnosi, na doprinosu u finalnom oblikovanju ovog rada.

Literatura

- [1] K. De, S. Chandra, M. Misra, Evaluation of the biological effect of brahmi (*Bacopa monnieri* Linn) extract on the biodistribution of technetium-99m radiopharmaceuticals , *Life Science Journal* Vol.5 No.2, 2008, 45-49, ISSN: 1097 – 8135
- [2] G. Dire, E. Lima, M. Gomes, M. Bernardo-Filho, The effect of a chayotte (*Sechium edule*) extracts (decoct and macerated) on the labelling of blood elements with technetium-99m and on the biodistribution of the radiopharmaceutical sodium pertechnetate in mice: an *in vitro* and *in vivo* analysis, *Pakistan Journal of Nutrition* Vol.2, No. 4, 2003, 221- 227, <https://doi.org/10.3923/pjn.2003.221.227>.
- [3] H. Zora, F.B.Z. Muftuler, I. Demir, K.A. Yurt,C. Ichedef, P. Unak, Effect of a plant origin drug on the biodistribution of 99mTc-DTPA in Wistar albino rats, *Revista Brasileira de Farmacognosia* Vol. 22 No.2, 2012, 344-349, ISSN 0102-695X
- [4] C.M. Holanda, D.A. Barbosa, V.F.Demeda, F.T. Bandeira, H.C. Medeiros, K.R. Pereira, V.S.Barbosa, A.C. Medeiros, Influence of *Annona muricata* (soursop) on biodistribution of radiopharmaceuticals in rats, *Acta Cirurgica Brasileira* Vol. 29 No.3, 2014, 145-50, <https://doi.org/10.1590/S0102-86502014000300001>
- [5] S.R.F.Moreno, J.J.Carvalho, A.L.R. Nascimento, R.S. Freitas, G.F. Dire, E.A. Lima, G.L. Lima-Filho, E.K. Rocha, M. Bernardo-Filho, Biodistribution of Sodium Pertechnetate and Light Microscopy of Organs Isolated from the Rats: Study of the Effects of a *Ginkgo biloba* Extract, *Pakistan Journal of Nutrition* Vol. 3 No.1, 2004,64-67, ISSN <https://doi.org/10.3923/pjn.2004.64.67>
- [6] Lj.D. Janković, D.Dj. Djokić, Alteration of the organ uptake of the (99m)Tc-radiopharmaceuticals, (99m)Tc-DPD, (99m)Tc-DMSA, (99m)Tc-tin colloid and (99m)Tc-MAA, induced by the applied cytotoxic drugs methotrexate sodium and cyclophosphamide, *Nuclear Medicine Communicatio* Vol.26 No.5, 2005, 415-9. <https://doi.org/10.1097/00006231-200505000-00004>

-
- [7] J. Wenzel, S:C:Samaniego, L. Wang, L. Burrows, E. Tucker, N. Dwarshuis, M. Ammerman, A. Zand, Antioxidant potential of *Juglans nigra*, black walnut, husks extracted using supercritical carbon dioxide with an ethanol modifier, *Food Science Nutrition* Vol.5 No.2, 2017, 223-232. <https://doi.org/10.1002/fsn3.385>.
- [8] I. Oliveira, A. Sousa, I. Ferreira, A. Bento, L. Estevinho, J.A.Pereira, Total phenols, antioxidant potential and antimicrobial activity of walnut (*Juglans regia* L.) green husks. *Food and Chemical Toxicology* Vol.46 No.7, 2008, 2326–2331, <https://doi.org/10.1016/j.fct.2008.03.017>
- [9] K. Rajković, M. Drobac, P. Milić, V. Vučić, A. Arsić, M. Perić, M. Radunović, S. Jeremić, J. Arsenijević, Chemical characterization and antimicrobial activity of *Juglans nigra* L. nut and green husk, *Journal of the Serbian Chemical Society* Vol.88 No.6, 577-683, <https://doi.org/10.2298/JSC230210024R>

**EXPERIMENTAL MODEL FOR ASSESSING THE POSSIBLE
RADIOPROTECTIVE EFFECT OF PLANT EXTRACT**

Katarina M RAJKOVIĆ¹, Mirijana ĐUREŠEVIĆ², Zorica OBRADOVIĆ²,
Zorana MILANOVIĆ², Aleksandar VUKADINOVIĆ², Marko PERIĆ²,
Dragana STANKOVIĆ², Drina JANKOVIĆ²

- 1) *The Academy of Applied Preschool Teaching and Health Studies, Kruševac, Serbia*
- 2) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Radiation and Environmental Protection Department, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

Tc-99m-radiopharmaceuticals are used in various diagnostic procedures in nuclear medicine. In order to minimize the harmful effects of ionizing radiation on healthy tissues, the radioprotective properties of plant extracts are intensively researched. *J. nigra* husk contains a mixture of various pharmacologically active compounds that have an antioxidant effect and which are assumed to have a potential radioprotective effect. In this context, the aim of the work was to evaluate the radioprotective effect of black walnut husk extract. In this study, an experimental model was applied, which was based on the assessment of the effect of the extract on the biodistribution of Tc-99m-radiopharmaceuticals in the organs of experimental animals (rats). Black walnut husk extract led to a decrease in the accumulation of Tc-99m-radiopharmaceutical in certain organs of rats. The results obtained on the basis of the experimental model suggest that it is possible to use black walnut husk extract as a radioprotective agent in cases of planned exposure to ionizing radiation in diagnostics nuclear medicine.

CT PROTOKOL I VRIJEDNOSTI DOZA ZA PREGLED UROGRAFIJE

Aleksandra MILATOVIĆ¹, Benard BERIŠAJ¹, Nikola SVRKOTA¹, Radule PETRUŠIĆ²,
Anđela VEŠOVIĆ¹

1) *Centrar za ekotoksikološka ispitivanja Podgorica, Crna Gora*

2) *Opšta Bolnica Nikšić, Crna Gora*

Autor za korespondenciju: Aleksandra MILATOVIĆ, *aleksandra.milatovic@ceti.me*

SAŽETAK

Podaci prikazani u ovom radu su sakupljeni u okviru tehničke saradnje sa IAEA (Međunarodne agencije za atomsku energiju) za Projekt RER9/147 „Jačanje sposobnosti država članica za osiguranje zaštite od zračenja pojedinaca koji su podvrgnuti medicinskom izlaganju“. Za ispitivanja su ciljano odabrane dvije državne bolnice sa dva sistema za kompjuterizovanu tomografiju (od eng. Computed Tomography – CT) različitih proizvođača, koji su, trenutno, najzastupljeniji u Crnoj Gori. Analizom je obuhvaćeno 25 odraslih pacijenata za protokol pregleda urografije. Podaci su sakupljeni u formi volumetrijskog CT doznog indeksa (CTDI_{vol}) i proizvoda doze i dužine (DLP) koji su očitani sa komandnih konzola CT sistema. Mediane za srednju vrijednost CTDI_{vol} i mediane zbirnih vrijednosti svih faza pregleda DLP i kreću se u opsegu (8-12) mGy i (2194-3531) mGy·cm. Doze izloženosti pacijenta u ovom radu su za nekoliko puta veće od preporučenih doza. Takođe, u okviru ove tehničke saradnje dobili smo preporuke za poboljšanje protokola i za smanjenje izloženosti pacijenata kroz proces optimizacije pregleda urografije.

Uvod

Kompjuterizovana tomografija (CT, Multidetektorska kompjuterizovana tomografija – MDCT, multislajsna kompjuterizovana tomografija – MSCT) ima važnu ulogu u analizi i dijagnostici urinarnog sistema i omogućuje prikaz njegove morfologije i funkcije sa ili bez korištenja intravenskog kontrastnog sredstva. Nakon volumnog skeniranja aksijalnim/helikalnim presjecima softverski paketi omogućuju naknadnu izradu multiplanarnih rekonstrukcija, uključujući frontalne, kose i sagitalne presjeke za različite 3D rekonstrukcije.

Urografija je pregled koji se koristi za procjenu stanja bubrega, mokraćnih kanala i mokraćne bešike. Nedavni izvještaji iz Sjedinjenih Država i Europe ukazuju na to da je područje abdomena i karlice jedan od najfrekvencijih pregleda sa CT [1]. Savremenim MDCT uređajima uz primjenu intravenskog kontrastnog sredstva moguće je prikazati kanalni sistem bubrega, mokraćnih kanala i mokraćne bešike (CT urografija – CTU), takođe, i bubrežne arterije i vene (CT angiografija – CTA). CT urografija obično uključuje skeniranje bez i sa intravenoznom primjenom kontrasta u 2-5 različitih faza da bi se dobile dijagnostičke slike urinarnog sistema [2]. CTU primjenjuje se kao primarna tehnika snimanja za procjenu stanja bolesnika koji ima krv u urinu (hematurija), sumnja na kamence (niskodozni CT po protokolu za nefrolitijazu), praćenje bolesnika sa istorijom karcinoma urinarnog sistema, utvrđivanje abnormalnosti kod bolesnika s recidivnim mokraćnim infekcijama urinarnog sistema. Širom svijeta, prisustvo mokraćnog kamena utiče na 12% stanovništva tokom cijelog života [3]. Dok, godišnje oko 70 % pacijenata sa kamenom u mokraćnom sistemu u Sjedinjenim Državama se otkrivaju CT pregledom [3].

U okviru ovog rada prikazan je dio rezultata ispitivanja nivoa izlaganja pacijenata u kompjuterizovanoj tomografiji (CT) kroz saradnju Međunarodne agencije za atomsku energiju i zemalja učesnica kroz projekt regionalne tehničke saradnje RER9147 „Povećanje sposobnosti država članica za osiguranje zaštite pojedinaca od zračenja podvrgnutih medicinskoj izloženosti”. Svrha ove saradnje je analiza varijacija u CT protokolima i dozama zračenja za procjenu tri pregleda: hematurije/mokraćnog kamena, urografije i rutinsko snimanje abdomena i karlice u 20 zemalja u Evropi.

Akcent istraživanja bio je na senzitivnim grupama pacijenata i visokodoznom pregledu CTU u dvije bolnice u Crnoj Gori. U ovom radu će biti prikazani rezultati ispitivanja iz dvije bolnice za pregled urografije čije su vrijednosti pacijentne izloženosti najveće u poređenju sa analiziranim rezultatima iz različitih evropskih bolnica (51 učesnika, 67 CT sistema) [2]. CT ima važnu ulogu u oslikavanju mnogih sistema pa tako i urinarnog sastava, a MSCT urografija danas predstavlja zlatni standard. Glavna prednost CTU nad ekskrecijskom urografijom je njena osjetljivost i specifičnost u detekciji patologije. Standardni protokol CTU se odvija najčešće u 3 faze. Prvo se radi nativni snimak, a potom slijede nefrografska i pijelografska faza.

Metode i mjerenja

Podaci o ispitivanim rendgen-aparatima su dati sa osnovnim tehničkim karakteristikama i starošću uređaja u Tabeli 1. Uobičajena godišnja kontrola kvaliteta ispitivanih rendgen-aparata za kompjuterizovanu tomografiju izvršena je multimetrom Piranha (RTI Electronics AB, Sweden). Kontrola kvaliteta (QC) koju sačinjavaju različiti testovi urađeni su u skladu sa standardima i uključuju [4]: vizuelnu inspekciju rendgen-aparata i prateće opreme, detekciju šuma, provjeru homogenosti CT brojeva, tačnosti CT brojeva, detekciju artefakata, CT dozni indeks ($CTDI_w$), CT dozni indeks u vazduhu ($CTDI_{air}$), debljina sloja, artefakte, rezoluciju i kontrast, tačnost napona i vremena, stabilnost i ponovljivost napona i vremena i doznog indeksa.

Tabela 1. Tehničke karakteristike posmatranih CT uređaja

Bolnica	Proizvođač/Model	Broj detektora	Godina proizvodnje	AEC*	Scaning mode	Rekonstrukcija slike
A	Canon Aquilion 80	80	2016	Ima	Helikalni	FBP
B	Siemens Somatom Emotion 16	16	2012	Ima	Aksijalni	FBP

Podaci za rad su prikupljeni u skladu s protokolom koji je predložila Međunarodna agencija za atomsku energiju (IAEA). Prikupljanje svih podataka i analiza izvršeni su u programu Microsoft Excel. Opisne statističke vrijednosti kao srednji i interkvartilni raspon za $CTDI_{vol}$ i DLP dobijeni su za svaki protokol u CT sistemu. Za višefazne CT protokole izračunali smo medijanu $CTDI_{vol}$ i ukupnu DLP iz više etapa snimanja. Svaka ustanova dala je podatke o pacijentima: starost pacijenata, pol, masa i visina pacijenta (nalaze se u Tabeli 2) za najmanje 10 uzastopnih odraslih pacijenata koji su podvrgnuti gore navedenim CT pregledima.

Za svaku fazu skeniranja navedene su lokacije početka i kraja skeniranja, potencijal rendgenske cijevi (bilo fiksne ili sa tehnikom automatskog odabira potencijala cijevi), struja cijevi (bilo fiksne ili s automatskom kontrolom ekspozicije – AEC), moguća debljina presjeka, vrijeme rotacije, konfiguracija detektora, tehnika rekonstrukcije slike (filtrirana back projekcija – FBP), indeks zapreminske CT doze ($CTDI_{vol}$) i doza proizvod dužine (DLP) [2].

Tabela 2. Podaci o pacijentima i parametri snimanja

Bolnica	Broj pacijenata M/F	Starost pacijenata	Debljina (kg)	I (kV)	I·t (mAs)	Pitch	t (s)
A	15 (9/6)	56.0±18.8 (20-79)	76.6±12.9 (54-96)	120	92.0±22.8 (55-120)	1.0±0.2 (0.8-1.4)	0.60
B	10 (6/4)	59.2±15.9 (20-79)	72.2±13.9 (56-91)	130	86±40 (56-179)	0.7±0.3 (0.5-1.4)	0.75

Najčešća dva protokola su: „single bolus“ (trofazni ili četvorofazni protokol) i „split-bolus“. Tipičan protokol CT urografije ima 3 faze. Prva faza je nativna tzv. „renal stone CT“ faza, tj. služi za inicijalno otkrivanje kamena u urinarnom sistemu i pomaže u karakterizaciji bubrežnih lezija. Poslije native faze, najčešće se aplicira kontrastno sredstvo i nakon 100 sekundi uslijedi venska (nefrografska) faza, a zatim 5–10 minuta nakon davanja kontrasta počinje pijelografska faza (dvije faze lučenja, odnosno snimanja). Ove dvije faze sa nativnom fazom čine „single bolus“ protokol. Nakon ovog protokola čeka se 10–15 minuta i ako je neophodno bolesniku se ponovo aplicira kontrastno sredstvo i snimanje se radi sa čekanjem od 100 s, dobivamo nefropijelografsku fazu i takav protokol se zove „split-bolus“ protocol [4-6].

Rezultati i diskusija

Za svaki rendgen-aparat prikupljeno je najmanje 10 pacijenata. Ukupan broj analiziranih pacijenata je 25, oba pola. Tipični parametri akvizicije tokom izvođenja CT urografije na ispitivanim uređajima su (120 – 130) kV, (55 – 180) mAs uz kolimaciju (16 x 1.5) mm za nativnu i parenhimsku fazu, te (16 x 0.75) mm za ekskrecijsku fazu ako se radi o 16-slojnom uređaju, odnosu uz kolimaciju (64 x 0.5 – 0.625) mm ako se radi o 64-slojnom uređaju. Podaci su sakupljeni u formi volumetrijskog CT doznog indeksa ($CTDI_{vol}$) i proizvoda doze i dužine (DLP) koji su očitani sa komadnih konzola CT sistema. Podaci su predstavljeni u Tabeli 3.

Tabela 3. Distribucija $CTDI_{vol}$ i DLP

Bolnica	$CTDI_{vol}$ (mGy)			DLP (mGy·cm)		
	$X_{sr} \pm sd$ (min-max)	mediana	Q_3	$X_{sr} \pm sd$ (min-max)	mediana	Q_3
A	11.3±2.2 (6.7-14.1)	11.9	12.3	3553±1134 (2213-5759)	3414	4314
B	9.5±4.3 (5.7-17.8)	8.4	9.9	2395±869 (1164-3618)	2194	3384

Vrijednosti mediane za srednju vrijednost $CTDI_{vol}$ i mediane zbirnih vrijednosti svih faza pregleda DLP i kreću se u opsegu (8 – 12) mGy i (2194 – 3414) mGy·cm [2]. Kroz ovu saradnju sa IAEA sve bolnice su dobile preporuke za poboljšanje postojećih protokola i optimizaciju pacijentne izloženosti. U Tabeli 4 su date preporuke za optimizaciju protokola CTU i smanjenje izloženosti pacijenta za Opštu bolnicu B čije vrijednosti za $CTDI_{vol}$ i DLP su jedne od najvećih od svih posmatranih CT uređaja u 20 zemalja učesnika. U našoj zemlji, najčešće, se koristi „split-bolus“ protokol koji obuhvata 5-6 faza snimanja pacijenta.

Tabela 4. Preporuke date od stručnjaka IAEA kroz projekat

Opšta Bolnica B	Naši podaci	Preporuke za poboljšanje
FAZA 1		Faza bez kontrasta
Pozicija pacijenta		ležeći na leđima
Zadržavanje daha		udisanje
Početak skeniranja	osnova pluća	vrh bubrega
Završetak skeniranja	najveća karlična kost	sastavak karličnih kosti
kV	120	120
Struja cijevi (AEC)	60-179	SD 15
Debljina slajsa	2	3 mm
Slajs interval		2 mm
Vrijeme rotacije (s)	0.75	0.5
Pitch	0.65	0.8:1
Konfiguracija detektora	80*0.5	80*0.5
Tip rekonstrukcije	FBP	FBP
Rekon. kernel/algoritam	FC18	FC18
Dodatno preuređivanje protokola		5 mm coronal MIP
STOP provjeriti sa radiologom	Starost pacijenta < 40 godina	Kamen prisutan
	Starost pacijenta < 40 godina	Kamen nije prisutan
	Starost pacijenta < 40 godina	Individualna odluka. Kontrast generalno dat
Faza 2		NEFROGRAFSKA+EKSKRETORNA FAZA
Kontrast		50 ml kontrasta (1-2 ml/s)
		250 ml infuzije
		10-15 minuta kasnije poslije prve injekcije
		Leđa pacijenta na CT - ubrizgati 90 ml kontrasta (3cc/sec)
		Odgoda skeniranja 100 sekundi
Pozicija pacijenta		ležeći na stomaku
Zadržavanje daha		izdisanje
Početak skeniranja	osnova pluća	vrh bubrega
Završetak skeniranja	najveća karlična kost	sastavak karličnih kosti
kV	120	120
Struja cijevi (AEC)	60-179	SD 12.5
Debljina slajsa	2&5	3 mm
Slajs interval		2 mm
Vrijeme rotacije (s)	0.75	0.5
Pitch	0.65	0.8:1
Konfiguracija detektora	80*0.5	80*0.5
Tip rekonstrukcije	FBP	FBP
Rekon. kernel/algoritam	FC18	FC18
Debljina slajsa		5 mm coronal MIP
Ako ureteri nisu vidljivi	Napravite skaut ili kub rendgenski snimak Ograničite upotrebu odloženih CT snimaka za praćenje uretera Molimo vas da ne koristite 5- ili 6-fazni CT protocol za urografiju Za pacijente sa RCC – koristite protokol za bubrežnu masu Inače, pacijenti sa hematurijom treba da budu snimani za dvofaznim protokolom	

Za niskodozne protokole preporučene su niže vrijednosti napona sa ciljem poboljšanja odnosa kontrasta i šuma, te samim tim i kvaliteta slike. Kod spiralnih CT uređaja obično postoji i rotacija cijevi izvan planiranog polja kako bi uređaj bio u mogućnosti rekonstruirati snimke na krajnjim djelovima. Iz tog razloga je eksponirani dio značajno veći od planiranog polja. Ovaj eksponirani dio se povećava s porastom kolimacije i pomaka stola. Tako za planirano polje može biti i do 40% veće što povećava efektivnu dozu i do 30%. Ovaj

neželjeni efekt moguće je značajno smanjiti odabirom nižih vrijednosti pitch-a i tanjih rekonstrukcija.

Za CT urografiju, veće doze su rezultat tri ili više fazno skeniranje kao i veće vrijednosti postavljenih parametara snimanja od potrebnih parametara skeniranja (struja i potencijal cijevi). Kao što je gore navedeno, postoji potreba za usvajanjem „split bolus“ kontrastnih tehnika ubrizgavanja koje kombinuju nefrografsku (najosjetljivija faza za otkrivanje bubrežnih parenhimskih masa) i ekskretornu (za urotelne neoplazme) faze u jednu fazu skeniranja [5].

Optimalna upotreba automatske kontrole ekspozicije, potencijala cijevi (sa ili bez automatskih tehnika odabira potencijala cijevi), raspon skeniranja (od vrha bubrega do pubične simfize) iterativna rekonstrukcija može pomoći u smanjenju doze zračenja za pojedinačnu fazu CT urografije.

Često navođen razlog za protokole višefaznog skeniranja je zahtjev za rutinski abdomen – karlica pregled. Da bi suzbili ovu zloupotrebu, bolnice i CT odjeljenja moraju naložiti da ljekari koji upućuju daju adekvatne i preciznije kliničke informacije za skeniranje.

Zaključak

Upotrebom višefazne CTU (3-6 faza skeniranja) registruje se po nekoliko puta veća izloženost pacijenata nego sto je neophodno. Postoji niz radova koji upućuju da ovaj način snimanja sa 5,10 i 15 minuta kašnjenja neće dati bolji kvalitet dijagnostičke slike [7]. U kontekstu svega ovoga, preporučuje se da CTU protokol usvoji sa najviše dvije faze snimanja. Imajući u vidu gore rezultate i višegodišnje kontrole kvaliteta (QC), došlo se do zaključka da postoji značajan prostor za optimizaciju protokola CT snimanja i smanjenje izloženosti jonizujućem zračenju odraslih i pedijatrijskih pacijenata u Opštim bolnicama.

Iz svega navedenog proističe da je dijagnostičkoj radiologiji Crne Gore neophodna, i to hitno, optimizacija prakse koja se postiže redovnim mjerenjem izloženosti pacijenata, ocjenom kvaliteta dijagnostičke slike, analizom neuspjelih (odbačenih) snimanja i edukacijom svih učesnika.

Literatura

- [1] European Commission. Radiation Protection Report 180. Medical Radiation Exposure of the European Population, Luxembourg: Publications Office of the European Union, 2014.
- [2] CT Protocols and Radiation Doses for Hematuria and Urinary Stones: Comparing Practices in 20 Countries, European Journal of Radiology 126:10892
- [3] Romero V, Akpınar H, Assimos DG. Kidney stones: a global picture of prevalence, incidence, and associated risk factors. Rev Urol. 2010; 12: e86-96.
- [4] Gifford JN, Chong MC, Chong LR, et al. Computed Tomography Urography: Comparison of Image Quality and Radiation Dose between Single- and Split-Bolus Techniques. Ann Acad Med Singapore. 2018; 47:278-284
- [5] Townsend BA, Silverman SG, Morteale KJ, et al. Current use of computed tomographic urography: survey of the society of uro-radiology. J Comput Assist Tomogr. 2009; 33:96-100
- [6] Shaish H, Newhouse JH. Split-bolus CT urogram: Is less more? Abdom Radiol (NY). 2017;42:2119-2126. Juri H, Tsuboyama T, Koyama M, et al. Assessment of the ability of CT urography with low-dose multi-phasic excretory phases for opacification of the urinary system. PLoS One. 6; 12 (4), 2017.

- [7] Gifford JN, Chong MC, Chong LR, et al. Computed Tomography Urography: Comparison of Image Quality and Radiation Dose between Single- and Split-Bolus Techniques. *Ann Acad Med Singapore*. 2018;47:278-284

CT PROTOCOL AND DOSE VALUES FOR UROGRAPHY EXAMINATION

Aleksandra MILATOVIĆ¹, Benard BERIŠAJ¹, Nikola SVRKOTA¹, Radule PETRUŠIĆ²,
Anđela VEŠOVIĆ¹

- 1) *Center for Ecotoxicological Research, Šarla de Gola 2, Podgorica, Montenegro*
- 2) *General hospital Nikšić, Montenegro*

ABSTRACT

The data presented in this paper were collected as part of technical cooperation with the IAEA (International Atomic Energy Agency) for the Project RER9/147 "Enhancing the Capabilities of Member States in Ensuring Radiation Protection of Individuals Subjected to Medical Exposure." For the study, two state hospitals with two different manufacturers' computed tomography systems, which are currently the most prevalent in Montenegro, were specifically selected. The analysis included 25 adult patients for the urography examination protocol. The data were collected in the form of volumetric CT dose index ($CTDI_{vol}$) and dose-length product (DLP) readings obtained from the CT system console. The median values for $CTDI_{vol}$ and the cumulative values for all phases of DLP range between (8-12) mGy and (2194-3531) mGy·cm, respectively. The patient exposure doses in this study are several times higher than the recommended doses. Additionally, as part of this technical cooperation, we received recommendations for improving the protocols and reducing patient exposure through the optimization process of urography examinations.

STANJE RENDGEN-APARATA U DIJAGNOSTIČKOJ RADIOLOGIJI U CRNOJ GORI

Benard BERIŠAJ¹, Aleksandra MILATOVIĆ¹, Nikola SVRKOTA¹, Anđela VEŠOVIĆ¹

1) *Centar za ekotoksikološka ispitivanja, Podgorica, Crna Gora*

Autor za korespondenciju: Benard BERIŠAJ, beniber@t-com.me

SAŽETAK

U ovom radu je prikazano stanje generatora rendgenskog zračenja, svih modaliteta snimanja, u Crnoj Gori u posljednjih 10 godina. Analizom rendgen-aparata 2012. godine, utvrđeno je da se većina uređaja koji su se koristili u dijagnostičkoj radiologiji zasnivala na visoko frekventnim generatorima. U ovom periodu broj rendgen-aparata se nije značajno povećavao, osim generatora posebne namjene, kao što su uređaji za kompjuterizovanu tomografiju (CT) i stomatologiju. Naime, 2012. je bilo 68 % analogne opreme (84 konvencionalna rendgen-aparata od kojih 58 analognih i 26 digitalnih, 18 mamografa od kojih 17 analognih i 1 digitalni, i 13 digitalnih CT). S druge strane, 2022. je bilo 54 % digitalne opreme od ukupnog broja rendgen-aparata (74 konvencionalna rendgen-aparata od kojih 30 analognih i 44 digitalna, 19 mamografa od kojih 10 analognih i 9 digitalnih, i 22 digitalna CT). Primjetan je veliki pomak u samom kvalitetu, odnosno tehnološkom nivou rendgen-aparata i ubrzan prelazak sa analogne na digitalnu radiografiju, posebno u stomatologiji. Značajan porast CT i privatnih bolnica je uticao na nagli skok digitalne opreme. Ovaj trend rasta digitalne opreme je stalan.

Uvod

Kada su vještački izvori jonizujućeg zračenja u pitanju, najveći uzrok izloženosti populacije je njihova primjena u medicini. U posljednjih sto godina, primjena izvora jonizujućih zračenja je u stalnom porastu u medicini i danas predstavlja osnovno oruđe za sprovođenje dijagnostičkih i terapijskih protokola [1]. Primjena jonizujućeg zračenja može se podijeliti na četiri oblasti. Najrasprostranjenija upotreba jonizujućeg zračenja je u dijagnostičkoj radiologiji, koja stvara sliku pacijenta primjenom X-zračenja. U nuklearnoj medicini administriraju se radiofarmaceutici različitih aktivnosti u zavisnosti od toga da li se koriste u terapiji ili u dijagnostičke svrhe; jonizujuće zračenje se koristi u radioterapiji gdje se za potrebe liječenja koriste različiti kvaliteti snopova i doze zračenja i, na kraju u palijativnom liječenju.

Medicinski izvori jonizujućeg zračenja daju daleko najveći doprinos dozi stanovništva od svih vještačkih izvora, a većina od ovog doprinosa potiče od radiodijagnostičkog X-zračenja (iznad 90 %) [2-3].

Slična situacija je i u našoj zemlji – upotreba radioloških metoda u dijagnostici je u stalnom porastu. U ovom periodu je došlo i do masovnog otvaranja privatne prakse u kojoj su se nabavljali generatori rendgenskog zračenja. Trend otvaranja privatnih zdravstvenih usluga je praćen sve masovnijom nabavkom digitalnih mamografa i uređaja za kompjuterizovanu tomografiju. Takođe, učinjen je vidan napredak u stomatološkoj radiologiji gdje imamo masovnu digitalizaciju. Očekujemo da u narednom periodu taj pomak bude još veći kod svih modaliteta snimanja, a sve u cilju dobijanja što kvalitetnijih dijagnostičkih informacija uz znatno smanjenje izlaganja populacije. Pored povećanog broja uređaja, uočava se i veliki pomak u samom kvalitetu, odnosno tehnološkom nivou rendgen-aparata [4].

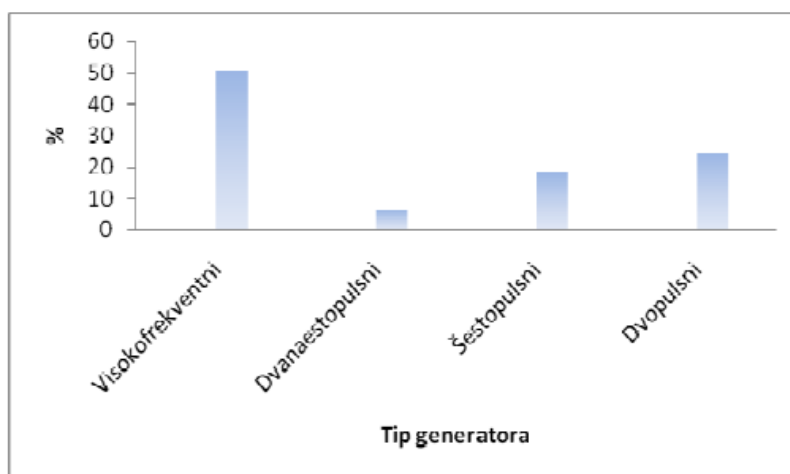
U ovom radu će biti detaljno prikazan presjek stanja koji se tiče broja i kvaliteta rendgen-aparata u našoj zemlji.

Metode i rezultati

U organizovanom sistemu zaštite od jonizujućeg zračenja veliki značaj pridaje se odrađivanju programa osiguranja kontrole kvaliteta (QC). Imajući u vidu rezultate višegodišnje kontrole kvaliteta (QC), Centar za ekotoksikološka ispitivanja (CETI) procijenio je da je u Crnoj Gori, maloj zemlji u razvoju, 2012. godine bilo 68 % analogne opreme. Tačnije, od 84 konvencionalna rendgen-aparata njih 58 su bili analogni, a 26 digitalni. Tada od 18 mamografskih sistema samo jedan nije bio analogan, dok svih 13 CT uređaja je digitalno. U tom trenutku u velikom broju zdravstvenih ustanova se dakle radilo na starim, tehnički zastarijelim i izraubovanim aparatima. Opšte loše stanje generatora rendgen-aparata, široka upotreba rendgenskih cijevi starih generacijskih fokusa i nemogućnost korištenja zaštitnih filtera i blendi, u rutinskom radu čine višestruku štetu: ograničavaju (i to značajno) frekvenciju pregleda pacijenata, povećavaju doze zračenja kako za pacijenate tako i za zaposlene i smanjuju mogućnost za primjenu mjera zaštite od zračenja. Registrovano je da kod starijih rendgen-aparata se ne koristi automatska kontrola ekspozicije (od eng. Automatic Exposure Control – AEC), da kod određenog broja uređaja ne postoji ili ne radi. Iako je AEC opcija bila dostupna, korišćena je u malom broju zdravstvenih institucija, što je dovelo do visokih vrijednosti pacijentnih doza. Treba napomenuti da su tada čak i relativno noviji uređaji bili već polu-zastarjeli (skoro 40 % od visoko frekventnih generatora je pristiglo uglavnom iz donacija). Ovi aparati su u osnovi predstavljali tehnološki osavremljene koncepte starijih rendgen-aparata [1].

Perfomanse rendgen-aparata koji su korišćeni u ovom radu provjerene su da li zadovoljavaju kriterijume ustanovljene protokolom o kontroli kvaliteta (QCP) [5-7]. Koristeći višenamjenske mjerne instrumente (multimetar) Barracuda i Piranhu (RTI Electronics, Sweden) testirane su karakteristike posmatranih rendgen-aparata, koji su provjeravani na osnovu standardnih protokola za QC u dijagnostičkoj radiologiji.

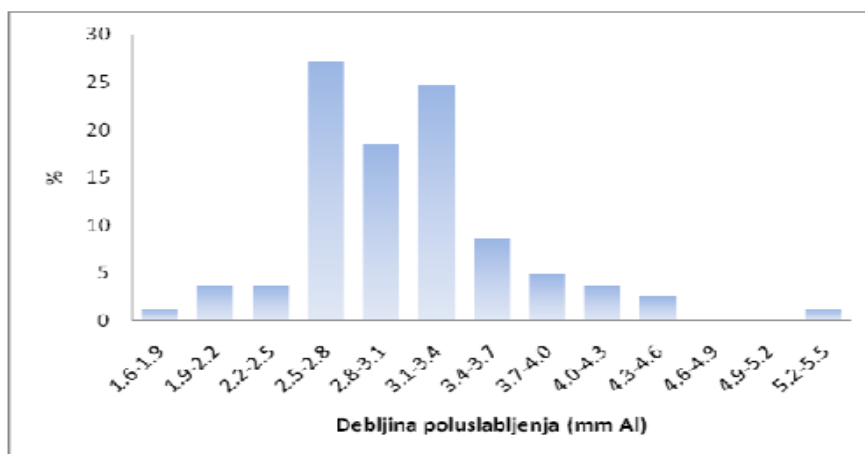
Analizom ovih 80-tak rendgen-aparata (Slika 1) utvrđeno je da većina generatora koji su se koristili u dijagnostičkoj radiologiji su se zasnivali na visoko frekventnim generatorima (50.60 %). Takođe, u praksi su se koristili generatori sa trofaznim/šestopulsnim režimom ispravljanja (18.50 %), trofaznim/dvanaestopulsnim režimom ispravljanja (6.20 %) i monofazni/dvofazni generatori (24.70 %).



Slika 1. Distribucija režima ispravljanja generatora rendgen-aparata koji su pobrojani u Crnoj Gori za 2012. godinu

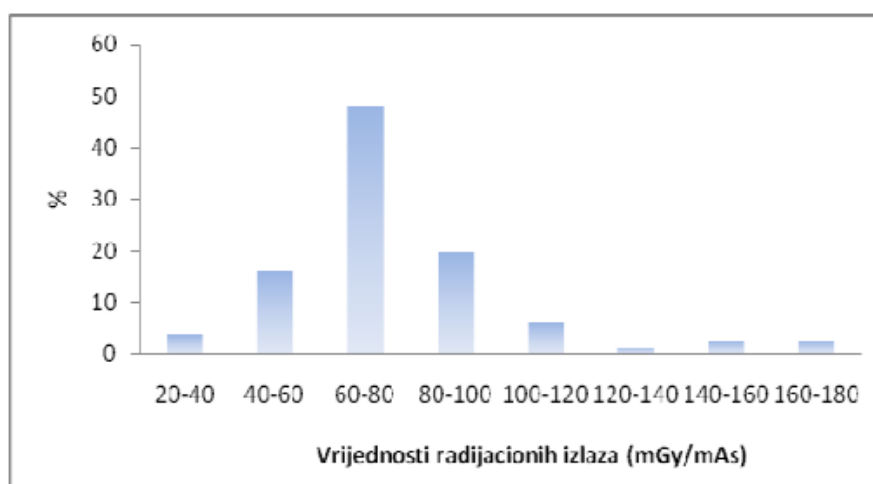
Analizom, na osnovu mjerenja prve debljine poluslabljenja snopa zračenja (HVL) utvrđen je nivo filtracije rendgen-aparata. Nivo filtracije se određivao na 80 kVp i kretao se od 1.70 mm Al do 5.50 mm Al, sa srednjom vrijednošću od 3.1 mm Al.

Nekoliko rendgen-aparata (8.1 %) nije ispunjavalo zahtjev da je filtracija veća od 2.50 mm Al na 80 kVp (Slika 2). Takođe, analizom radijacionog izlaza rendgenskih cijevi na 80 kV utvrđeno je da više od 20 % rendgen-aparata nije ispunjavalo preporučeni standard. Radijacioni izlaz rendgenskih cijevi tada analiziranih rendgen-aparata kretao se u intervalu (20-180) $\mu\text{Gy/mAs}$, sa srednjom vrijednošću od 76 $\mu\text{Gy/mAs}$ (Slika 3).



Slika 2. Distribucija vrijednosti debljine poluslabljenja izmjerenih pri naponu od 80 kVp analiziranih rendgen-aparata u Crnoj Gorizi 2012. godinu

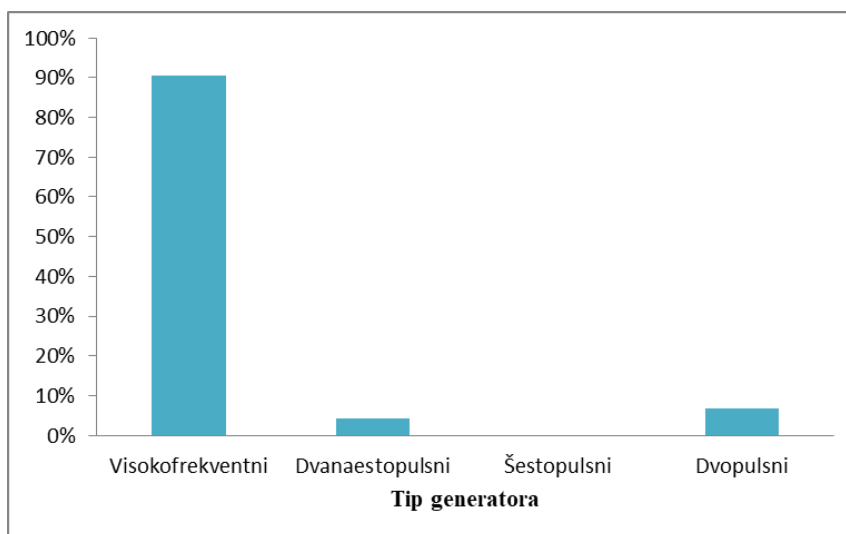
Analizom rezultata zdravstvenih ustanova u cijeloj Crnoj Gori 2022. godine utvrđeno je da se većina uređaja koji se koriste u dijagnostičkoj radiologiji zasniva na visokofrekventnim generatorima (oko 90 %).



Slika 3. Distribucija izmjerenih vrijednosti radijacionih izlaza prebrojanih rendgenskih cijevi pri naponu od 80 kVp za 2012. godinu

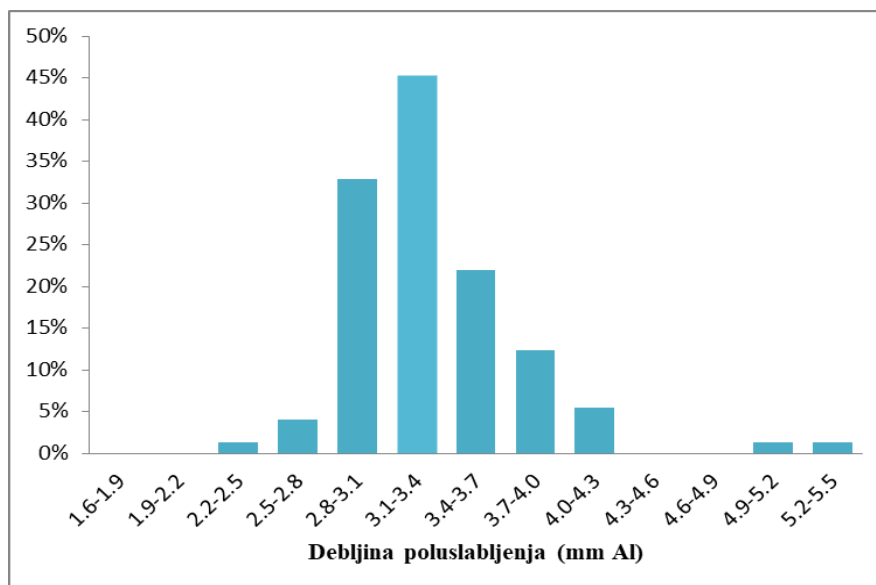
Nakon 10 godina, broj digitalnih rendgen-aparata je značajno porastao. Od ukupnog broja rendgen-aparata, 54 % su digitalni. Odnosno, 2022. godine je bilo 75 konvencionalna rendgen-aparata od kojih 30 analognih i 45 digitalna, 19 mamografa od kojih je 10 analognih i 9 digitalnih, i 22 digitalna CT. Trend rasta broja digitalnih rendgen-aparata je stalan.

Takođe, značajno se poboljšao kvalitet nabavljene opreme. Prije 10 godina, odnosno 2012. godine je bilo oko 50 % visokofrekventnih rendgen-aparata, dok ih je sada oko 90 %. Kad uporedimo stanja na graficima iz 2012. i 2022. vidimo da je, danas, stanje i kvalitet rendgen-aparata znatno bolji.



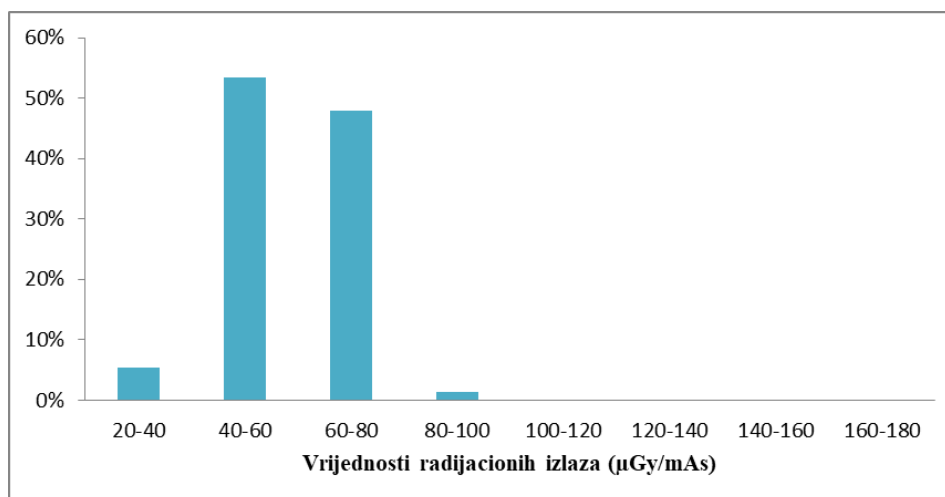
Slika 4. Distribucija režima ispravljanja generatora rendgen-aparata koji su pobrojani u Crnoj Gori za 2022. godinu

Takođe, značajno se poboljšao kvalitet nabavljene opreme. Prije 10 godina, odnosno 2012. godine je bilo oko 50 % visokofrekventnih rendgen-aparata, dok ih je sada preko 90 % (Slika 4).



Slika 5. Distribucija vrijednosti debljine poluslabljenja izmjerenih pri naponu od 80 kVp analiziranih rendgen-aparata u Crnoj Gori za 2022. godinu

Pri analizi rezultata iz 2022. godine, svi rendgen-aparati po tehničkim parametrima (isključen kvalitet slike) su u skladu sa evropskim standardima.



Slika 6. Distribucija izmjerenih vrijednosti radijacionih izlaza prebrojanih rendgenskih cijevi pri naponu od 80 kVp za 2022. godinu

Iz analize podataka filtracije možemo vidjeti da su vrijednosti u skladu sa standardima i da su veće od 2.50 mm Al na 80 kVp (Slika 5).

Radijacioni izlaz rendgenskih cijevi analiziranih rendgen-aparata kretao se u intervalu (25-100) µGy/mAs (Slika 6).

Digitalizacija rendgen-aparata dovodi do upotrebe AEC, i samim tim smanjuje se i pacijentna izloženost. Van' i saradnici preporučuju upotrebu AEC, da bi se smanjila optička gustina, poboljšao kvalitet snimka i redukovala doza pacijenta [8].

Zaključak

U posljednje vrijeme, vidi se znatan napredak u nabavljanju i popravljanju tehničkih performansi uređaja (digitalizacija) koji se koriste u zdravstvenim ustanovama u Crnoj Gori. Očekujemo da u narednom periodu taj pomak bude još veći, a sve u cilju dobijanja što kvalitetnije dijagnostičke slike uz znatno smanjenje izlaganja populacije. Ono što je simptomatično u ovom trenutku je to da ovu brzu digitalizaciju ne prati dovoljna i kvalitetna edukacija svih učesnika u kompletnom pregledu pacijenata.

Znači, u dijagnostičkoj radiologiji postoji neophodnost pisanja pravilnika za dozimetrijske metode i njihovog usklađivanja sa evropskim preporukama. Transfer novih znanja/informacija iz oblasti zaštite od jonizujućeg zračenja u Crnoj Gori nije dobar i mora biti obezbijeđen način da se to promijeni – brzim usvajanjem odgovarajućih mjera i njihovom primjenom u praksi. Nadležne institucije na nacionalnom nivou (Agencija za zaštitu životne sredine, koja pokriva oblast zaštite od zračenja, kao i resorna ministarstva) treba da obezbijede i organizuju edukacije, protok novih informacija, odgovarajuće literature i relevantne publikacije koje bi bile dostupne svim zainteresovanim subjektima.

Literatura

- [1] A. Milatović, Doktorska disertacija, Metrološko obezbjeđenje kvaliteta u medicinskoj primjeni izvora jonizujućih zračenja, Novi Sad, 2012.
- [2] United National Scientific Committee on Effects of atomic Radiation. Source and Effects of Ionizing Radiation. Report to General Assembly with Scientific Annexes, Volume I United Nations, New York, 2020.

-
- [3] Radiological Protection of Patients in Diagnostic and Interventional Radiology, Nuclear Medicine and Radiotherapy, Proceedings of an international conference held in Malaga, Spain, 26-30 March 2001, IAEA, Vienna, 2001
- [4] D. Košutić, P. Božović, Rendgen-aparati u dijagnostičkoj radiologiji na teritoriji Srbije u 2012. Godini, XXVII Simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Vrnjačka Banja, 2013.
- [5] Institution of Physics and Engineering in Medicine and Biology: Measurement of the performance characteristics of diagnostic x-ray systems used in medicine, Part I: x-ray tubes and generators, Report No.32, IPEM, 1995.
- [6] Institution of Physics and Engineering in Medicine: Recommended Standards for Routine Performance testing of Diagnostic X-ray Imaging Systems, Report No.77, IPEM, 1995.
- [7] International Electrotechnical Commission - IEC, Medical Electrical equipment Part I: General Requirements for Safety-3: Collateral Standard: General Requirements for Radiation Protection in Diagnostic X-Ray Equipment, IEC601-I-3, IEC, Geneva, 1994.
- [8] Van'ó E., Oliete S., Gonza'lez L., Guibelaude E., Velasco A., Ferna'ndez J. M., Image quality and dose in lumbar spine examinations: results of a 5 year quality control programme following the European quality criteria trial. Br. J. Radiol.68: 1332-5, 199

THE CONDITION OF X-RAY MACHINES IN DIAGNOSTIC RADIOLOGY IN MONTENEGROBenard BERIŠAJ¹, Aleksandra MILATOVIĆ¹, Nikola SVRKOTA¹, Anđela VEŠOVIĆ¹1) *Center for Ecotoxicological Research, Podgorica, Montenegro***ABSTRACT**

This work presents the state of X-ray generators of all imaging modalities in Montenegro over the past 10 years. By analyzing X-ray machines in 2012, it was determined that the majority of devices used in diagnostic radiology were based on high-frequency generators. During this period, the number of X-ray machines did not significantly increase, except for specialized generators such as those used in computed tomography (CT) and dentistry. Specifically, in 2012, 68 % of the equipment was analog (84 conventional X-ray machines, of which 58 were analog and 26 were digital, 18 mammography machines, of which 17 were analog and 1 was digital, and 13 digital CT machines). On the other hand, in 2022, 54 % of the total number of X-ray machines were digital equipment (74 conventional X-ray machines, of which 30 were analog and 44 were digital, 19 mammography machines, of which 10 were analog and 9 were digital, and 22 digital CT machines). There has been a significant improvement in the quality and technological level of X-ray machines, with a rapid transition from analog to digital radiography, especially in dentistry. The significant increase in CT machines and private clinics has contributed to a sharp rise in digital equipment. This trend of growth in digital equipment is continuous.

VALIDACIJA ITLC METODE ZA ODREĐIVANJE SADRŽAJA RADIOHEMIJSKE NEČISTOĆE C U ^{99m}Tc-MIBI INJEKCIJI

Drina JANKOVIĆ¹, Marija MIRKOVIĆ¹, Magdalena RADOVIĆ¹, Zorana MILANOVIĆ¹,
Marko PERIĆ¹, Dragana STANKOVIĆ¹, Aleksandar VUKADINOVIĆ¹,
Sanja VRANJEŠ-ĐURIC¹

1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za radioizotope, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*

Autor za korespondenciju: Drina JANKOVIĆ, drinaj@vinca.rs

SAŽETAK

Prisustvo radiohemijske nečistoće C u ^{99m}Tc-MIBI injekciji utiče na kvalitet skena, jer se radiofarmaceutik nedovoljno nakuplja u organu od interesa, dok je aktivnost okolnih organa i tkiva velika. Zbog toga je i doza zračenja koju prime okolni organi i tkiva iznad propisanih granica.

Da bi se obezbedilo da je planirano izlaganje zračenju pacijenata svedeno na minimum, farmakopeja zahteva ispitivanje sadržaja radiohemijske nečistoće C u ^{99m}Tc-MIBI injekciji neposredno pre primene radiofarmaceutika u pacijenta. Za ova ispitivanja se koriste metode hromatografije.

U radu je predstavljena brza i osetljiva ITLC metoda namenjena za rutinsko ispitivanje sadržaja radiohemijske nečistoće C u ^{99m}Tc-MIBI injekciji. ITLC metoda je validirana, a ispitivani su pogodnost sistema, tačnost, preciznost, ponovljivost, specifičnost, limit detekcije, limit kvantifikacije, linearnost, robustnost i osetljivost metode. Dobre "recovery" vrednosti i niska relativna standardna devijacija potvrđuju da je predložena ITLC metoda pogodna za rutinsko određivanje nečistoće C u ^{99m}Tc-MIBI u injekciji.

Uvod

Nuklearna medicina je grana medicine koja se bavi dijagnostičkom i terapijskom primenom radiofarmaceutskih lekova kao otvorenih izvora jonizujućih zračenja. Nakon unošenja u organizam, radiofarmaceutski lek se u njemu raspoređuje i metaboliše određenim putevima, sve dok se potpuno ne izluči. Zbog toga ozračivanje pacijenta nije moguće izbeći. Međutim, moguće je izborom najpogodnijeg radionuklida, njegove aktivnosti - doze i procedure ispitivanja svesti efektivnu dozu na najmanju moguću meru.

Kvalitet radiofarmaceutika je jedan od veoma važnih parametara koji određuje dozu zračenja kojoj se, u toku dijagnostičke procedure, izlaže pacijent. Da bi se smanjilo ili sprečilo nepotrebno ozračivanje pacijenta, farmakopeja je propisala metode kontrole kvaliteta svakog radiofarmaceutskog leka neposredno pre primene, kao i parametre kvaliteta sa granicama prihvatljivosti (specifikacijske granice) za svaki pojedinačni parametar. Radiohemijska čistoća radiofarmaceutika obeleženih sa ^{99m}Tc je vrlo bitan parametar kvaliteta jer ona definiše udeo radionuklida u željenom hemijskom obliku. Za najveći broj ^{99m}Tc - radiofarmaceutika radiohemijska čistoća mora da bude veća od 95 % tokom celog vremena korišćenja. Samo će radiohemijski čist i homogen radiofarmaceutik imati kvantitativno i kvalitativno određene i reproducibilne puteve distribucije. Radiohemijske nečistoće su redukovani, hidrolizovani ^{99m}Tc; slobodni ^{99m}Tc-pertehnetat, kao i kompleksi ^{99m}Tc i aktivne supstance a koji nisu od interesa za datu dijagnostičku proceduru. Oni imaju različite,

nečekivane puteve distribucije i doprineće povećanju doze zračenja koju okolni organi ili tkiva (koji nisu od interesa za datu dijagnostičku proceduru) prime. Takođe mogu da dovedu do manje ili više izraženog remećenja kinetskih pokazatelja nekog organa odn. do pojave artefakata kod vizuelizacionih tehnika.

Komplet za obeležavanje MIBI sa ^{99m}Tc sadrži aktivnu supstancu pod nazivom (tetrakis (1-izocijanid-2-metoksi-2-metilpropil-) bakar (1+)) tetrafluoroborat (bakar tetraMIBI tetrafluoroborat). Nakon radioobeležavanja dodatkom rastvora natrijum-pertehnetata (^{99m}Tc), dobijeni kompleks ^{99m}Tc -MIBI se koristi isključivo u dijagnostičke svrhe. Kao radiohemijske nečistoće u ovom leku su: redukovani, hidrolizovani ^{99m}Tc ; slobodni ^{99m}Tc -pertehnetat, kao i nečistoća C((OC-6-22)-pentakis[1-(isocyano-κC)-2-methoxy-2-methylpropane] [1-(isocyano-κC)-2-methylprop-1-ene] [^{99m}Tc](1+)).

Instant tankoslojna hromatografija (engl. Instant Thin Layer Chromatography ili ITLC) je hromatografska tehnika koja se koristi za razdvajanje hemijskih komponenti. Uključuje stacionarnu fazu sastavljenu iz tankog sloja materijala za adsorpciju, obično silikagela, aluminij-oksida ili celuloze, koji je pričvršćen na ravnu, inertnu ploču. Mobilna faza se sastoji iz odgovarajućeg rastvarača. ITLC razdvajanja se zasnivaju na različitoj raspodeli supstance između dve faze: tečne (mobilne faze) koja nosi smešu analita kroz porozni materijal (stacionarnu fazu), pri čemu, usled različite vrste interakcija analita sa stacionarnom fazom, dolazi do razlike u vremenu migracije komponenti analiziranog uzorka.

U poređenju sa tečnom hromatografijom pod visokim pritiskom (engl. high pressure liquid chromatography – HPLC), ITLC ima nekoliko prednosti: jednostavna je, brza tehnika, ne zahteva pripremu uzorka, lako se izvodi, štedeći i vreme i troškove. Glavna prednost ITLC-a je što korišćenjem male količine mobilne faze može dobiti razdvajanje i identifikacija nečistoća za razliku od u HPLC, čime se smanjuje vreme analize i cena po analizi.

Da bi se dobila optimalna efikasnost ITLC metode, ispitivano je nekoliko parametara, uključujući izbor mobilne i stacionarne faze [1,2,3,4]. Na osnovu najveće saglasnosti sa rezultatima HPLC metode, izabran je optimalan sistem: SG trake kao stacionarna faza i 9 g/L rastvora natrijum hlorida R kao mobilna faza.

Ispitivanjem saržaja ^{99m}Tc -MIBI i sadržaja radiohemijske nečistoće C u injekciji potvrđuje se zahtev farmakopeje Ph.Eur., monografija 1926. Saržaj radiohemijske nečistoće C u injekciji mora biti manji od 3% u odnosu na ukupnu radioaktivnost injekcije. Saržaj radiohemijske čistoće ^{99m}Tc -MIBI u injekciju mora biti veća od 94% u odnosu na ukupnu radioaktivnost injekcije [3].

Eksperimentalni deo

Za merenje radioaktivnosti uzoraka korišćen je gama brojač (Gamma 333, ICN Tracerlab, Belgium). Za određivanje sadržaja nečistoće C, primenjena je instant tankoslojna hromatografija, kao stacionarna faza korišćene su ITLC-SG – trake 2x20 cm, dok je 0.9% rastvor NaCl korišćen kao mobilna faza.

Ispitivani rastvor:

Injekcija ^{99m}Tc -MIBI koja se ispituje.

U bočicu kompleta TcP-15 pribor za pripremanje ^{99m}Tc (I)metoksiizobutilizonitril (liofilizat, neradioaktivni radiofarmaceutski kit, Vinča) dodati 5 ml 9 g/L rastvora natrijum hlorida R koji sadrži 700 do 900 MBq natrijum pertehnetat injekcije. Smeša se zagreva u vodenom kupatilu na 95°C u toku 30 minuta. Nakon toga, ohladi se do sobne temperature.

Postupak

U komoru za razvijanje hromatograma se sipa 9 g/L rastvor natrijum hlorida R koji predstavlja mobilnu fazu i komora se zatvara da bi se postigla ravnomerna zasićenost molekulima mobilne faze u svim delovima komore. Na prethodno pripremljenu SG traku nanosi se mikropipetom ili špricom 5 μL ispitivane injekcije na rastojajanju od oko 2 cm od početka trake i taj položaj se označava kao startna linija (S). Zatim se traka postavi u komoru tako da nivo rastvarača ne bude u dodiru sa ispitivanim radiofarmaceutikom, a razdvajanje počinje kada mobilna faza pod dejstvom kapilarnih sila počne da se kreće uzlazno. Hromatogram se razvija u dužini od 15 cm. Ostavi se da se osuši i traka se seče u podeoke širine 1 cm. Radioaktivnost svakog podeoka se meri u gama brojaču. Za poređenje, istovremeno se snimaju hromatogrami na HPLC-u pod gore navedenim uslovima.

Retencioni faktor R_f :

$R_f = 0.0-0.1$ ($^{99m}\text{Tc-MIBI}$, $^{99m}\text{TcO}_2$ –tehnećijum u obliku koloida, nepolarne nečistoće)

$R_f = 0.3-0.4$ (nečistoća C)

$R_f = 0.9-1.0$ (natrijum pertehnetat, $\text{Na}^{99m}\text{TcO}_4$, i ostale polarne nečistoće)

Testiranje linearnosti metode: od osnovnog rastvora $^{99m}\text{Tc-MIBI}$ injekcije (Vinča) napraviti razblaženja 1:1 (v/v), 1:2 (v/v), 1:5 (v/v), 1:10 (v/v), 1:25 (v/v) dodatkom odgovarajućih zapremina 9 g/L rastvora natrijum hlorida R.

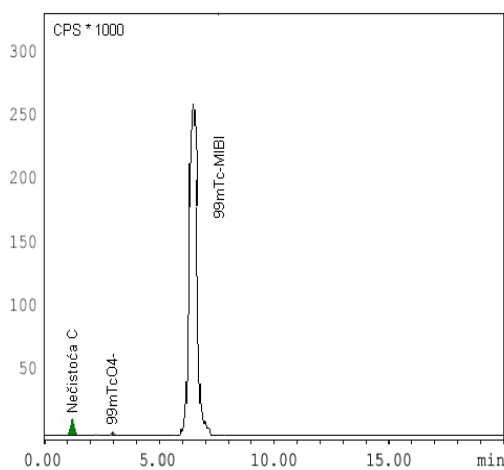
Uzorci $^{99m}\text{Tc-MIBI}$ injekcije

Za ispitivanje su korišćene po 3 $^{99m}\text{Tc-MIBI}$ injekcije iz različitih proizvodnih serija: 150122, 150222 i 150322.

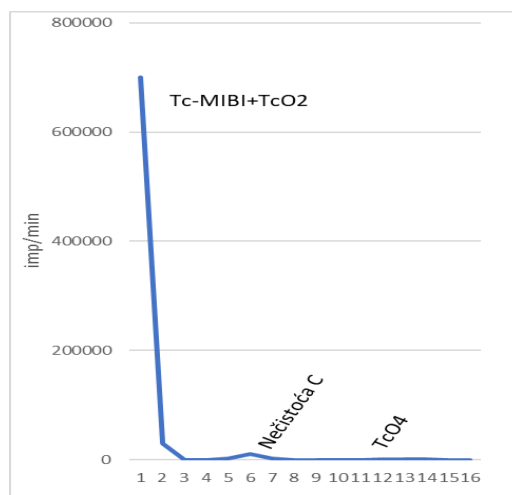
Rezultati

Specifičnost

Da bi se odredila specifičnost, prvo je HPLC metodom ispitan sadržaj nečistoće C u ispitivanim injekcijama $^{99m}\text{Tc-MIBI}$ u skladu sa Ph.Eur., monografija 1926 [3]. Istovremeno su rastvori injekcija nanoseni na ITLC-SG trake da bi se identifikovala lokacija pikova na njima. Urađene su po tri analize za svaku seriju $^{99m}\text{Tc-MIBI}$ injekcije. Metoda se smatra prihvatljivom ako je u stanju da odvoji i pokaže komponente prisutne u uzorku. Ovo je ocenjeno poređenjem R_f vrednosti $^{99m}\text{Tc-MIBI}$ i nečistoće C da bi se potvrdilo da nije bilo preklapanja pikova (slika 1)



Slika 1. HPLC radiohromatogram



Slika 2. ITLC radiohromatogram

Metoda je specifična jer omogućava razdvajanje i tačno određivanje ^{99m}Tc -MIBI u prisustvu nečistoće C i ^{99m}Tc -pertehnetata. Na ITLC radiohromatogramu nema pikova koji ometaju čistoću pika dobijenog od ^{99m}Tc -MIBI i nečistoće C (slike 2).

Tačnost

Da bi se utvrdila tačnost, rezultati dobijeni ITLC metodom su upoređeni sa rezultatima dobijenim HPLC metodom. Za svaku seriju injekcije, urađeno je ukupno 9 ispitivanja (3 ponavljanja za svaku od 3 injekcije jedne serije). Metoda se prihvata kao tačna, kada se srednja vrednost dobijenih rezultata za ITLC metodu nije razlikovala za više od 10 % od srednje vrednosti dobijenih rezultata HPLC metodom. Rezultati su prikazani u Tabeli 1.

Tabela 1. Tačnost ITLC metode

Serija	Injekcija	HPLC	ITLC	Recovery (%)
150122	1	1.14	1.21	106.14
	2	1.09	1.16	106.42
	3	1.05	1.14	108.57
150222	1	1.51	1.59	105.30
	2	1.55	1.62	104.52
	3	1.52	1.59	104.61
150322	1	1.01	0.99	98.02
	2	1.04	1.03	99.04
	3	1.09	1.02	93.58

Preciznost

Za preciznost, procenjena je bliskost slaganja između pojedinačnih određivanja ^{99m}Tc -MIBI i nečistoće C ITLC metodom. Za ponovljivost, pripremljeno je šest uzoraka ^{99m}Tc -MIBI injekcije iz serije 1502122. Srednja vrednost i procenat relativne standardne devijacije (% RSD) su izračunati korišćenjem dobijenih rezultata po formuli za % RSD:

$$(1) \quad \% \text{ RSD} = (\text{SD}/X_{\text{sr}}) \times 100$$

% RSD mora biti 10% ili manje. Rezultati su prikazani u Tabeli 2.

Za srednju preciznost, dva različita ispitivača su pripremili po jednu injekciju ^{99m}Tc -MIBI iz serije 150222. Svaki ispitivač je izvršio 6 ponavljanja i izračunata je srednja vrednost i %

RSD. Такође, за поређење резултата коришћен је Studentov T-test за независне узорке (Табела 3).

% RSD мора бити 10% или мање, а статистичком анализом резултата да нема значајне разлике на нивоу 95%, $p > 0,05$.

Табела 2. Резултати поновљивости (n=3)

Uzorci	Xsr	SD	%RSD
1	1.52	0.03	1.97
2	1.55	0.04	2.58
3	1.51	0.03	1.99
4	1.53	0.02	1.31
5	1.46	0.05	3.42
6	1.54	0.04	2.60

Studentov T-test за независне узорке: не постоји статистички значајна разлика, $p > 0,05$.

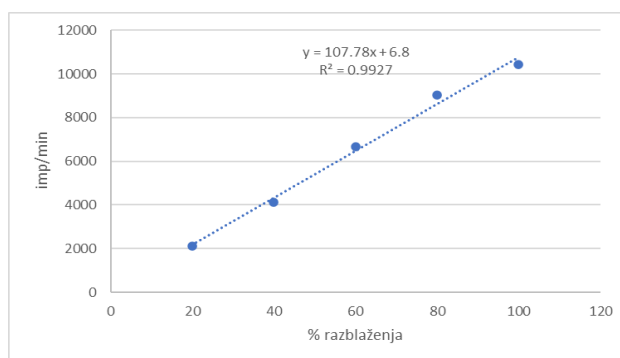
Табела 3. Резултати поновљивости два испитивача (n=6)

Ispitivač	Xsr	SD	%RSD
1	1.49	0.05	3.36
2	1.57	0.06	3.82

Studentov T-test за независне узорке: не постоји статистички значајна разлика, $p = 0,313$

Linearnost i opseg

За испитивање је одабрано пет разблажења ^{99m}Tc -MIBI инјекције из серије 150222 (20%, 40%, 60%, 80% и 100%) (Слика 3). Коefицијент корелације (r^2) мора да буде $\geq 0,98$.



Слика 3. Linearnost ITLC методе за одређивање нечистоће C

Granica detekcije i granica određivanja

На гاما бројачу измерена је радиоактивност празних бојлица (фон) као брзина бројања (imp/min). Затим су у те бојлице стављани одсеци од по 1 cm радиохроматографских трака (ITLC-SG) и измерена је радиоактивност. Затим је израчуната средња вредност и стандардна девијација. Доња граница детекције (LD) је одређена за гاما бројач израчунавањем средње вредности брзине бројања празних бојлица ± 3 SD. Доња граница одређивања (LQ) је она брзина бројања (imp/min) нечистоће C која је 5 пута већа у поређењу са брзином бројања празних бојлица. Резултати су приказани у Табели 4.

Tabela 4. Rezultati analize (imp/min)

Xsr	24.36
SD	4.32
3SD	12.96
LD	37.32
LQ	121,8

Robusnost

Analiza radiohemijske čistoće ^{99m}Tc -MIBI injekcije je sprovedena: nakon nanošenja uzorka injekcije na ITLC-SG traku, ona je odmah stavljena u komoru za razvijanje; nakon nanošenja uzorka na traku, ona je ostavljena na vazduhu da se osuši 2 i 5 minuta pre nego što je stavljena u komoru za razvijanje. Izračunati su srednja vrednost i procenat relativne standardne devijacije (% RSD) a za poređenje rezultata je korišćen Studentov T-test za nezavisne uzorke. Rezultati su prikazani u Tabeli 5.

% RSD mora biti 10% ili manje, a statističkom analizom rezultata da nema značajne razlike na nivou 95%, $p > 0,05$.

Tabela 5. Rezultati određivanja nečistoće C

	Xsr ± SD	% RSD
Odmah	1.57±0.06	3.82
Nakon 2 min	1.62±0.05	3.09
Nakon 5 min	1.59±0.03	1.89

Studentov T-test za nezavisne uzorke: ne postoji statistički značajna razlika, $p > 0,05$.

Diskusija i zaključak

Validacija ITLC metode za određivanje saržaja nečistoće C u ^{99m}Tc -MIBI injekciji je urađena u skladu sa zahtevima Ph.Eur., monografija 2.2.29. Ispitivane su tri serije ^{99m}Tc -MIBI injekcija i retenciona vremena u hromatogramima koja odgovaraju sadržaju nečistoće C i ^{99m}Tc -MIBI su u saglasnosti sa retencionim vremenima datim u farmakopeji Ph.Eur., monografija 1926. Faktor rezolucije je veći od 2 što ukazuje da su pikovi razdvojeni na baznoj liniji. Određivanje saržaja nečistoće C u ^{99m}Tc -MIBI injekciji ITLC metodom se može koristiti u svakodnevnom radu, a u skladu sa zahtevima Ph.Eur., 1926.

Određivanje saržaja nečistoće C u ^{99m}Tc -MIBI injekciji, i na osnovu dobijenih rezultata, donošenje odluke o primeni ovog leka u pacijenta, je veoma važno u cilju optimizacije zaštite pacijenta sprečavanjem nepotrebno visokog izlaganja zračenju organa koji nisu od interesa za ovu dijagnostičku proceduru. Takođe, ukoliko je sadržaj nečistoće C odn kvalitet ^{99m}Tc -MIBI injekcije u farmakopejski dozvoljenim granicama, verovatnoća dobijanja slike visokog kvaliteta je velika ako su ispunjeni i ostali uslovi karakteristični za ovu proceduru.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Ev. br. 451-03-68/2023-14/200017).

Literatura

- [1] International Conference of Harmonisation (ICH) Harmonised Tripartite Guideline—Validation of Analytical Procedures: Q2(R2), 2006.
- [2] S.N. Waghule, N.P. Jain, C.J. Patani, A. C. Patani. Method development and validation of HPLC method for determination of azithromycin. *Der Pharma Chemica* Vol. 5 No.4, 2013, 166-172, ISSN:0975-413X
- [3] European Pharmacopoeia, 9th ed. (Ph.Eur.9.0). Strasbourg, France: European Department for the Quality of Medicines & HealthCare (EDQM), Council of Europe, 2020.
- [4] C. Maioli, G. Lucignani, A. Strinchini, L. Tagliabue, A. Del Sole. Quality control on radiochemical purity in Technetium-99m radiopharmaceuticals labelling: three years of experience on 2280 procedures. *Acta Biomedica* Vol. 88 No.1, 2017, 49–56, ISSN: 2236-0867.

VALIDATION OF AN ITLC METHOD FOR THE DETERMINATION OF RADIOCHEMICAL IMPURITIES C IN ^{99m}Tc -MIBI INJECTION

Drina JANKOVIĆ¹, Marija MIRKOVIĆ¹, Magdalena RADOVIĆ¹, Zorana MILANOVIĆ¹,
Marko PERIĆ¹, Dragana STANKOVIĆ¹, Aleksandar VUKADINOVIĆ¹,
Sanja VRANJEŠ-ĐURIC¹

1) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Radioisotope, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

The European Pharmacopoeia mandates that all radiopharmaceuticals used in nuclear medicine for diagnostic and therapeutic purposes must be of the correct radiochemical and radionuclidic purity and have the correct radioactivity present at the stated time of injection to ensure that the intended radiation exposure of patients is kept to a minimum. These factors have an effect on the overall radiation dose to the patient, as impurities of the radionuclide and/or its chemical composition may affect the biodistribution of the injected radiopharmaceutical and consequently the radiation dose to any one particular organ or the whole body dose.

The presence of radiochemical impurity C in ^{99m}Tc -MIBI injection affects the quality of the image, because ^{99m}Tc -MIBI accumulates insufficiently in the organ of interest, while the activity of the surrounding organs and tissues is high. Therefore, the radiation dose received by the surrounding organs and tissues is above the permitted level.

In order to avoid unnecessary irradiation of surrounding organs and tissues, the pharmacopoeia requires examination of the content of radiochemical impurity C immediately before administering of ^{99m}Tc -MIBI to the patient. Chromatographic methods are used for these tests.

The paper presents a fast and sensitive ITLC method intended for routine examination of the content of radiochemical impurity C in ^{99m}Tc -MIBI injection. The ITLC method was validated, and the suitability of the system, accuracy, precision, repeatability, specificity, limit of detection, limit of quantification, linearity, robustness and sensitivity of the method were examined. Good "recovery" values and low relative standard deviation confirm that the proposed ITLC method is suitable for routine determination of impurity C in ^{99m}Tc -MIBI in injection.

METODA ISPITIVANJA FIZIOLOŠKE RASPODELE ^{99m}Tc-DPD

Zorana MILANOVIĆ¹, Marija MIRKOVIĆ¹, Magdalena RADOVIĆ¹, Marko PERIĆ¹,
Dragana STANKOVIĆ¹, Aleksandar VUKADINOVIĆ¹, Sanja VRANJEŠ-ĐURIĆ¹,
Drina JANKOVIĆ¹

1) *Institut za nuklearne nauke Vinca, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za radioizotope, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Zorana MILANOVIĆ, zorana.milanovic@vinca.rs

SAŽETAK

Radiofarmaceutici koji se koriste za ispitivanje skeletnog sistema od neprocenjivog su značaja u nuklearnoj medicini, kako za dijagnostiku primarnih tumora koštanog tkiva, tako i metastaza. Pre primene na pacijentima, ovi radiofarmaceutici podležu različitim fizičko-hemijskim i biološkim ispitivanjima. Ispitivanje fiziološke raspodele leka *in vivo* je od presudnog značaja jer od akumulacije leka u odgovarajućoj meri u ciljnom organu (skeletu) zavisi kvalitet dobijenog scintigrama, kao i doza zračenja koje će primiti pojedinačni organi i tkiva. U evropskoj farmakopeji (Ph.Eur.) date su metode kontrole kvaliteta kao i parametri kvaliteta sa granicama prihvatljivosti (specifikacijske granice) za ^{99m}Tc-metilendifosfonat (^{99m}Tc-MDP). Cilj ovog rada je prikaz metode ispitivanja fiziološke raspodele ^{99m}Tc-DPD koja je razvijena u Laboratoriji za radioizotope po smernicama evropske farmakopeje za ^{99m}Tc-MDP, uz manje modifikacije. Rezultati biodistribucije na Wistar pacovima su pokazali da je ^{99m}Tc-DPD proizveden u Laboratoriji za radioizotope zadovoljio sve postavljene kriterijume, kako odmah nakon proizvodnje, tako i nakon šest i dvanaest meseci od proizvodnje.

Uvod

Nuklearnomedicinske metode u ispitivanju koštanog sistema podrazumevaju primenu osteotropnih radiofarmaceutika za morfološko-funkcionalna ispitivanja statusa koštano-zglobnog sistema. Posle intravenskog (i.v.) injektovanja, dobijaju se scintigrafske slike metaboličke aktivnosti i krvnog protoka u koštanom sistemu. Ove studije omogućuju prikaz distribucije i intenziteta patoloških promena u kostima, kao i njihovo praćenje u toku lečenja.

Za scintigrafiju koštanog sistema, u kliničkoj primeni su Dikarboksiopropan difosfonat (DPD), metilendifosfonat (MDP), hidroksietilidin difosfonat (HEDP), i etilendiamin-tetrametilen fosfonat (EDTMP) obeleženi sa ^{99m}Tc zbog svoje visoke osetljivosti i tačnosti. Fosfonati su u širokoj upotrebi zbog njihovog značajnog nakupljanja u patološki izmenjenom koštanom tkivu i brzog plazmatskog klirensa, kao i zbog povoljnih fizičko-hemijskih karakteristika nakon obeležavanja sa ^{99m}Tc, što omogućava primenu većih doza radiofarmaceutika i optimalan kvalitet scintigrafskih slika. Mehanizam preuzimanja fosfonata od strane koštanog tkiva uključuje izmenu jona i hemisorpciju u neorganskom matriksu kosti koji se sastoji od jonskog hidroksiapatita (Ca₁₀(PO₄)₆(OH)₂) [1,2]. Fosfatne grupe na površini koštanog matriksa stupaju u reakciju sa slobodnim PO₃H₂ grupama fosfonatnog liganda koordinisanog sa jonom radioaktivnog metala. Ovaj process se dešava u zdravoj kosti, ali je akumulacija znatno veća na mestima sa pojačanim krvotokom i povećanom aktivnošću osteoblasta.

Da bi se primenili na pacijentima, radiofarmaceutici namenjeni za medicinsku dijagnostiku *in vivo* moraju da ispunjavaju zahteve farmakopeje: sterilnost, apirogenost, izotoničnost i netoksičnost.

U evropskoj farmakopeji 8.0 (Ph.Eur.8.0) date su metode kontrole kvaliteta kao i parametri kvaliteta sa granicama prihvatljivosti (specifikacijske granice) za svaki pojedinačni parametar za svaki radiofarmaceutik[3]. Jedna od metoda kontrole kvaliteta je i fiziološka raspodela (raspodele radioaktivnog leka po organima eksperimentalnih životinja). Kako u farmakopeji ne postoji monografija za ^{99m}Tc -DPD, koriste se specifikacijske granice date za ^{99m}Tc -metilendifosfonat (^{99m}Tc -MDP). Laboratorija za radioizotope Instituta Vinča dugi niz godina proizvodi Komplet za obeležavanje DPD sa ^{99m}Tc , a biološka kontrola koja je od izuzetnog značaja za procenu kvaliteta proizvedenog kita se izvodi nakon kontrole radiohemijske čistoće. Metoda se radi po smernicama evropske farmakopeje za ^{99m}Tc -MDP [3], uz manje modifikacije i biće predstavljena u ovom radu.

Materijal i metode

Radiofarmaceutski kit: Komplet za obeležavanje DPD sa ^{99m}Tc u obliku belog liofiliziranog praška

Jedna bočica ovog kita sadrži: 11 mg DPD-a (2,3-dikarboksipropan-1,1-difosfonska kiselina), 0.60 mg $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 2 mg p-aminobenzoilglutaminske kiseline i 10 mg NaCl .

Obeležavanje: liofilizirani DPD se obeležava dodatkom 3-10 ml natrijum-pertehnetata

(^{99m}Tc) aktivnosti 1.4 mCi dobijenog iz $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ generatora. Obeležavanje se vrši na sobnoj temperaturi 30 minuta. Ovako pripremljen rastvor ^{99m}Tc -DPD-a je bezbojan i stabilan najmanje 6 sati od momenta završetka pripremanja.

Da bi se uradila biološka kontrola kvaliteta – fiziološka raspodela po organima oglednih životinja, od pripremljenog rastvora ^{99m}Tc -DPD-a pravi se sledeće razblaženje: u 6.5 ml fiziološkog rastvora dodaje se 0.5 ml prethodno pripremljenog rastvora.

Postupak: Za biološku kontrolu kvaliteta koriste se 3 Wistar bela pacova, težine 100-150 grama, starosti mesec dana. Pacovima se injektuje po 0.1ml razblaženog obeleženog leka u lateralnu repnu venu. Pacovi se žrtvuju nakon sat vremena, cervikalnom dislokacijom.

Radioaktivnost u uzorcima krvi, kao i u organima od interesa (pluća, jetra, slezina, bubrezi, mišić, femur) se meri u NaI (TI) gama brojaču (PerkinElmer 2480 WIZARD counter). Radioaktivnost u krvi i organima je merena u odnosu na standard koji predstavlja radioaktivnost one zapremine (0,1 ml) leka koja je bila injektovana životinji. Iz odnosa injektovane (radioaktivnost standarda) i izmerene radioaktivnosti organa izračunata je raspodela radioaktivnosti u organima i krvi, i izražena je kao % injektovane doze (ID)/organu, a kod mišića i femura kao % injektovane doze (ID)/gramu.

Scintigrafija: Za potrebe ovog rada, a što ne predstavlja deo standardne procedure, jedan pacov je pre žrtvovanja anestetiziran intraperitonealnom injekcijom kombinacije ketamin/ksilazin (80-100/10 mg/kg) i snimljen na gama kameri u dorzo-ventralnom položaju. Scintigrafska slika je dobijena na jednoglavoj gama kameri (Simens Basicam, SAD) uz upotrebu LEHR (niskoenergetske visoke rezolucije) kolimatora. Pre studije snimanja, gama kamera je kalibrisana za gama fotone energije 140 keV (^{99m}Tc) sa prozorom širine 3–5%. Slika je snimljena prikupljanjem 500 Kcounts, koristeći veličinu matrice 256×256 .

Izračunavanje injektovane doze: Procenat injektovane doze po organu ili tkivu (% ID/organu) izračunat je korišćenjem sledeće jednačine:

$$\% \text{ ID/organu} = \text{radiaktivnost organa} * 100 / \text{radioaktivnost standarda}$$

Procenat injektovane doze po gramu organa ili tkiva (%ID/g) dobija se deljenjem dobijene vrednosti sa masom organa.

Zahtev farmakopeje za MDP odnosno parametri kvaliteta sa granicama prihvatljivosti (specifikacijske granice) je sledeći[3]:

Maksimalna dozvoljena radioaktivnost u jetri: **1%**

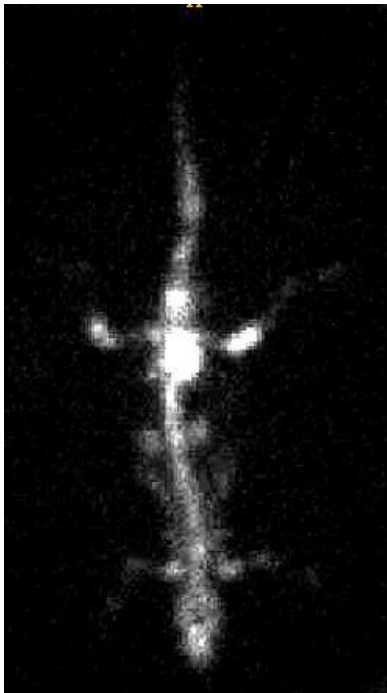
Minimalna dozvoljena aktivnost u femuru: **1.5%/g**

U krvi, nakon korekcije: **0.05% po gramu.**

Biološka kontrola kvaliteta se radi odmah nakon proizvodnje leka, kao i nakon 6 i 12 meseci.

Rezultati i diskusija

Rezultati ispitivanja fiziološke raspodele ^{99m}Tc -DPDa proizvedenog u Laboratoriji za radioizotope Instituta za nuklearne nauke Vinča pokazuju da je lek u granicama prihvatljivosti koje su date u monografiji 0641 *Technetium (^{99m}Tc) medronate injection* evropske farmakopeje 8.0 [3] u svim vremenskim intervalima ispitivanja (Tabela 1.).



Slika 1. Scintigram skeleta pacova nakon 1h od i.v.injekcije ^{99m}Tc DPD

Kod radiofarmaceutika koji se koriste za vizualizaciju skeleta, povećano nakupljanje radiofarmaceutika u jetri može da ometa vizualizaciju, mada je tu ubedljivo veći prihvat u kostima (npr. ^{99m}Tc -DPD u femuru $>1.5\%/g$, u jetri $<1\%/organu$ nakon 1 h od injektovanja). Kod ovih lekova je takođe bitan odnos nakupljanja kost/meko tkivo (uveden je količnik $K_1 = \% \text{ g femura} / \% \text{ ml krvi}$ i $K_2 = \% \text{ gr femura} / \% \text{ gr mišićnog tkiva}$).

Analizom dobijenih rezultata dolazi se do zaključka da komplet ima reproducibilan obrazac biodistribucije. Nakupljanje u femuru je gotovo duplo veće od propisanih vrednosti, odmah nakon proizvodnje ($2.9 \pm 0.1\%$), kao i 6 meseci nakon proizvodnje leka ($2.9 \pm 0.3\%$), dok je nakon 12 meseci nešto niže ($2.3 \pm 0.1\%$), ali ipak značajno iznad propisane vrednosti koja je neophodna za puštanje leka u promet. Nakupljanje u jetri je manje od 1%, nezavisno od vremena ispitivanja.

Treba posebno istaći da je kod ove metode za biološku kontrolu kvaliteta ^{99m}Tc DPDa od velikog značaja gore pomenuto razblaženje obeleženog leka. Naime, dugogodišnje iskustvo u našoj laboratoriji je pokazalo da se najbolji rezultati biodistribucije na pacovima dobijaju kada je koncentracija DPD-a $70\text{-}80 \mu\text{g/kg}$ telesne težine, tj. da

kontrola kvaliteta na eksperimentalnim životinjama zavisi od koncentracije DPD[2]. Pri višim koncentracijama rezultati nisu pouzdani jer dolazi do velikog nakupljanja u jetri. Kako kod difosfonata imamo značajan uticaj koncentracije aktivne supstance na biodistribuciju radiofarmaceutika, doza koja se daje pacovima je preračunata doza po kg telesne težine pacova a koja se daje pacijentima telesne težine od 70 kg. Doza treba da bude oko 0,8 μg DPD po pacovu. U rutinskoj praksi količina DPDa je $20\text{-}100 \mu\text{g/kg}$ telesne mase pacijenta.

Tabela 1. Rezultati fizioloske raspodele ^{99m}Tc DPD odmah nakon proizvodnje, nakon 6 i 12 meseci

Ispitivanje fiziološke raspodele	(Eur.Ph.) zahtev:	Rezultat nakon proizvodnje	Rezultat nakon 6 meseci	Rezultat nakon 12 meseci
-krv/g	<0.05%	0.03±0.01%*	0.03±0.01%*	0.03±0.01%*
-jetra	<1%	0.5±0.1%*	0.7±0.1%*	0.8±0.1%*
-kost/F	>1.5%	2.9±0.1%*	2.9±0.3%*	2.3±0.1%*
-kost/g	>1.5%	20.3±1.8%*	14.3±1.8%*	14.7±3.6%*

*Proširena nesigurnost merenja radioaktivnosti uzorka je 6.3% (k=2) i pridružena je rezultatima merenja

Ispitivanje biološke raspodele radiofarmaceutika je od velikog značaja, jer u zavisnosti od nakupljanja u ciljnom organu u odnosu na organe koji nisu od interesa, pored ostalih faktora, zavisiće i kvalitet dobijenog scintigrama (slika 1.).

Drugi veoma važan aspekt ispitivanja fiziološke raspodele proizvedenog ^{99m}Tc-DPD, jeste aspekt zaštite od zračenja samih pacijenata. Smanjivanje vrednosti ekvivalentne doze zračenja, a time i efektivne doze zračenja u toku dijagnostičkog postupka sa ^{99m}Tc-DPD, moguće je postići samo ukoliko se primeni lek koji se minimalno nakuplja u organima koji nisu od interesa za ovu dijagnostičku proceduru odnosno čije su vrednosti značajno ispod farmakopejski dozvoljenih granica.

U skladu sa zakonskom regulativom u oblasti zdravstvene zaštite, proizvodnje i isporuke radiofarmaceutika i ovlašćenja za rad sa njima, institucije koje proizvode radiofarmaceutike odgovorne su za njihovu efikasnost (specifičnu lokalizaciju) i kvalitet (radionuklidnu i radiohemijsku čistoću, sterilnost, apirogenost).

Zaključak

Vrednosti ekvivalentnih i efektivnih doza u toku dijagnostičkih procedura mogu se smanjiti samo ukoliko se primenjuju radiofarmaceutici u skladu sa zahtevima Farmakopeje. Iako fizičke karakteristike korišćenog izotopa imaju vrlo bitnu ulogu u određivanju doze, i sama biodistribucija obeleženog jedinjenja određuje vreme zadržavanja radionuklida u organizmu, pa samim tim i vreme ozračivanja. Metode biološke kontrole kvaliteta radiofarmaceutika je zbog toga neophodno izvoditi za svaku proizvodnu seriju pre puštanja serije leka u promet. Ove kontrole kvaliteta se izvode na eksperimentalnom modelu (pacovi). U zavisnosti od dobijenih rezultata donosi se odluka o pujanju serije leka u promet i samim tim i primena u pacijenta.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Ev. br. 451-03-68/2023-14/200017).

Literatura:

- [1] Divna Dj. Djokić, Drina Lj. Janković, Nadežda S. Nikolić. Labeling, characterization, and in vivo localization of a new ^{90}Y -based phosphonate chelate 2,3-dicarboxypropane-1,1-diphosphonic acid for the treatment of bone metastases: Comparison with $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -DPD complex. *Bioorganic & Medicinal Chemistry*, 2008, 16(8):4457-4465.
- [2] Maksin, T., Vučina, J., Djokić, D. *et al.* Statistical Evaluation of the Quality Control Results of $^{99\text{m}}\text{Tc}(\text{Sn})$ -DPD. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2000, 243: 669–671.
- [3] European pharmacopeia 8.0

METHOD FOR INVESTIGATION OF PHYSIOLOGICAL DISTRIBUTION OF ^{99m}Tc DPD

Zorana MILANOVIĆ¹, Marija MIRKOVIĆ¹, Magdalena RADOVIĆ¹, Marko PERIĆ¹,
Dragana STANKOVIĆ¹, Aleksandar VUKADINOVIĆ¹, Sanja VRANJEŠ-ĐURIĆ¹,
Drina JANKOVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke Vinca, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za radioizotope, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Srbija*

ABSTRACT

Radiopharmaceuticals used to examine the skeletal system are of invaluable importance in nuclear medicine, both for the diagnosis of primary bone tissue tumors and metastases. Before administration to patients, these radiopharmaceuticals undergo various physico-chemical and biological tests. Investigation of the physiological distribution of the drug *in vivo* is of crucial importance because the quality of the obtained scintigram depends on the accumulation of the drug in the target organ (skeleton), as well as the radiation dose received by individual organs and tissues. The European pharmacopoeia (Ph.Eur.) provides quality control methods and quality parameters with acceptance limits (specification limits) for ^{99m}Tc -methylenediphosphonate (^{99m}Tc -MDP). The method of testing the physiological distribution of ^{99m}Tc -DPD in the Laboratory for Radioisotopes, which is presented in this paper, is done according to the guidelines of the European Pharmacopoeia for ^{99m}Tc -MDP, with minor modifications. Results of biodistribution on Wistar rats showed that ^{99m}Tc -DPD produced in the Laboratory for Radioisotopes met all the set criteria, both immediately after the production and after six and twelve months from production.

AUTOMATIZACIJA PROCESA PROIZVODNJE RADIOFARMACEUTIKA U CILJU SMANJENJA DOZE ZRAČENJA OPERATERA

Aleksandar VUKADINOVIĆ¹, Miroslav RAVLIĆ², Milovan MATOVIĆ³,
Drina JANKOVIĆ¹, Marija MIRKOVIĆ¹, Magdalena RADOVIĆ¹, Zorana MILANOVIĆ¹,
Marko PERIĆ¹, Dragana STANKOVIĆ¹, Milutin JEVREMOVIĆ¹,
Sanja VRANJEŠ-ĐURIC¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za radioizotope, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Srbija*
- 2) *PRIZMA d.o.o., Dr Zorana Đinđića 13, Kragujevac, Srbija*
- 3) *Medicinski fakultet, Univerzitet u Kragujevcu, Svetozara Markovica 69, Kragujevac, Srbija*

Autor za korespondenciju: Aleksandar VUKADINOVIĆ, vukadinovic@vinca.rs

SAŽETAK

Laboratorija za radioizotope Instituta Vinča je jedinstven centar u regionu koji poseduje Rešenja Ministarstva zdravlja Republike Srbije i Direktorata za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost Srbije za proizvodnju radiofarmaceutika. Radiofarmaceutik koji se proizvodi više od 40 godina u Laboratoriji za radioizotope, a primenjuje u terapiji tumora štitaste žlezde, kao i hipertireozu su kapsule natrijum-jodida (I-131). Radijacioni efekti I-131 na ćelije štitaste žlezde potiču od beta-zračenja koje emituje I-131 tokom radioaktivnog raspada u samoj štitastoj žlezdi jer se I-131 nakon oralne primene nakuplja prvenstveno u štitastoj žlezdi u kojoj ima dugu retenciju. Za efikasnu terapiju, ali u isto vreme u cilju smanjenja izloženosti nepotrebним dozama, za svakog pacijenta određuje se odgovarajuća doza I-131 koju je neophodno da primi, odnosno primenjuje se tzv. personalizovana terapija.

U radu je opisan postupak proizvodnje kapsula I-131 u Laboratoriji za radioizotope putem manualnog punjenja kapsula rastvorom I-131, kao i osnovni zahtevi koje je neophodno da sistem za automatsku proizvodnju radiofarmaceutika ispuni, a to su pre svih, odgovarajuća zaštita operatera od zračenja, jednostavna upotreba i kompjuterska kontrola.

Uvod

Jod-131 (I-131) je zbog svojih fizičko-hemijskih karakteristika (vremena poluraspada od 8,02 dana i emisije beta zračenja), kao i farmakokinetike, idealan radioizotop za terapiju oboljenja štitaste žlezde. Nakon oralne primene u obliku želatinoznih kapsula, natrijum-jodid I-131 se brzo resorbuje iz gornjeg dela gastrointestinalnog trakta (90 % u toku 60 minuta), najvećim delom nakuplja u ćelijama štitaste žlezde, gde beta-zračenje I-131, smanjuje funkciju ćelija štitaste žlezde i ćelijsku deobu, nakon čega dolazi do ćelijske smrti [1-5]. Mali domet beta čestica od 0.5 mm i skoro potpuno preuzimanje I-131 u štitastoj žlezdi dovodi do zanemarljivog efekta zračenja na ostala tkiva. Za bezbednu i efikasnu terapiju, što preciznije određivanje doze I-131 za svakog pacijenta je od velikog značaja, jer primena veće doze od neophodne dovodi do nepotrebno izloženosti pacijenta zračenju, dok primena niže doze do neefikasne terapije. Iz tog razloga primenjuje se tzv. personalizovana terapija, za koju je neophodno svaku kapsulu I-131 pripremiti za određenog pacijenta u zavisnosti od dijagnoze, veličine štitaste žlezde, fiksacije i klirensa radiojodida u štitastoj žlezdi, uzrasta pacijenta, i drugih parametara [6]. Proizvođači radiofarmaceutika proizvode velike serije kapsula iste aktivnosti i nemaju takvu fleksibilnost u radu kao manje radiohemijske laboratorije koje su u

могућности да ручно припремају терапијске капсуле I-131. Мануелни метод припреме се користи у Институту Винча за припрему више од 1000 капсула годишње, активности од 111 MBq до 3700 MBq I-131, због чега оператори често примaju високе дозе зрачења. Пошто на тржишту не постоји одговарајући аутоматизовани систем за ту намену, циљ је развој аутоматског система за припрему појединачних капсула I-131 прилагођених захтевима нуклеарно-медицинских и радиохемијских центара, а за потребе великог броја пацијената.

Rezultati i diskusija

Trenutno se razlivanje rastvora I-131 u želatinske kapsule radi ručno, preko zaštitnih rukavica, u vrućoj ćeliji sa olovnim ciglama, na taj način što se u zavisnosti od radioaktivne koncentracije matičnog rastvora I-131, određuje zapremina I-131-rastvora koja se nanosi špricom u inertni punilac koji se nalazi u tvrdoj želatinskoj kapsuli. U slučaju nanošenja pogrešne aktivnosti u kapsulu, u nju se naknadno dodaje potrebna količina matičnog rastvora u cilju korekcije aktivnosti, čime se produžava vreme ekspozicije operatera zračenju.



Slika1. Prikaz manuellnog punjenje kapsula rastvorom I-131 određene aktivnosti i vruća ćelija u kojoj se vrši proizvodnja radiofarmaceutika

Aktivnost matičnog rastvora I-131 iz koga se vrši razlivanje u kapsule je često i više od 200 GBq tako da su doze koje operatori primaju na rukama, iako znatno manje od dozvoljenih, velike. Kumulativna ekvivalentna doza za 2022. godinu za ekstremitete operatera koji rade u proizvodnji I-131 kapsula je od 32.25 mSv do 83.31 mSv. Stoga je naš cilj da se veći deo postupka proizvodnje radiofarmaceutika automatizuje, da bi se smanjila izloženost operatera zračenju, omogućila automatska kalibracija doziranja i povećala tačnost doziranja [7-9].

Osnovni početni tehnički zahtevi koju su operatori imali za automatizovani sistem su:

jednostavnost pri korišćenju,

kompjuterska kontrola,

zaštita od zračenja za operatera,

kontinualan rad mašine u prisustvu jonizujućeg zračenja,

тачност размераванја матичног раствора $\pm 10\%$ од жељене запремине, у опсегу запремина 3 μL - 100 μL ,

мерење активности матичног раствора дозираних у капсуле,

паковање напуњених капсула,

штампање потребних пратећих података капсуле (активност, дан доспећа, одредиште, и томе слично).

У постојећој оловној ћелији у којој се тренутно ради производња I-131 капсула, није могуће поставити нови систем јер је ћелија мањих димензија намењена за ручно пуњење капсула раствором I-131, тако да је осим производњи система неопходно приступити и изради нове оловне ћелије за смештај аутоматизованог система повезаног са системом вентилације.

С обзиром да је проценјено да продуктивност машине није од примарног значаја, јер је производња малосеријска са максимално 100 терапијских капсула I-131 произведених у једној серији, приоритет се дао безбедности рада, смањењу изложености оператора зрачењу и минимизацији могућности настanka контаминације у случају проблема у раду машине. Сва три захтева могу бити испуњена једино уколико се капсула направи тек након потпуне завршене производње и паковања претходне капсуле. У том случају би у било ком тренутку током процеса пуњења и паковања изван матичног раствора била количина радиоактивног I-131 потребна за пуњење само једне капсуле чиме би се умањила опасност од контаминације по машини и врућој ћелији. Такође, у простор у коме постоји јонизујуће зрачење сместиће се само неопходне електромеханичке компоненте (прекидачи, мотори, конектори и каблови) неосетљиве на јонизујуће зрачење, а све електронске полупроводничке компоненте које управљају радом машине биће изван њега.

Diskusija i zaključak

Аутоматизација производње радиофармацевтика значајно би довела до смањења дозе зрачења оператора и околине, и истовремено обезбедила поуздану и прецизну производњу. Ово би у великој мери омогућило да пацијенти приме оптималну дозу радиофармацевтика прилагођену њиховим потребима у одговарајућим временским интервалима, што би додатно повећавало ефикасност терапије уз минимизирање ефективне дозе коју би пацијент примио.

Аутоматизација производње би имала највећи допринос при заштити од зрачења оператора укључених у производњу радиофармацевтика јер би се значајно смањила примљена доза у процесу производње.

Zahvalnica

Пројекат аутоматизације система производње радиофармацевтика је финансирао Иновациони фонд Републике Србије у оквиру Програма Доказ концепта, пројекат PoC5628 и Програма Transfer tehnologija TT1118.

Literatura

- [1] D. V. Becker, C. T. Sawin. Radioiodine and thyroid disease: the beginning, Seminars in Nuclear Medicine, Vol.26, No.3, 1996, 155-164, ISSN 0001-2998.
- [2] L. Markus, P. Andreas, H. Heriber, V. A. Frederik. Radioiodine Therapy, Seminars in Nuclear Medicine, Vol.47 No.2, 2017, 126-134, ISSN 0001-2998.
- [3] Weetman, Anthony P. Radioiodine treatment for benign thyroid diseases, Clinical Endocrinology, Vol.66 No.6, 2007, 757-764, ISSN 0300-0664.

-
- [4] M. R. Haymart, M. Banerjee, A. K Stewart, R. J. Koenig, J. D. Birkmeyer, J. J. Griggs. Use of Radioactive Iodine for Thyroid Cancer. *JAMA*, Vol.306 No.7, 2011, 721–728.
- [5] B. K. Malamos, et al. The use of radioiodine for the diagnosis and treatment of thyroid diseases, *European Journal of Endocrinology*, Vol.32 No.3, 1959, 311-329.
- [6] J. Vucina, N. Nikolic, E. Lazic, M Orlic, R. Han. Radioisotopes and Radiopharmaceuticals in Thyroidology. 51 Conference for Electronics, Telecommunications, Computers, Automation and Nuclear Technique, 2007, Belgrade, Serbia
- [7] Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti, Sl. glasnik RS, 95/2018 i 10/2019
- [8] Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima, Sl. glasnik RS 86/2011 i 50/2018
- [9] A. Freud, N. Hirshfeld, A. Canfi, Y. Melamud. Production of ¹³¹I gelatin capsules. IAEA - Annual Report 1997, 1997.

AUTOMATION OF THE PRODUCTION OF RADIOPHARMACEUTICAL WITH THE AIM TO REDUCE THE OPERATOR'S RADIATION DOSE

Aleksandar VUKADINOVIĆ¹, Miroslav RAVLIĆ², Milovan MATOVIĆ³,
Drina JANKOVIĆ¹, Marija MIRKOVIĆ¹, Magdalena RADOVIĆ¹, Zorana MILANOVIĆ¹,
Marko PERIĆ¹, Dragana STANKOVIĆ¹, Milutin JEVREMOVIĆ¹,
Sanja VRANJEŠ-ĐURIC¹

- 1) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Laboratory for radioisotopes, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade, Serbia*
- 2) *PRIZMA d.o.o., Dr Zorana Đinđića 13, Kragujevac, Serbia*
- 3) *Faculty of Medical Sciences, University of Kragujevac, Svetozara Markovica 69, Kragujevac, Serbia*

ABSTRACT

The Laboratory for radioisotopes of the Vinča Institute is a unique center in the region with licences of the Ministry of Health of the Republic of Serbia and the Directorate for Radiation and Nuclear Safety and Security of Serbia for the production of radiopharmaceuticals. Sodium iodide (I-131) capsules are radiopharmaceuticals that have been produced for more than 40 years in the Laboratory for Radioisotopes, and are used in the treatment of tumors of thyroid gland, as well as in hyperthyroidism. The radiation effects of I-131 on thyroid cells originate from beta-radiation emitted by I-131 during radioactive decay in the thyroid gland itself because I-131 after oral administration accumulates primarily in the thyroid gland where it has a long retention. For the effective therapy, but at the same time in order to reduce exposure to unnecessary high doses, the appropriate dose of I-131 is determined for each patient, in the so-called personalized therapy.

The paper describes the current procedure for the production of I-131 capsules in the Laboratory for Radioisotopes by manually filling the capsules with I-131 solution and the basic requirements for design the system for automating the production of radiopharmaceuticals, which above all must provide adequate protection for the operator from radiation, must be user friendly and computer-controlled.

ДОЗИМЕТРИЈА

DOSIMETRY

USPOSTAVLJANJE ETALONSKOG POLJA ZA MALE VREDNOSTI JAČINE DOZNOG EKVIVALENTA

Miloš ŽIVANOVIĆ¹, Ivana KOMATINA^{1,2}, Nikola KRŽANOVIĆ¹, Miloš ĐALETIĆ¹,
Srboljub STANKOVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*
- 2) *Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu, Studentski trg 10-12, Beograd*

Autor za korespondenciju: Miloš ŽIVANOVIĆ, milosz@vinca.rs

SAŽETAK

U ovom radu je prikazano korišćenje scintilacionog detektora za etaloniranje polja izvora gama zračenja male aktivnosti, za primenu u etaloniranju fotonskih dozimetara. Sledivost je obezbeđena tako što je scintilacioni detektor etaloniran koristeći jonizacionu komoru i izvor veće aktivnosti za nekoliko vrednosti jačine kerme, što je omogućilo da se odredi i njegova linearnost. Identifikovani su najvažniji doprinosi mernoj nesigurnosti etaloniranja polja, a kombinovana merna nesigurnost iznosi 4,6% ($k = 2$). Mala merna nesigurnost je od posebnog značaja za overavanje dozimetara.

Uvod

Etaloniranje, overavanje i ispitivanje dozimetara su od izuzetnog značaja za osiguranje kvaliteta u svim dozimetrijskim merenjima u delatnostima koje podrazumevaju primenu izvora u medicini, industriji ili nauci, kao i za rad sa sekundarnim sirovinama, službe bezbednosti i tako dalje [1]. Istraživanja su pokazala da pojedini tipovi dozimetara pokazuju značajna odstupanja od referentnih vrednosti, za pojedine energije ili upadne uglove zračenja ili vrednosti jačine ekvivalenta doze [2-6]. Od 2023. godine, svi aktivni fotonski dozimetri za zaštitu od zračenja koji se koriste u Srbiji u funkciji zaštite zdravlja, zaštite životne sredine, za izdavanje rezultata merenja ili druge zakonske potrebe moraju biti overeni. S obzirom na to da merna nesigurnost referentnih vrednosti ulazi u grešku pokazivanja dozimetra, od kritičnog je značaja da merna nesigurnost etaloniranja polja bude što manja [7]. U velikom broju zemalja, metrološku podršku vezanu za dozimetriju pružaju Laboratorije za etaloniranje sa sekundarnim etalonima (Secondary Standards Dosimetry Laboratory, SSDL) [8]. U Republici Srbiji postoji jedan SSDL, koji se nalazi u Institutu „Vinča“.

Dozimetri koji se koriste za zaštitu od zračenja se etaloniraju, ispituju ili overavaju u referentnim poljima zračenja uspostavljenim u skladu sa standardom ISO 4037-1:2019 [9]. Međutim, navedeni standard obuhvata samo jačine doza veće od $1 \mu\text{Gy h}^{-1}$, dok se u praksi dozimetrijska merenja veoma često obavljaju pri jačini doze koja je oko prirodnog fona (oko 100 nSv/h). Merni opseg velikog broja instrumenata takođe pokriva i jačine doza koje nisu obuhvaćene standardom. Zbog toga se javlja potreba za etalonskim poljima koja prevazilaze obim standarda.

Izazovi etaloniranja polja zračenja sa malim vrednostima jačine doze obuhvataju izbor merne instrumentacije (jonizacione komore referentne klase ne mogu da mere tako niske vrednosti), procenu merne nesigurnosti i tretman prirodnog fona koji može biti veoma značajan u ovakvim slučajevima.

Materijali i metode

Laboratorija za etaloniranje poseduje nekoliko etalonskih polja ^{137}Cs i ^{60}Co , sa izvorima različitih aktivnosti. Sve aktivnosti i jačine doza su u ovom radu izražene na 24.4.2023. U laboratoriji su izmerene vrednosti prirodnog fona od 70 nSv/h do 90 nSv/h. Za etaloniranje u zaštiti od zračenja se koriste različita rastojanja od izvora do dozimetra, da bi se postigle različite jačine doza. Opseg jačina doza koji je moguće postići je od oko 70 nGy/h do 9 Gy/h za ^{60}Co , odnosno od 7 $\mu\text{Gy/h}$ do 6 mGy/h za ^{137}Cs . U ovom radu je etalonirano polje koje se ostvaruje izvorom broj 2 (^{60}Co , nominalna aktivnost 6,7 MBq), dok je merilo korišćeno za etaloniranje izvora 2 etalonirano u polju koje se ostvaruje izvorom broj 3 (^{60}Co , 100 MBq). Korišćena su rastojanja između 119,5 cm i 524,5 cm. Pored toga, za analizu rezultata su korišćeni podaci vezani za etaloniranje izvora većih aktivnosti, broj 3, 4, 5 (^{60}Co), 6, 7 i 8 (^{137}Cs). Svi analizirani izvori se nalaze u identičnim nosačima, koriste identične kolimatore i identičnu kalibracionu klupu i prostoriju, pa razlike u doprinosu rasejanog zračenja mogu da potiču samo od različitih energija zračenja izotopa ^{60}Co i ^{137}Cs .

Za etaloniranje polja izvora većih aktivnosti (uključujući izvor 3) su korišćene jonizacione komore PTW 32002, sa mernim opsegom iznad približno 18 $\mu\text{Gy/h}$ i PTW 32003, sa mernim opsegom približno od 2,2 $\mu\text{Gy/h}$. Merni opseg je približan zato što je moguće meriti i niže vrednosti jačina doza u odgovarajućim uslovima: ako su elektrometar i kabl dovoljno visokog kvaliteta da se obezbedi niska struja curenja, ako je fon zračenja nizak i stabilan i ako je dovoljno dobra statistika, što se postiže povećanim brojem merenja.

Za etaloniranje izvora 2 je korišćen scintilacioni detektor Automess 6150 AD-b. Ovaj dozimetar je korišćen zbog izuzetno niskog inherentnog fona (reda veličine 1 nSv/h), visoke osetljivosti i dobrih metroloških osobina [10]. Scintilacioni detektor je etaloniran na 7 različitih rastojanja u polju izvora 3 u veličini kerma u vazduhu, korišćenjem jonizacionih komora. Na svakom rastojanju je izvršeno po 10 merenja. Navedeni detektor nije konstruisan za merenje kerme u vazduhu, već ambijentalnog ekvivalenta doze, što znači da može da ima značajnu energetska i ugaonu zavisnost. Međutim, s obzirom na to da oba izvora emituju zračenje iste energije i da su upadni ugao zračenja i geometrija bili identični, doprinos ovih uticaja se može zanemariti. Iz ovih etaloniranja je određena nelinearnost detektora, a stabilnost je određena iz istorijskih podataka o etaloniranju.

U drugom koraku je izvor 2 etaloniran na istim rastojanjima korišćenjem scintilacionog detektora, takođe sa 10 merenja po mernoj tački. Sve vrednosti su pomnožene kalibracionim faktorom određenim u prethodnom koraku i od svih vrednosti je oduzet fon, da bi se dobila vrednost kerme u vazduhu. Zatim je za svako rastojanje vrednost kerme u vazduhu pomnožena sa kvadratom rastojanja. Rezultat etaloniranja polja je srednja vrednost proizvoda kerme i kvadrata rastojanja, Dr^2 . Ovaj način etaloniranja polja se zasniva na pretpostavci da je proizvod Dr^2 približno konstantan. Do odstupanja od konstantne vrednosti dolazi zbog atenuacije gama zračenja u vazduhu (oko pola procenta po metru za ^{60}Co), kao i zbog rasejanog zračenja sa kolimatora i atenuatora (ako se koristi), klupe, nosača, poda i zidova.

Rezultati i diskusija

Rezultati etaloniranja scintilacionog detektora su prikazani u tabeli 1 (r je rastojanje, K_a je jačina kerme u vazduhu, N_k kalibracioni koeficijent, a U proširena kombinovana merna nesigurnost).

Tabela 1. Rezultati etaloniranja scintilacionog detektora

r (cm)	Referentna komora	K_a ($\mu\text{Gy/h}$)	N_k (Gy/Sv)	U ($k=2$)
119,5	PTW 32002	21,76	0,821	1,6%
150,0	PTW 32002	13,96	0,831	1,4%
200,0	PTW 32002	7,824	0,829	1,5%
200,0	PTW 32003	7,782	0,825	1,1%
300,0	PTW 32003	3,481	0,832	1,4%
400,0	PTW 32003	1,973	0,845	1,6%
500,0	PTW 32003	1,251	0,848	1,6%
524,5	PTW 32003	1,142	0,844	2,3%

Iz proračuna je isključeno etaloniranje na najvećem rastojanju, zbog veće merne nesigurnosti. Srednja vrednost kalibracionog faktora je 0,833 Gy/Sv. Za mernu nesigurnost je uzeto 2% ($k=2$), jer toliko iznose mogućnosti merenja SSDL u skladu sa obimom akreditacije. Proširena merna nesigurnost nelinearnosti iznosi 1,61%, a dobijena je kao polovina razlike najvećeg i najmanjeg kalibracionog faktora podeljena sa srednjom vrednošću kalibracionog faktora.

Stabilnost scintilacionog detektora je određena na osnovu rezultata etaloniranja u veličini ambijentalni ekvivalent doze od 2015. do 2023. godine – ukupno 5 etaloniranja. Merna nesigurnost stabilnosti je izračunata kao relativna standardna devijacija kalibracionih faktora za jačinu doznog ekvivalenta koja odgovara opsegu jačina doza korišćenih u ovom radu, a koja je dovoljno visoka da se postigne prihvatljiva merna nesigurnost. Ovako određena merna nesigurnost iznosi 1,05%. S obzirom na promenu metode izbora tačaka tokom navedenih 8 godina, merna tačka se menjala između 3 $\mu\text{Sv/h}$ i 5 $\mu\text{Sv/h}$. Ovako određena merna nesigurnost nestabilnosti je procenjena i predstavlja najgori slučaj, jer su se u prethodnom periodu promenile preporučene vrednosti pojedinih fizičkih veličina (na primer prosečna energija jonizacije vazduha) i u nju ulaze sve statističke merne nesigurnosti prilikom ponovnog etaloniranja polja i referentnih jonizacionih komora, kao i stabilnost jonizacionih komora.

Rezultati etaloniranja polja izvora 2 su prikazani u tabeli 2.

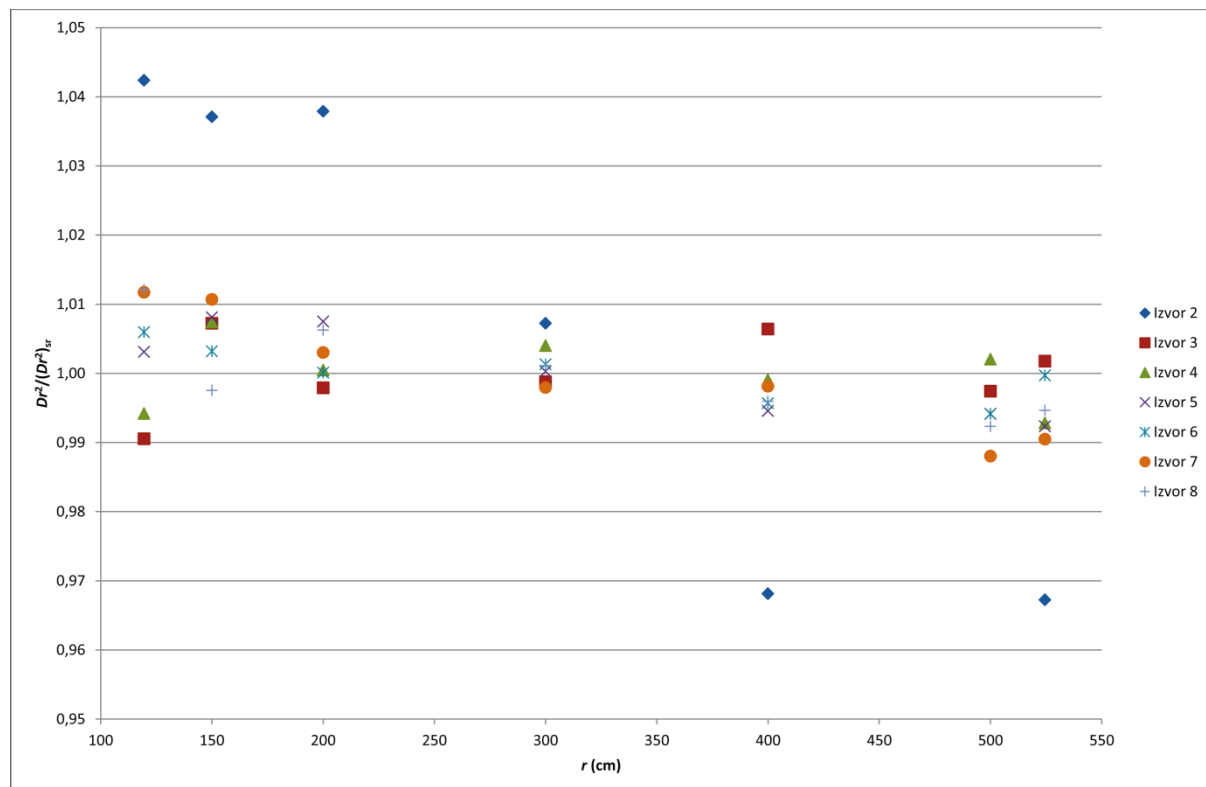
Tabela 2. Rezultati etaloniranja polja izvora 2

r (cm)	K_a (nGy/h)	Dr^2 (Gycm ² /h)
119,5	1,370	0,01956
150,0	0,865	0,01946
200,0	0,487	0,01948
300,0	0,210	0,01890
400,0	0,114	0,01817
500,0	0,071	0,01764
524,5	0,066	0,01815

Iz rezultata se vidi da je vrednost Dr^2 praktično konstantna na manjim rastojanjima, u opsegu jačina doza između 500 nGy/h i 1,4 $\mu\text{Gy/h}$. Za niže jačine doza dolazi do velikih promena vrednosti Dr^2 , što je posledica nekoliko faktora: lošija statistika zbog vrlo niskih jačina doze, veliki uticaj fona (fon je veći od izmerene vrednosti u poslednje dve tačke) i potencijalno nelinearnosti dozimetra za tako male jačine doza (nelinearnost u tom opsegu nije mogla da bude ispitana). Pored toga, izvor 2 se koristi za ostvarivanje jačina ekvivalenta doze od

500 nSv/h, a povremeno od 300 nSv/h, dok niže jačine ekvivalenta doze nisu od interesa. Zbog svega navedenog, kako bi se smanjila merna nesigurnost, za proračun su uzete samo prve tri tačke.

Postoji još jedan argument da je nelinearnost etaloniranja polja na većim rastojanjima posledica nesavršenosti referentnog merila i statistike, a ne nesavršenosti polja. Naime, rezultati etaloniranja svih izvora iz 2023. godine za različita rastojanja, normirani na srednju vrednost ($Dr^2/(Dr^2)_{sr}$), su prikazani na slici 1. Iz rezultata se vidi da su rezultati etaloniranja na svim rastojanjima u okviru $\pm 1,2\%$ od srednje vrednosti, osim za izvor 2, gde su odstupanja veća od 4%. S obzirom na to da svi izvori koriste isti kolimator i nosače, kao i da je geometrija kolimatora i sobe identična, ne postoji fizički razlog za veće odstupanje vrednosti kod izvora 2, odnosno u tom slučaju je uzrok odstupanja nesavršenost referentnog merila i loša statistika. Prema svemu navedenom, rezultat etaloniranja polja broj 2 je $0,01950 \text{ Gy cm}^2/\text{h}$.



Slika 1. Normirani rezultati etaloniranja izvora broj 2 do 8.

Određivanje merne nesigurnosti etaloniranja ovakvog polja nije trivijalan zadatak. Prethodno je predstavljen budžet merne nesigurnosti za polje izvora veće aktivnosti, koje je etalonirano jonizacionom komorom [11], a u nastavku je predstavljen budžet merne nesigurnosti za etaloniranje korišćenjem scintilacionog detektora.

Na prvom mestu, mernoj nesigurnosti doprinose kalibracioni koeficijent referentnog merila i njegova nelinearnost i dugovremenska stabilnost. Pored toga, određena je standardna devijacija svih merenja na tri rastojanja koja su korišćena u proračunu i ona iznosi 1,37%. U ovom slučaju se koristi standardna devijacija umesto standardne merne nesigurnosti srednje vrednosti, jer su od interesa varijacije proizvoda Dr^2 sa rastojanjem. Standardna merna nesigurnost merenja fona iznosi 2,5 nSv/h, što predstavlja 0,36% pokazivanja scintilacionog detektora na rastojanju od 200 cm (uzet je najgori slučaj; treba obratiti pažnju da je ova vrednost u sivertima, dok je u tabeli 2 data vrednost u grejima). S obzirom na to da u

proračun ulazi rastojanje od centra izvora do referentne tačke dozimetra, a obe ove tačke nisu dovoljno dobro poznate, za mernu nesigurnost rastojanja je uzeto 0,5 cm, a uticaj na etaloniranje izvora je izračunat za najgori slučaj, odnosno za najmanje rastojanje. Merenja temperature i pritiska ne utiču na etaloniranje izvora 2. Pojednostavljeni budžet merne nesigurnosti je dat u tabeli 3, gde je u relativna standardna merna nesigurnost, a c osetljivost. Osetljivost za fon je izračunata kao odnos pokazivanja dozimetra pri fonu i u tački sa najmanjom vrednošću jačine doze, a osetljivost za rastojanje iznosi 2 jer doza zavisi od kvadrata rastojanja.

Tabela 3. Budžet merne nesigurnosti za etaloniranje polja izvora male aktivnosti

R.b.	Uzrok merne nesigurnosti	u	c	$(cu)^2$
1	Kalibracioni faktor referentnog merila	1,00%	1	1,00E-04
2	Stabilnost referentnog merila	1,05%	1	1,11E-04
3	Nelinearnost referentnog merila	0,93%	1	8,63E-05
4	Merna nesigurnost tipa A za Dr^2	1,37%	1	1,89E-04
5	Fon	3,01%	0,12	1,30E-05
6	Rastojanje	0,24%	2	2,33E-05
	Kombinovana merna nesigurnost	2,29%	1	5,22E-04

Etaloniranje dozimetara korišćenjem etalonskog polja podrazumeva još nekoliko koraka, koji imaju svoju mernu nesigurnost, pa je u tom slučaju ukupna merna nesigurnost svakako veća.

Zaključak

Etaloniranje polja zračenja i etaloniranje dozimetara u zaštiti od zračenja u uslovima vrlo niskih jačina doza nisu pokriveni relevantnim standardima. Takođe nije moguće koristiti jonizacione komore kao referentna merila. Međutim, scintilacioni detektori visokog kvaliteta mogu biti korišćeni za etaloniranje polja. Sledivost se obezbeđuje tako što se scintilacioni detektor etalonira u polju izvora veće aktivnosti, a zatim se detektor koristi za etaloniranje polja niže aktivnosti. Ova procedura uzrokuje veću mernu nesigurnost, a kako se vrednosti jačine doza približavaju vrednostima fona, merna nesigurnost postaje sve veća, dok na kraju ne postane prevelika za praktičnu primenu. Međutim, istraživanja sa izvorima većih aktivnosti pokazuju da se etaloniranje izvora na malim rastojanjima, gde je veća jačina doze, može veoma pouzdano iskoristiti i na većim rastojanjima, pod uslovom da je geometrija kalibracione sobe dobro poznata.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/ 200017).

Literatura

- [1] IAEA Safety Standards, Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards, General Safety Requirements Part 3, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2014
- [2] N. Kržanović, H. Zutz, O. Hupe, M. Zivanović, S. Ketelhut, M. Luchkov. Harmonization of IEC type testing requirements and test methods for active area

- dosimeters in environmental monitoring, *Radiation Physics and Chemistry* Vol.198, 2022, 110291, <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2022.110291>
- [3] M.Z. Živanović, A.F. Šabeta, N.Lj. Kržanović, V.D. Makarić, M.V. Djaletić, M.R. Stupar, S.J. Stanković. Comparison of calibration factors for field-class dosimeters, *Nuclear Technology & Radiation Protection* Vol.32 No.2, 2022, 103-110, <https://doi.org/10.2298/NTRP2202103Z>
- [4] V. Morosh, A. Röttger, S. Neumaier, F. Krasniqi, M. Živanović, N. Kržanović, G. Pantelić, G. Iurlaro, F. Mariotti, L. Sperandio, S. Bell, S. Ioannidis, M. Kelly, M. Sangiorgi. Investigation into the performance of dose rate measurement instruments used in non-governmental networks, *Radiation Measurements* Vol.143, 2021, 106580, <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2021.106580>
- [5] N. Kržanović, K. Stanković, M. Živanović, M. Đaletić, O. Ciraj-Bjelac. Development and testing of a low cost radiation protection instrument based on an energy compensated Geiger-Müller tube, *Radiation Physics and Chemistry* Vol.164, 2019, 108358, <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.108358>
- [6] N. Kržanović, M. Živanović, O. Ciraj-Bjelac, Đ. Lazarević, S. Čeklić, S. Stanković. Performance Testing of Selected Types of Electronic Personal Dosimeters in X- and Gamma radiation fields, *Health Physics* Vol.113 No.4, 2017, 252-261, <https://doi.org/10.1097/HP.0000000000000704>
- [7] Pravilnik o aktivnim dozimetrima fotonskog zračenja koji se koriste u zaštiti od jonizujućeg zračenja, Sl. gl. RS 144/22, 2022.
- [8] SSDL Network Charter, Second Edition, The IAEA/WHO network of secondary standards dosimetry laboratories, International Atomic Energy Agency, Vienna 2018.
- [9] ISO 4037-1:2019(E), Radiological protection — X and gamma reference radiation for calibrating dosimeters and doserate meters and for determining their response as a function of photon energy — Part 1: Radiation characteristics and production methods, International Organization for Standardization, Geneva, 2019.
- [10] A. Celarel, O.G. Dului, S. Bercea, C. Cenusă. Slanic-Prahova low background calibration facility, *Radiation Protection Dosimetry* Vol. 168 No 3, 2016, 427–432, <https://doi.org/10.1093/rpd/ncv350>
- [11] M. Živanović, Đ. Lazarević, O. Ciraj-Bjelac, S. Stanković. Određivanje merne nesigurnosti etalonskih polja u metrologiji doze zračenja, XXVII simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, 2-4. oktobar 2013, Vrnjačka Banja, 271 – 274.

**ESTABLISHING CALIBRATION FIELD FOR SMALL VALUES OF DOSE
EQUIVALENT RATE**

Miloš ŽIVANOVIĆ¹, Ivana KOMATINA^{1,2}, Nikola KRŽANOVIĆ¹, Miloš ĐALETIĆ¹,
Srboljub STANKOVIĆ¹

- 1) *"VINČA" Institute of Nuclear Sciences - National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade*
- 2) *Faculty of physical chemistry, University of Belgrade, Studentski trg 10-12, Belgrade*

ABSTRACT

In this paper, we provide description of the use of scintillation detector for calibration of low-dose-rate reference fields produced by gamma sources. These fields are used for calibration of photon dosimeters. Traceability is established by calibrating the scintillation detector using an ionization chamber and a source with higher activity for several air kerma rates, which also allowed to determine detector linearity. Most important contributions to measurement uncertainty were identified, and combined uncertainty was calculated as 4,6% ($k=2$). Low uncertainty is especially important for dosimeter verification.

EVALUATION OF DIAGNOSTIC RADIOLOGY DETECTOR PERFORMANCE IN REFERENCE MAMMOGRAPHY RADIATION FIELDS

Nikola KRŽANOVIĆ¹, Andrea KOJIĆ^{1,2}, Luka BAKRAČ³, Miloš ŽIVANOVIĆ¹

- 1) *Vinca Institute of Nuclear Sciences – National Institute of Republic of Serbia, University of Belgrade, Department for Radiation and Environmental Protection, Belgrade, Serbia;*
- 2) *Faculty of Physics, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*
- 3) *Ruđer Bošković Institute (RBI), Zagreb, Croatia*

Corresponding author: Nikola KRŽANOVIĆ, *krzanovic@vinca.rs*

ABSTRACT

Recommendations on diagnostic radiology calibrations are defined by the IEC and IAEA documents for molybdenum anode target material and molybdenum primary beam filtration (abbreviated as the RQR-M series). Calibration of diagnostic radiology dosimeters (ionization chambers and X-ray multimeters) can also be performed for other anode/filter combinations, including the tungsten anode / aluminium filtration setup. Performance of dosimeters can significantly vary in radiation fields defined by different anode materials and primary beam filtrations, where different spectra and first half-value layers are obtained for the same nominal X-ray tube voltages. Therefore it is important to calibrate or test dosimeters for the range of radiation qualities or conditions in which they will be used. Performance of two such detectors was evaluated.

Introduction

The International Electrotechnical Commission (IEC) standard 61674 [1] defines performance criteria and limits of variation for diagnostic radiology dosimeters in various diagnostic radiology radiation fields covering different modalities of medical imaging (general radiography, computerized tomography, mammography etc.). Reference radiation fields established under laboratory conditions are defined in such a way to closely correspond to the most common radiation beams encountered in diagnostic radiology procedures. Properties of these radiation fields are defined in IEC 61267 [2]. Besides the two IEC standards describing the requirements for the diagnostic radiology detectors and reference radiation fields, International Atomic Energy Agency (IAEA) Technical Report No. 457 [3] provides guidance on calibration procedures for diagnostic radiology dosimeters as well as descriptions of the reference radiation fields. Radiation fields with known and well-defined photon energy distribution (energy spectra) are termed as radiation qualities. These fields are established under laboratory conditions either by performing spectrometry measurements or by determining certain radiation field parameters. A way to define radiation qualities is to perform 1st and 2nd half-value layer measurements for a known total filtration of the primary radiation beam and known X-ray tube voltage.

Diagnostic dosimeters can have significant energy dependence, and because of this it is important to test them in a range of radiation qualities in which they will be used. In mammography applications, radiation qualities with different anode/filter combination can have significantly different spectra, and it is important to test the dosimeters in appropriate conditions. This paper presents the preliminary results of the tests of several dosimeters in different standard and non-standard radiation qualities.

Diagnostic radiology radiation qualities

Radiation qualities for general radiography are termed as RQR-series (radiation qualities in radiation beams emerging from the X-ray source assembly) and cover radiation fields with X-ray tube voltages from 40 kV up to 150 kV. Similarly, in computerized tomography RQT-series (radiation qualities based on copper added filter) is defined in the voltage range from 100 kV up to 150 kV. These radiation fields are defined for the tungsten (W) anode target material and aluminium (Al) primary beam filtration (with an addition of copper (Cu) in case of RQT-series). RQR radiation quality series cover general radiography applications with the reference radiation quality corresponding to one of the most commonly used tube voltages of 70 kV (RQR5 radiation quality). Even though these radiation qualities are well-defined and are appropriate for many diagnostic radiology applications, in specific situations such as interventional procedures these radiation qualities may not be suitable.

Radiation qualities in mammography are defined for a narrower X-ray tube voltage range from 25 kV up to 35 kV. The IEC defined radiation qualities [2, 3] are termed as RQR-M and represent the molybdenum (Mo) anode target material and Mo filtration of the primary beam. These radiation qualities are based on widely used mammography units prior to the development of digital mammography which has introduced several different anode material / primary beam filtration setups. Many novel mammography units utilize tungsten anode with different primary beam filtrations, such as rhodium (Rh), silver (Ag) etc.

RQR, RQT and RQR-M radiation quality series are defined with respect to the minimum scatter environment where only primary beam is considered. This setup is in accordance with the corresponding diagnostic modalities where exclusively primary beam is useful for production of the medical image of the patient, and any scattered radiation does not contribute to the useful signal.

Besides the primary beam radiation qualities, radiation beams representing beams transmitted through the patient (PMMA phantoms of different thicknesses) are also of importance for quality control in diagnostic radiology. For mammography these radiation qualities are termed as RQA-M, and are also defined for the Mo/Mo anode target/primary beam filtration setup.

Standard Dosimetry Laboratories which have established reference fields for general diagnostic radiology utilize tungsten (W) anode and aluminium (Al) filtration of different thicknesses. On the other hand, reference radiation fields for mammography (RQR-M) are often not available in the Dosimetry Laboratories due to unavailability of Mo/Mo setup. Alternatively, a non-standard radiation quality series was developed with W/Al setup which utilizes additional filtration of 0.5 mm Al. Even though this series is not part of the IEC standard, at least one primary laboratory has established it and is able to provide traceable calibrations in terms of air kerma.

Even though W/Al radiation fields can be used for dosimeter calibration, it is important to assess performance of dosimeters in the standard radiation qualities (RQR-M). As mentioned, many different anode/filtration setups are in use today, so assessment of dosimeter performance in these radiation fields is needed as well. The situation where various anode/filtration combinations are used may introduce the need for redefining reference radiation conditions introduced by digital mammography.

Diagnostic radiology dosimeters

Dosimeters used for Quality Assurance (QA) of X-ray generators in diagnostic radiology are based on ionization chambers or solid state detectors. Ionization chambers are proven to have

more stable and flatter response over a wider range of photon energies (and tube voltages) and therefore, are preferable for reference air kerma measurements (usually under laboratory conditions), ensuring traceability to the primary standard. Solid state detectors are more compact and easy to use, therefore more suitable to be used for regular QA routines. Additionally, these detectors are usually incorporated in multi-element dosimeters which are able to measure several parameters of importance for quality assurance. These devices are termed as X-ray multimeters (XMMs) and are able to measure dose, dose rate and X-ray tube voltage non-invasively. Besides these conventional quantities some of these devices are able to estimate total-filtration of the radiation beam (TF), irradiation time, current time product, as well as 1st half-value layer (HVL). XMMs usually utilize several different filters for energy compensation of the detectors and for establishing correction factors which are applied to the measured value based on the chosen software setting. The settings of the multimeters usually cover the diagnostic radiology modality, the anode/filtration setup and the X-ray tube voltage. Depending on these settings the data produced by the XMM can greatly differ in the same radiation field.

Performance tests

Traceability to the primary standard at the Vinča Institute of Nuclear Sciences Secondary Standard Dosimetry Laboratory (VINS SSDL) is available for the W+Al radiation qualities in the X-ray voltage range from 25 kV to 35 kV, with the Exradin A600 (Standard Imaging) ionization chamber. Since only tungsten anode X-ray tube is available in the laboratory, XMM and ionization chamber performance was also evaluated at the Ruđer Bošković Institute (RBI) SSDL where both W+Al and RQR-M radiation qualities have been established. Performance of two ionization chambers and eight solid state detectors will be evaluated in the standard Mo/Mo radiation fields. For comparison purposes performance of these dosimeters will be also assessed in the W/Al radiation fields in the same X-ray tube voltage range in both laboratories. Additionally, performance of these detectors in the RQA-M radiation qualities will be examined. Tested IEC and non-standard radiation qualities and their parameters are tabulated in Table 1.

The non-standard radiation qualities have a slightly increased HVL values for the same X-ray tube voltages. Nevertheless, these radiation quality series have quite different photon energy distribution due to molybdenum target characteristic X-radiation peaks in this photon energy range. The spectra for 28 kV X-ray tube voltage radiation fields (W+Al28 and RQR-M2) are generated by using SpekPy [4] and presented in Figure 1.

Table 1. Mammography radiation qualities used for the assessment of diagnostic radiology dosimeters' performance: IEC 61267 [2] reference radiation quality series RQR-M and RQA-M, and non-standard W/Al anode/filtration radiation fields.

Radiation Quality	X-ray tube voltage [kV]	Added filtration [mm]	1st HVL [mm Al]
RQR-M 1	25	0,033 Mo	0,28
RQR-M 2	28	0,033 Mo	0,31
RQR-M 3	30	0,033 Mo	0,33
RQR-M 4	35	0,033 Mo	0,36
W+Al 25	25	0,5 Al	0,31
W+Al 28	28	0,5 Al	0,35
W+Al 30	30	0,5 Al	0,38
W+Al 35	35	0,5 Al	0,43
RQA-M 1	25	0,033 Mo + 2 Al	0,56
RQA-M 2	28	0,033 Mo + 2 Al	0,60
RQA-M 3	30	0,033 Mo + 2 Al	0,62
RQA-M 4	35	0,033 Mo + 2 Al	0,68

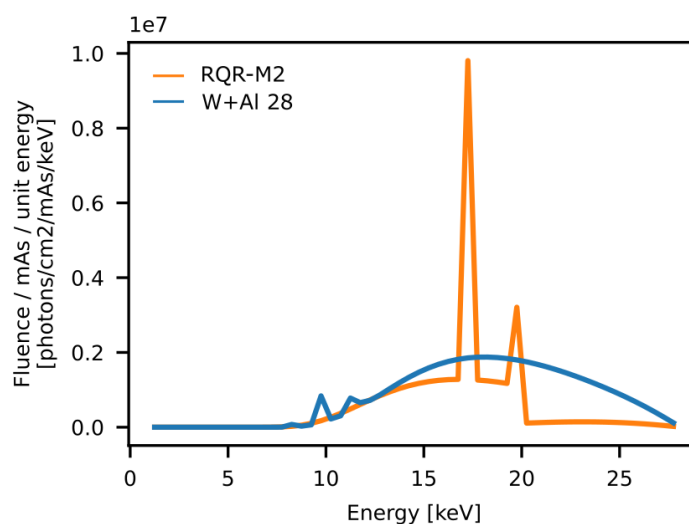


Figure 1. SpekPy [4] generated spectra for the RQR-M2 and W+Al28 radiation fields.

One of the most important influence quantities on the detector response is the photon energy. Dosimeter response was determined by comparing the reference air kerma value (corrected for changes in air density, i.e. ambient temperature and atmospheric pressure) and measured value. The reference and measured value were corrected for collected charge by the PTW 34014 plane parallel ionization chamber (monitor chamber) to account for variations in the X-ray generator output. In Figure 2, preliminary results of performance tests on two XMMs performed in the RQR-M, RQA-M and W+Al radiation fields are presented.

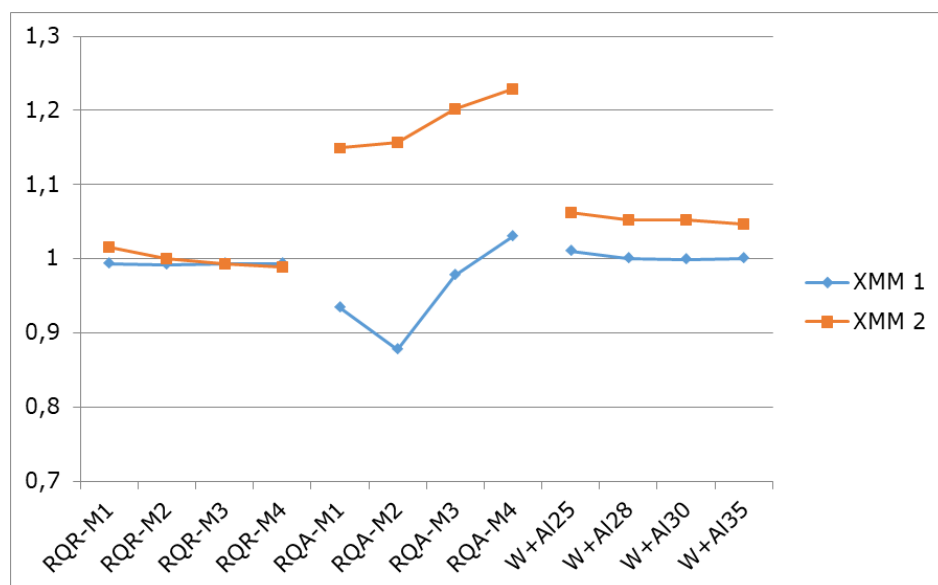


Figure 2. Absolute response of two XMMs in the RQR-M and RQA-M IEC radiation quality series and the non-standard W+Al radiation fields.

The responses of examined XMMs are stable for the reference RQR-M radiation quality series where the deviations are within $\pm 5\%$ from the reference value. In the non-standard radiation fields of W+Al one of the XMMs has displayed an increase in response of approximately $+5\%$ for the whole X-ray tube voltage. It should be noted that for both of the direct beam radiation quality series appropriate software settings in the multimeters were selected. In the case of RQA-M series one of the XMMs has displayed an under response with the maximum deviation greater than 10% (for the 28 kV radiation field), while the other XMM has exhibited a great overresponse of 20% at the 35 kV radiation field. Examination of the response in the transmitted beams through the patient has not been performed for the W+Al radiation fields, because such beams have not been established so far.

Conclusion

Diagnostic radiology dosimeters are used for verification and quality assurance of the X-ray generator output in the hospitals. Performance of the diagnostic radiology detectors can differ for the same X-ray tube voltage due to differences in the X-ray beam spectra and HVL. These dosimeters should be calibrated and traceable to the primary standards for one or more reference radiation qualities, depending on their intended use. Due to the unavailability of the IEC defined Mo/Mo radiation qualities in many calibration laboratories, traceability is often established for the non-standard W/Al radiation qualities.

The presented performance tests are a work in progress and the results produced in this research will be published in a peer-reviewed journal upon completion of the performance tests for all of the dosimeters.

Acknowledgement

This work was funded by The Ministry of Science, Technological Development and Innovation of the Republic of Serbia under contract 451-03-47/2023-01/ 200017, International Atomic Energy Agency (IAEA) under the research contract No: 24688, which is part of the IAEA Coordinated Research Project E24024, entitled 'Evaluation of the Dosimetry Needs and Practices for the Update of the Code of Practice for Dosimetry in Diagnostic Radiology (TRS-457)', and the project (22NRM01 TraMeXi) which has received

funding from the European Partnership on Metrology, co-financed from the European Union's Horizon Europe Research and Innovation Programme and by the Participating States.

References

- [1] International Electrotechnical Commission, Medical electrical equipment - Dosimeters with ionization chambers and/or semiconductor detectors as used in X-ray diagnostic imaging, IEC 61674:2012
- [2] International Electrotechnical Commission, Medical diagnostic X-ray equipment – Radiation conditions for use in the determination of characteristics, IEC 61267:2005.
- [3] International Atomic Energy Agency, Dosimetry In Diagnostic Radiology: an International Code of Practice, Technical Report Series No. 457, IAEA TRS 457:2007.
- [4] Poludniowski G, Omar A, Bujila R, Andreo P. Technical Note: SpekPy v2.0-a software toolkit for modeling x-ray tube spectra. *Med Phys.* 2021 Jul;48(7):3630-3637. doi: 10.1002/mp.14945. Epub 2021 Jun 10. PMID: 33993511.

EVALUACIJA PERFORMANSI DETEKTORA ZA DIJAGNOSTIČKU RADIOLOGIJU U REFERENTNIM POLJIMA ZRAČENJA ZA MAMOGRAFIJU

Nikola KRŽANOVIĆ¹, Andrea KOJIĆ^{1,2}, Luka BAKRAČ³, Miloš ŽIVANOVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke Vinča – Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija*
- 2) *Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija*
- 3) *Institut Ruđer Bošković (IRB), Zagreb, Hrvatska*

SAŽETAK

Preporuke za kalibraciju dozimetara za dijagnostičku radiologiju su definisane IEC i IAEA dokumentima za kombinaciju materijala anode i filtracije primarnog snopa od molibdena (u standardu definisana kao RQR-M serija kvaliteta zračenja). Kalibracija dozimetara za dijagnostičku radiologiju (jonizacionih komora i multimetara) se može obavljati u poljima zračenja sa drugim kombinacijama anoda/filtracija, uključujući i volfram/aluminijum kombinaciju. Ponašanje dozimetara se može značajno razlikovati u poljima zračenja u istom opsegu radnih napona pri čemu različiti materijali anode i filtracija primarnog snopa uzrokuju različite spektre fotona i vrednosti prve debljine poluslabljenja. Stoga je važno kalibrisati ili ispitati dozimetre pod uslovima pri kojima se mogu koristiti u praksi. Performanse dva detektora za dijagnostičku radiologiju su ispitane.

**PROVERA RADIOTERAPIJSKIH USTANOVA SRBIJE OD 2019. DO 2022.
GODINE POŠTANSKOM DOZIMETRIJOM U VELIČINI APSORBOVANA DOZA
U VODI**

Nikola KRŽANOVIĆ¹, Miloš ŽIVANOVIĆ¹, Miloš ĐALETIĆ¹,
Ivana KOMATINA^{1,2}, ANDREA KOJIĆ^{1,3}, Srboljub STANKOVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke Vinča – Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija*
- 2) *Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija*
- 3) *Fakultet za fiziku, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Nikola KRŽANOVIĆ, krzanovic@vinca.rs

SAŽETAK

U svrhu osiguranja kvaliteta sprovođenja radioterapijskih procedura, radioterapijski centri širom sveta učestvuju u programu poštanske dozimetrije koju organizuje i sprovodi Međunarodna agencija za atomsku energiju putem globalne mreže Sekundarnih Standardnih Dozimetrijskih Laboratorija. Kontrola kvaliteta podrazumeva ozračivanje pasivnih detektora zračenja (prethodno termoluminiscentnih, danas radiofotoluminiscentnih dozimetara) na poznatu vrednost apsorbirane doze u vodi u visokoenergetskim poljima x-zračenja linearnih akceleratora koji su upotrebi u redovnoj teleterapijskoj praksi. Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine je u periodu od 2019. do 2022. godine distribuirala pasivne dozimetre radioterapijskim centrima u Srbiji.

Uvod

Međunarodna agencija za atomsku energiju (MAAE, eng. *International Atomic Energy Agency - IAEA*) sprovodi program provere doza u radioterapijskim centrima putem poštanske dozimetrije od 1969. godine, s ciljem osiguranja kvaliteta diseminacije dozimetrijskih standarda do krajnjih korisnika. Do 1991. godine se program poštanske dozimetrije sprovodio isključivo za polja zračenja radionuklida Co-60, nakon čega su zbog upotrebe značajno viših energija u teleterapiji u kontrolu kvaliteta uključena i polja zračenja megavoltažnih kliničkih linearnih akceleratora. Paralelno sa programom poštanske dozimetrije za radioterapijske centre (termoluminiscentnim (TL) i radiofotoluminiscentnim (RPL) dozimetrima) se od 1981. godine sprovodi i program poštanske dozimetrije pomoću TL ili optički stimulisanih luminiscentnih (OSL) dozimetara u veličini kerma u vazduhu i TL ili RPL u veličini doza u vodi za Sekundarne Standardne Dozimetrijske Laboratorije (eng. *Secondary Standard Dosimetry Laboratory – SSDL*) [1]. Učešće radioterapijskog centra ili SSDL u programu kontrole kvaliteta poštanskom dozimetrijom je dobrovoljno i moguće periodično, na svake dve godine.

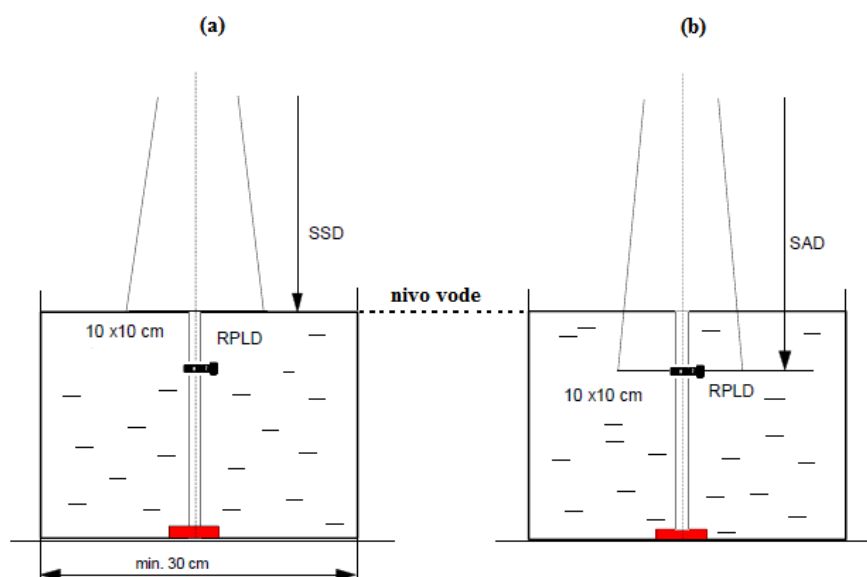
Materijali i metode

Pasivni dozimetri se poštom šalju ka radioterapijskom centru ili SSDL-u koji je odgovoran za dalju distribuciju dozimetara i njihovo prikljupljanje nakon izvršenog ozračivanja i konačne isporuke natrag u Laboratoriju MAAE. Na ovaj način se na godišnjem nivou izvrši kontrola kvaliteta oko 800 kliničkih teleterapijskih polja zračenja pri čemu se neretko detektuje i

uklanja uzrok netačne vrednosti apsorbovane doze koji je u vezi sa kalibracijom snopa zračenja, sprečavajući neadekvatne tretmane radioterapijskih pacijenata [1]. Program poštanske dozimetrije je potpomognut od strane Međunarodnog Biroa za Tegove i Mere (BIPM), i dozimetrijskih laboratorija sa primarnim etalonima. Referentnim ozračivanjem pasivnih dozimetara ove ustanove predstavljaju eksternu kontrolu kvaliteta samog programa poštanske dozimetrije.

U svrhu kontrole kvaliteta su ranije korišćeni isključivo termoluminiscentni pasivni dozimetri (TLD) koji su u periodu od 2017. do 2019. godine zamenjeni radiofotoluminiscentnim dozimetrima (RPLD) [2]. Nakon ozračivanja u snopu zračenja na poznatu vrednost apsorbovane doze u vodi se dozimetri očitavaju u dozimetrijskoj laboratoriji MAAE. Očitana vrednost apsorbovane doze se upoređuje sa referentnom vrednošću.

Budući da se poštanska dozimetrija za radioterapijske centre sprovodi u veličini apsorbovana doza u vodi, RPLD se postavljaju na dubinu od 10 cm unutar vodenog fantoma, pri čemu je rastojanje između izvora zračenja i površine vode (eng. *Source to surface distance – SSD*) ili izvora zračenja i centralne ose detektora zračenja (eng. *Source to axis distance – SAD*) definisano radioterapijskom procedurom prema kojoj se obavlja ozračivanje pacijenata. Veličina polja na definisanom rastojanju je $10 \times 10 \text{ cm}^2$. Shematski prikaz postavke za ozračivanje pasivnih dozimetara je prikazan na slici 1.



Slika 2. Šematski prikaz geometrijske postavke za ozračivanje RPLD u vodenom fantomu: (a) SSD; (b) SAD.

Vrednost apsorbovane doze na koju se pasivni dozimetri ozračuju iznosi 2 Gy. Kontrolna grupa dozimetara se ozračuje u referentnom polju zračenja Co-60 u dozimetrijskoj laboratoriji MAAE, pri čemu se radi određivanja referentne vrednosti doze za megavoltažne snopove x-zračenja primenjuju korekcionni faktori na kvalitet zračenja [3].

U okviru evaluacije radioterapijskih centara putem poštanske dozimetrije u periodu od 2019. do 2022. godine su u radioterapijskim centrima korišćena isključivo polja visokoenergetskog X-zračenja. U tabeli 1 je prikazan spisak radioterapijskih centara koji su učestvovali u MAAE programu poštanske dozimetrije u navedenom periodu. U 2023. godini se za učešće u programu poštanske dozimetrije prijavilo pet radioterapijskih centara sa ukupno 14 snopova X-zračenja.

Tabela 1. Spisak radioterapijskih centara koji su učestvovali u MAAE programu poštanske dozimetrije od 2019. do 2022. godine.

Radioterapijski centar	Generator visokoenergetskog snopa zračenja	Snop zračenja akceleratora	Godina učešća
Klinički centar Srbije	Varian Edge	6 MV 6 MV FFF 10 MV FFF	2019, 2021
Institut za onkologiju i radiologiju Srbije	Varian True Beam	6 MV 10 MV 15 MV	2019, 2020
	Varian Clinac iX	6 MV 15 MV	2021
	Varian Halcyon	6 MV FFF	2022
Institut za Onkologiju Vojvodine	Elekta Versa HD	6 MV 10 MV 15 MV	2019, 2021
	Varian True Beam	6 MV SRT 6 MV FFF SRT 10 MV SRT 15 MV	2020, 2022
	Varian Vital Beam	6 MV SRT 10 MV SRT	2020, 2022
	Varian Clinac 600	6 MV	2021
Institut za plućne bolesti Vojvodine	Elekta Versa HD	6 MV 10 MV 15 MV	2019, 2021
Klinički centar Kragujevac	Elekta Synergy Platform	6 MV	2019, 2020, 2022
	Varian Clinac iX	6 MV 15 MV	2019, 2021
	Elekta Synergy	6 MV 10 MV	2019, 2020, 2021, 2022
Klinički centar Niš	Varian Clinac iX	6 MV 16 MV	2019, 2021
	Elekta Synergy Platform	6 MV 10 MV	2020, 2022
Zdravstveni centar Kladovo	Varian Clinac	6 MV	2021
	Varian Clinac iX	6 MV 16 MV	2019, 2021
	Varian Clinac 600C	6 MV	2020
Vojnomedicinska akademija	Elekta Synergy Platform	4 MV 10 MV 18 MV	2020, 2022

Rezultati i diskusija

RPL dozimetri korišćeni u programu poštanske dozimetrije u periodu od 2019. do 2022. u radioterapijskim centrima Srbije su ozračivani u poljima zračenja linearnih akceleratora. Najčešće vrednosti radnih napona korišćene u radioterapijskim centrima jesu 6 MV, 10 MV i 15 MV, pri čemu je u pojedinim situacijama kontrolisano polje zračenja generisano pri 4 MV, 16 MV i 18 MV. U radioterapijskim centrima Srbije se sa nešto većom zastupljenošću koriste modeli linearnih akceleratora Varian u odnosu na Elekta akcelerateore. Osim klasične teleterapije proveravana su i polja zračenja koja se koriste za stereotaktičku radioterapiju (SRT) gde se organ sa malignim tkivom ozračuje iz više pravaca uvećavajući dozu isporučenu tumoru koji se nalazi u izocentru, pri čemu je ozračivanje zdravog tkiva usled radioterapijske procedure prostorno distribuirano. U nekoliko ozračivanja je poštanskom

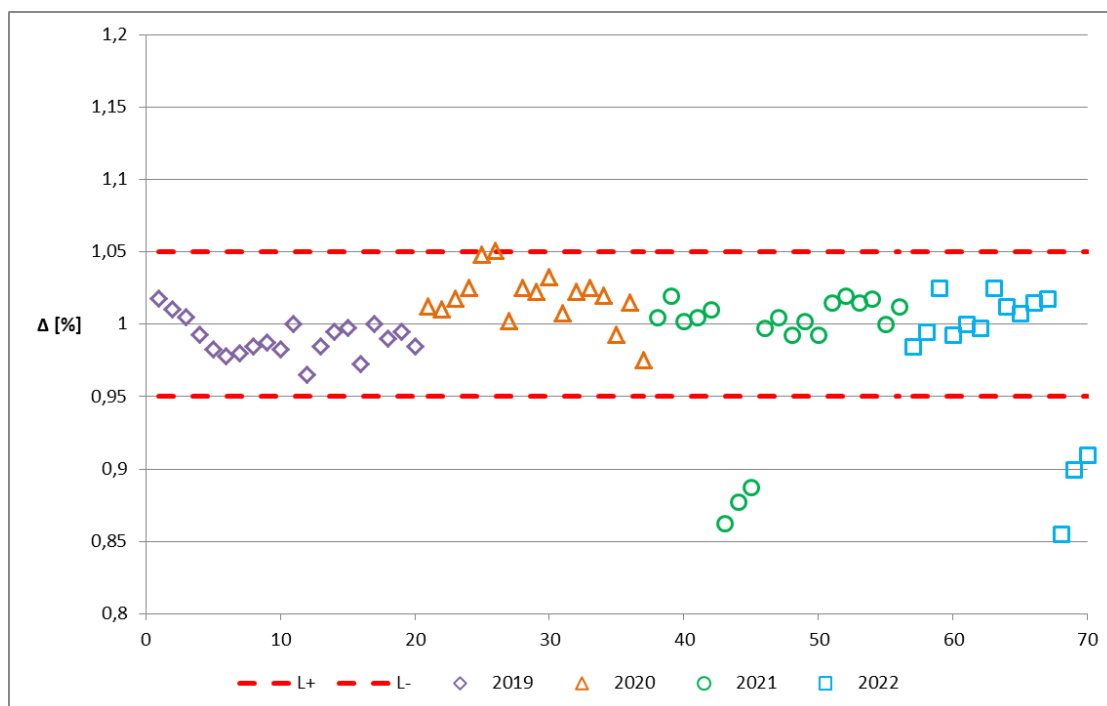
dozimetrijom izvršena i provera doza za polja zračenja bez kolimatora koji imaju ulogu povećanja homogenosti polja zračenja uz smanjenje doze zračenja, stoga pri određenim radioterapijskim procedurama ovaj kolimator nije u upotrebi (eng. *flattening filter – free, FFF*).

Mera kontrole kvaliteta poštanskom dozimetrijom jeste odstupanje prijavljene vrednosti apsorbovane doze koja je isporučena RPL u radioterapijskom centru od referentne vrednosti doze izmerene u MAAE laboratoriji. Odstupanje je definisano relacijom:

$$(1) \quad \Delta = 1 - \frac{D_{RT}}{D_{MAAE}} [\%]$$

gde je D_{RT} doza isporučena u radioterapijskom centru, a D_{MAAE} referentna vrednost apsorbovane doze u vodi. Ukoliko je odstupanje manje od $\pm 5\%$ smatra se da je radioterapijski zadovoljio kriterijum provere, te je uspešno učestvovao u kontroli kvaliteta poštanskom dozimetrijom. Radi kontinuirane kontrole kvaliteta se preporučuje ponovno učešće u programu poštanske dozimetrije, periodično nakon dve godine od prethodne provere. Ipak, ukoliko prijavljena apsorbovana doza pokazuje veće odstupanje od referentne vrednosti tada je neophodno otkloniti uzrok ovog odstupanja. Najpre se radioterapijskom centru dostavlja nova pošiljka radi ponavljanja procedure ozračivanja u navedenom polju zračenja. Ukoliko greška nije uklonjena ponavljanjem procedure ozračivanja, često se organizuje ekspertska poseta i preporučuje se ponovno učešće u programu kontrole kvaliteta poštanskom dozimetrijom nakon jedne godine od prethodnog ozračivanja [4].

Na slici 2 su prikazani rezultati kontrole kvaliteta radioterapijskih centara poštanskom dozimetrijom za period od 2019. do 2022. godine.



Slika 2. Rezultati IAEA/WHO kontrole kvaliteta eksternom proverom putem poštanske dozimetrije u periodu od 2019. do 2022. godine. Prikazan redosled radioterapijskih centara i njihovih polja zračenja je slučajan.

Redosled evaluiranih snopova zračenja je slučajan radi očuvanja anonimnosti rezultata eksterne provere. U 2019. i 2020. godini su svi radioterapijski centri imali odstupanja prijavljene doze od МААЕ referentne vrednosti manje od 5 %, pri čemu su dve vrednosti u 2020. godini bile bliske granici odstupanja. U 2021. i 2022. godini su u pojedinim snopovima zračenja primećena odstupanja veća od 5 %. U prethodnom periodu su u ponovljenim ozračivanjima, posle analize prethodnih rezultata i procedure ozračivanja, svi rezultati bili prihvatljivi, što pokazuje značaj poštanske provere doza za očuvanje kvaliteta radioterapijskog tretmana. Iako su ozračivanja u 2023. izvršena, rezultati provere poštanskom dozimetrijom još uvek nisu dostupni.

Zaključak

Eksterna provera poštanskom dozimetrijom je značajan postupak kontrole kvaliteta polja zračenja i vrednosti isporučene apsorbovane doze pacijentima, sa ciljem poboljšanja teleterapijskih procedura u radioterapijskim centrima. Budući da se u radioterapijskim procedurama pacijentima isporučuju velike vrednosti doze, neophodno je dozu zračenja isporučiti sa što većom tačnošću, ne bi li se izbeglo prekomerno ozračivanje pacijenata većom vrednošću doze ili neefikasno sprovođenje procedure lečenja ukoliko su vrednosti doze preniske.

Literatura

- [1] <http://www-naweb.iaea.org/nahu/DMRP/tld.html>, pristupljeno 20.06.2023.
- [2] N. Kržanović, M. Živanović, P. Božović, S. Stanković. Provera apsorbovanih doza u vodi u radioterapijskim ustanovama Srbije od 2017. do 2019. godine. *Zbornik radova XXX Simpozijuma DZZ SCG*, 02.10. – 04.10.2019, 457-461.
- [3] IAEA, Absorbed dose determination in external beam radiotherapy. An international code of practice for dosimetry based on standards of absorbed dose to water. Technical reports series No. 398. IAEA, Vienna, 2000.
- [4] J. Izewska, P. Bera, S. Vanitsky. IAEA/WHO postal dose audit service and high precision measurements for radiotherapy level dosimetry, *Radiation Protection Dosimetry*, pp. 387-392, 2002.

POSTAL DOSIMETRY AUDIT OF RADIOTHERAPY CENTERS IN SERBIA FOR THE PERIOD FROM 2019. TO 2022. IN TERMS OF ABSORBED DOSE TO WATER

Nikola KRŽANOVIĆ¹, Miloš ŽIVANOVIĆ¹, Miloš ĐALETIĆ¹,
Ivana KOMATINA^{1,2}, Andrea KOJIĆ^{1,3} Srboљub STANKOVIĆ¹

- 1) *Vinca Institute of Nuclear Sciences – National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Belgrade, Serbia, krzanovic@vinca.rs*
- 2) *Faculty of Physical Chemistry, University of Belgrade, Serbia*
- 3) *Faculty of Physics, University of Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

In order to perform quality assurance of radiotherapy procedures, radiotherapy centers participate in a worldwide programme of postal dosimetry external audits, organized by the International Atomic Energy Agency via the global Secondary Standard Dosimetry Laboratory network. Quality control is performed by delivering a known absorbed dose to water value to the passive ionizing radiation detectors (previously thermoluminescent, recently radiophotoluminescent dosimeters) in the high-energy x-radiation fields of linear accelerators which are in regular hospital use in teletherapy. Laboratory for radiation and environmental protection has distributed the passive dosimeters to the radiotherapy centers in Serbia in the period from 2019. to 2022.

THE INFLUENCE OF COMPRESSION PADDLE POSITIONING ON HVL MEASUREMENTS IN MAMMOGRAPHY

Andrea KOJIĆ^{1,2}, Nikola KRŽANOVIĆ¹, Ivana KOMATINA^{1,3}, Miloš ŽIVANOVIĆ¹, Jelena STANKOVIĆ PETROVIĆ¹, Jelena VLAHOVIĆ^{1,4}, Predrag BOŽOVIĆ¹

- 1) *Vinča Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Serbia*
- 2) *Faculty of Physics, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*
- 3) *Faculty of Physical Chemistry, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*
- 4) *Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Novi Sad, Serbia*

Corresponding author: Andrea KOJIĆ, andrea.kojic@vin.bg.ac.rs

ABSTRACT

Clinical mammography units utilize compression paddle for breast compression during exposure. When compression paddle is released, it returns to a default position which varies between different mammography units. This default position is commonly used in quality control procedures. Guidelines for quality control testing in mammography propose measuring the half-value layer (HVL) by placing added filtration on compression paddle while multimeter is positioned on the mammography unit's detector. The influence of compression paddle positioning on HVL measurements was studied under laboratory conditions. The difference in HVL values with and without the presence of the plate is not insignificant, the positioning of the plate also has a significant impact on the measurements.

Introduction

Mammography x – ray units use low energy photon beams (from 15 keV to 45 keV) for breast examination. The energy spectra used in mammography imaging should meet the two most important requirements of high image quality and low breast dose [1]. To ensure that mammography imaging is performed accurately, clinical mammography x-ray generators should undergo regular quality assurance and quality control testing. Protocols for quality control testing define the reference value for mean glandular dose (MGD) [2 – 6] Performing quality control testing on mammography x – ray units considers determination of the mean glandular dose by measuring air kerma and determining the half-value layer (HVL). MGD is then derived by applying tabulated values of factors which are related to glandularity of the breast tissue and x-ray spectra [7 – 9].

Quality control is performed with diagnostic radiology dosimeters which are based on either ionization chambers or solid-state detectors. These devices are calibrated in reference radiation fields which can have different anode/filtration combinations. In addition, an important difference between laboratory conditions and clinical practice is the use of compression paddle. The compression paddle is commonly used in clinical measurements and therefore can influence the measured values of relevant parameters such as HVL. The presence of compression paddle in the radiation field can contribute to MGD. Protocols for clinical air kerma measurements provide recommendations regarding the positioning of the compression paddle between the focal spot and the detector. IAEA Code of Practice [2] recommends positioning the compression paddle in contact with the detector, EUREF [6] recommends placing the paddle half-way between the source and the detector, while some national protocols [1] suggest keeping the fixed distance between the paddle and the detector.

The influence of compression paddle on HVL measurements was examined under laboratory conditions by positioning the thin PMMA layer at different distances in the radiation field between the source and the detector. Prior to examination of the compression paddle influence on HVL measurements, reference radiation fields were established according to the IAEA protocol for W+Al non-standard radiation quality series (in the x-ray tube voltage range from 25 kV to 35 kV) [10]. Reference radiation fields are defined with two parameters, x-ray tube voltage and HVL, according to IAEA TRS 457 [2]. Laboratory fields were established following the standard protocol which does not consider the use of compression paddle. In this research HVL values obtained with PMMA plate positioned between the detector and source were compared with the HVL values measured without the presence of PMMA plate. For the standard HVL measurement procedure added filtration is positioned equidistantly between the source and the detector, at 50 cm.

Laboratory measurements

All measurements were carried out in the Secondary Standard Dosimetry Laboratory (SSDL) at Vinča Institute of Nuclear Science using a Standard Imaging Exradin A650 parallel plate ionization chamber and a Hopewell Designs X80-225 kV-E X-ray generator with collimator diameter of 3.2 cm, tungsten anode and 0.5 mm Al additional filtration as per the IAEA dosimetry laboratory calibration protocol [10].

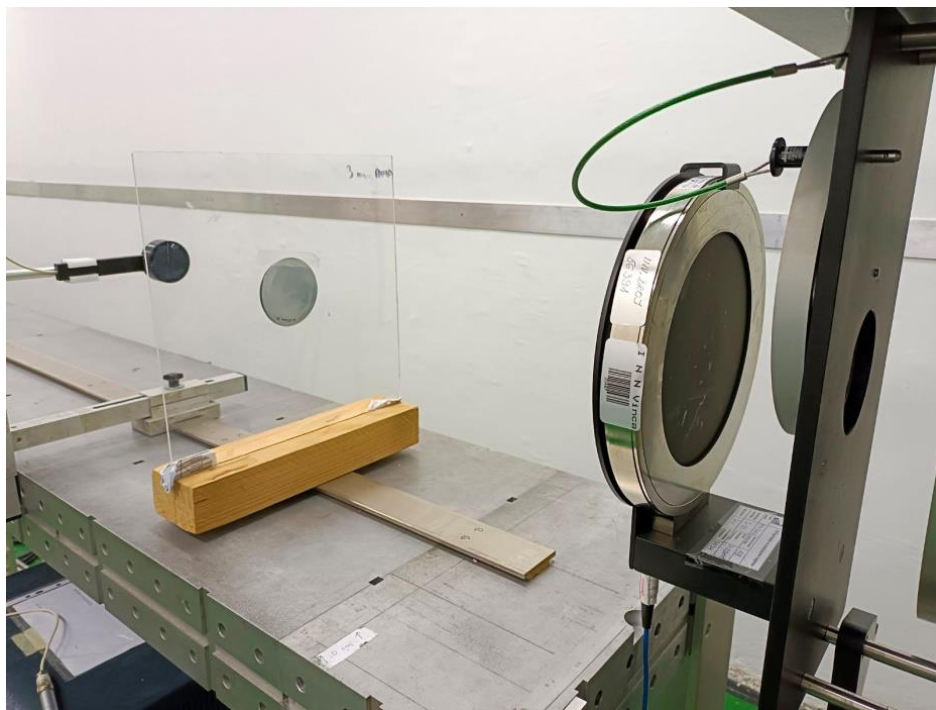


Figure 1. Laboratory measurement set-up of a 3 mm PMMA plate with Al filters used to determine the HVL value.

In order to reproduce the clinical conditions aluminium filters used as attenuators were positioned on the rectangular PMMA plate (Fig. 1) facing the source, so that the beam after being attenuated would have a yield from the plate. The thickness of the plate was 3 mm which is similar to the thickness of standard polycarbonate compression paddles (2-3 mm) encountered in mammography units. The plate was positioned at the distance of 37.345 cm, 50 cm and 80 cm from the source and for each distance the HVL value was determined for four reference radiation qualities (Table 1) used in mammography in the range from 25 kV to 35 kV.

Table 1. Reference radiation fields

Radiation quality	Tube voltage [kV]	HVL [mm Al]*
W+Al25	25	0.312
W+Al28	28	0.354
W+Al30	30	0.380
W+Al35	35	0.435

* IAEA dosimetry laboratory calibration protocol

Results and Discussion

Fig. 2. shows the results of HVL values obtained by positioning the PMMA plate with added aluminium filters for three distances from the source, 37.345 cm, 50 cm and 80 cm. It can be observed that HVL has the lowest value when the plate and the attenuators are placed half-way between the source and the detector at 50 cm. For all radiation fields the smallest (37.345 cm) and the largest (80 cm) distance have similar HVL values. For radiation fields at 25 kV, 28 kV and 30 kV HVL value with PMMA plate at 80 cm distance has slightly larger values than the values observed at 37.345 cm. For 35 kV HVL is roughly the same for these two distances. This indicates that when the plate is far from the source and closer to the detector additional scattering is present.

The difference in HVL values between the recommended distance (equidistance between the source and the detector) at 50 cm and two other distances increases with the decrease of voltage, it is the most pronounced for 25 kV and 28 kV (7 % and 8 % respectively) while at 35 kV this difference is not larger than 1 %.

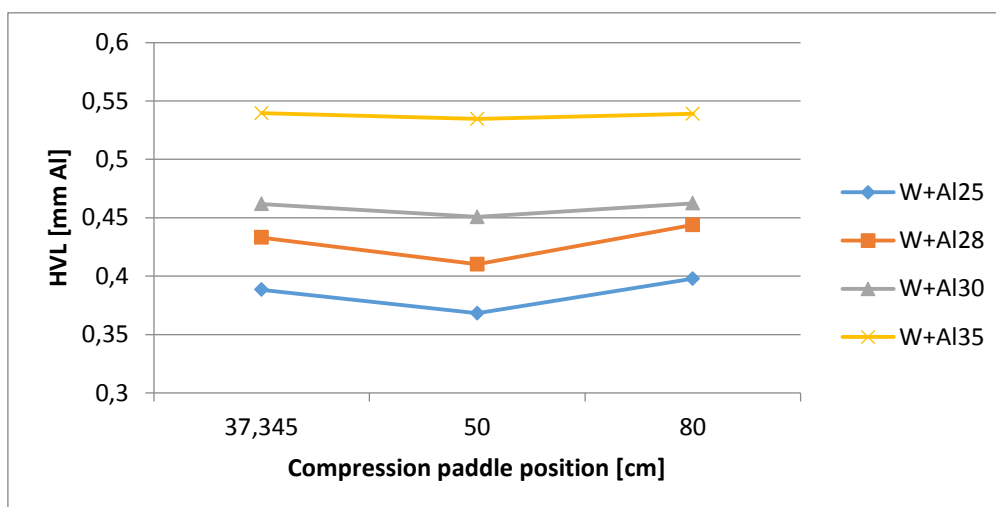


Figure 2. HVL dependence of PMMA plate distance for four W+Al radiation fields.

When comparing HVL values when the PMMA plate is present (at 50 cm) in the beam and values without the presence of the plate (in both cases the attenuation filters are positioned at 50 cm) there is a discrepancy of 11 % at 25 kV and 28 kV, 12 % at 30 kV and 15 % at 35 kV between these two HVL values. When comparing the HVL values without the presence of the plate with the attenuators positioned at 50 cm with two other values for 37.345 cm and 80 cm for all radiation fields, bigger discrepancies are observed except at 35 kV where this discrepancy remains constant.

Conclusion

QC testing should be practical to implement in the clinical setting therefore the measurements should be carried out with the presence of the compression paddle on which the attenuators are positioned. Testing should be done according to existing protocols and if possible with the plate positioned half-way in between the focal spot and the reference detector, given that the difference in HVL value with and without the presence of the compression plate is the smallest when the attenuation filters and the plate are equidistant from the focal spot and the detector.

Acknowledgments

This work was funded by The Ministry of Science, Technological Development and Innovation of the Republic of Serbia under contract 451-03-47/2023-01/ 200017, and International Atomic Energy Agency (IAEA) under the research contract No: 24688, which is part of the IAEA Coordinated Research Project E24024, entitled 'Evaluation of the Dosimetry Needs and Practices for the Update of the Code of Practice for Dosimetry in Diagnostic Radiology (TRS-457)'.

Literature

- [1] Institute of Physics and Engineering in Medicine, The Commissioning & Routine Testing of Mammographic X-Ray Systems, IPEM Report 89, 2005.
- [2] International Atomic Energy Agency, Dosimetry in diagnostic radiology: an international code of practice, No. 457 in Technical Reports Series, 2007.
- [3] International Commission on Radiation Units and Measurements, ICRU Report 74: Patient Dosimetry for Xrays Used in Medical Imaging, 2005.
- [4] European Commission, European Guidelines for Quality Assurance in Mammography Screening, 2006.
- [5] International Atomic Energy Agency, Quality assurance programme for digital mammography, IAEA Human Health Series No. 17, 2011.
- [6] European Guidelines for Quality Assurance in Breast Cancer Screening and Diagnosis, European protocol for the quality control of the physical and technical aspects of mammography screening, Fourth edition, Supplements, 2013.
- [7] D. R. Dance, „Monte Carlo calculation of conversion factors for the estimation of mean glandular breast dose”, *Phys. Med. Biol.* 35, 1211-1219, 1990.
- [8] D. R. Dance, C. L. Skinner, K. C. Young, J. R. Beckett, C. J. Kotre, „Additional factors for the estimation of mean glandular breast dose using the UK mammography dosimetry protocol“, *Phys. Med. Biol.* 45, 3225-3240, 2000.
- [9] D. R. Dance, K. C. Young, R. E. van Engen, „Further factors for the estimation of mean glandular dose using the United Kingdom, European and IAEA breast dosimetry protocols“, *Phys. Med. Biol.* 54, 4361-4372, 2009.
- [10] International Atomic Energy Agency, Calibration of reference dosimeters for diagnostic radiology at the IAEA dosimetry laboratory, Appendix to IAEA calibration certificate DOLP.013: Appendix 2, 2022.
- [11] https://ssdl.iaea.org/Content/DOLP_013_Appendix_2.pdf (accessed, 08.08.2023.)

UTICAJ POZICIJE KOMPRESIONE PAPUČICE NA HVL MERENJA U MAMMOGRAFIJI

Andrea KOJIĆ^{1,2}, Nikola KRŽANOVIĆ¹, Ivana KOMATINA^{1,3}, Miloš ŽIVANOVIĆ¹, Jelena STANKOVIĆ PETROVIĆ¹, Jelena VLAHOVIĆ^{1,4}, Predrag BOŽOVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke Vinča – Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija*
- 2) *Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija*
- 3) *Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija*
- 4) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Novi Sad, Srbija*

SAŽETAK

Kliničke mamografske jedinice sadrže kompresione papučice koje se koriste u svrhe kompresije dojke prilikom ekspozicije. Nakon oslobađanja kompresione papučice ona se vraća u uobičajeni položaj koji se razlikuje među mamografskim jedinicama. Ova pozicija se najčešće koristi tokom testiranja pri kontroli kvaliteta. Protokoli za kontrolu kvaliteta u mamografiji predlažu merenje debljine poluslabljenja (HVL) postavljanjem dodatnih filtera na kompresionu papučicu dok se multimetar postavlja na detektor mamografske jedinice. Uticaj pozicioniranja kompresione papučice na HVL merenja je ispitan u laboratorijskim uslovima. Razlika u vrednostima za HVL sa i bez prisustva PMMA ploče nije zanemarljiva, dakle pozicioniranje ploče ima značajan uticaj na izmerene vrednosti.

PRIMENA TL DOZIMETARA ZA ISPITIVANJE TAČNOSTI ISPORUČENE DOZE U OZRAČIVAČU KRVI

Jelena VLAHOVIĆ^{1,2}, Predrag BOŽOVIĆ¹, Andrea KOJIĆ¹, Nikola KRŽANOVIĆ¹,
Dušan TOPALOVIĆ¹, Jelena STANKOVIĆ PETROVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke Vinča, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija*
- 2) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Novi Sad, Srbija*

Autor za korespondenciju: Jelena VLAHOVIĆ, jelena.vlahovic@vin.bg.ac.rs

SAŽETAK

Cilj ovog rada je ispitivanje tačnosti isporučene doze unutar ozračivača krvi koristeći TL dozimetre. TL dozimetri su postavljeni iza olovne ploče i ozračeni su vrednostima apsorbovane doze u opsegu od 50 mGy do 5 Gy u referentnom polju zračenja ⁶⁰Co. Odstupanja očitavanja TL dozimetara u odnosu na isporučene vrednosti apsorbovane doze su u opsegu od 7.8% do 19.6% uz zadovoljavajuću linearnost na celom opsegu isporučenih doza (R=0.997). Monte Karlo simulacijama su određeni konverzioni koeficijenti za primenu ovog metoda i u polju zračenja ¹³⁷Cs za uređaje koji rade sa ovom vrstom izvora zračenja.

Uvod

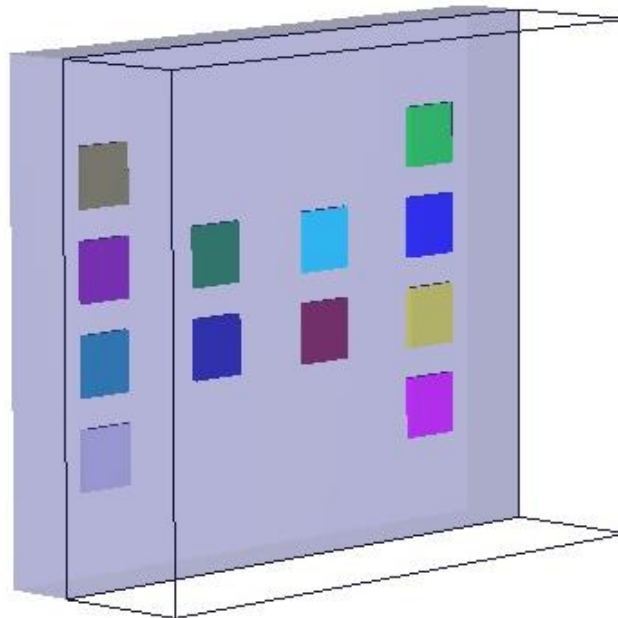
Najčešća komplikacija koja se javlja kod imunodeficientnih pacijenata prilikom transfuzije krvi je *Graft vs Host Disease*. Usled velike stope smrtnosti od ovog oboljenja neophodno je primeniti mere prevencije u vidu ozračivanja krvi radi inaktivacije limfocita koji bi mogli da se reprodukuju i rastu u telu pacijenta [1]. Za ove potrebe koriste se izvori jonizujućeg zračenja ⁶⁰Co i ¹³⁷Cs. Doze zračenja koje se tom prilikom isporučuju su takve da dovode do inaktivacije limfocita, ali ne i do oštećenja drugih komponenti krvi. Minimalna doza za postizanje ovog efekta je 25 Gy, dok maksimalna doza iznosi 50 Gy [1, 2]. Usled značaja primene ozračivača krvi neophodno je periodično vršiti kontrolu tačnosti doze koja se isporučuje. Najpreciznija merenja bi se izvršila pomoću referentnog mernog sistema koji se sastoji od jonizacione komore i elektrometra. Međutim, to nije moguće izvesti zato što zaštitni sistem uređaja ne dozvoljava ozračivanje sa otvorenim zaštitnim mehanizmom (što bi bilo neophodno radi pozicioniranja jonizacione komore i kablova elektrometra). Radi prevazilaženja ovog problema, kao i činjenice da sistem jonizaciona komora – elektrometar nije finansijski dostupan korisnicima ozračivača krvi, razvijen je metod provere tačnosti isporučene doze primenom termoluminescentnih (TL) dozimetara. Monte Karlo simulacijama je isplanirana postavka TL dozimetara u laboratorijskim uslovima, i analizirana je razlika u odzivu pri različitim energijama jonizujućeg zračenja (⁶⁰Co ili ¹³⁷Cs).

Materijali i metode

Za Monte Karlo simulacije korišćen je program MCNPX verzije 1.6 [3, 4]. Modelirana geometrija je prikazana na Slici 1. gde se vidi olovna ploča, kao i položaji 6 TL dozimetara, odnosno 12 TL detektora. Izvor zračenja je aproksimiran kao tačkasti izvor, pozicioniran na rastojanju od 100 cm, sa konusnim usmerenjem kako bi se postiglo ozračivanje cele površine od interesa. Doze su izračunate pomoću 12 talija (eng. *tally*) koje su određene za zapremine simuliranih TL detektora. U tu svrhu korišćena je „F6“ talija pomoću koje se dobija apsorbovana energija po jedinici mase i po ulaznoj čestici u željenoj zapremini, a prema kojoj

se proračunava apsorbovana doza. Broj simularnih čestica iznosio je 200 miliona čime je omogućena statistička pouzdanost rezultata. Pokrenuto je osam različitih simulacija biranjem jednog od dva izvora zračenja (^{60}Co i ^{137}Cs), sa/bez prisustva fiziološkog rastvora, FR (čija je uloga da zameni uzorak krvi u realnom eksperimentu), i sa/bez barijere od olova, Pb.

Za potrebe eksperimentalnog postupka korišćen je termoluminescentni dozimetrijski (TLD) sistem koji se sastoji od automatskog čitača, *Harshaw 6600 Plus TLD Reader* (Thermo Fisher, USA), termoluminescentnih dozimetara od LiF:Mg,Ti i WinREMS programa za kontrolu akvizicije. TLD sistem je najpre kalibrisan za merenje kerme u vazduhu, K_{air} , korišćenjem referentnih standarda. Referentna doza je iznosila 12 mGy. U okviru eksperimenta korišćena je olovna ploča dimenzija 10.5 cm x 8.5 cm i debljine 2.4 cm, radi zaštite fotomultiplikatorske cevi (PMT) TLD čitača pri čitanju doza većih od 1 Gy. Na zadnjoj površini ploče postavljeno je šest aluminijumskih pločica sa po dva TL detektora (Slika 2). Ploča sa dozimetrima je potom postavljena u polje zračenja izvora ^{60}Co , na rastojanju od 100 cm. Linearost TLD sistema proverena je za sedam vrednosti apsorbovanih doza zračenja od 50 mGy, 100 mGy, 200 mGy, 625 mGy, 1.25 Gy, 2.5 Gy i 5 Gy.



Slika 3. Geometrija Monte Karlo simulacije za slučaj kada se TL dozimetri nalaze u kesi fiziološkog rastvora



Slika 4. TL dozimetri pričvršćeni na Pb ploči

Rezultati

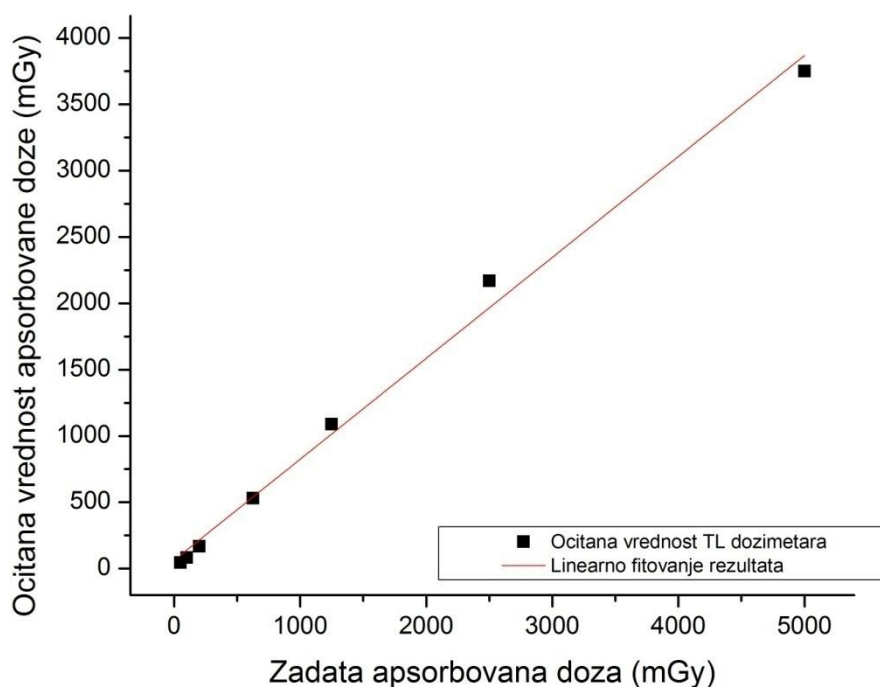
Rezultati simulacija prikazani su u Tabeli 1, a u Tabeli 2 su prikazani rezultati očitavanja TL dozimetara. Na Slici 3. prikazana je linearnost očitanih vrednosti TL dozimetara, a na Slici 4. prostorna raspodela očitanih vrednosti doza pomoću TL dozimetara. Koeficijent varijacije apsorbovanih doza u TLD dozimetrima u zavisnosti od pozlozaja na olovnoj ploči (CoV) je takodje dat u Tabeli 2. Ovaj koeficijent predstavlja meru uniformnosti polja.

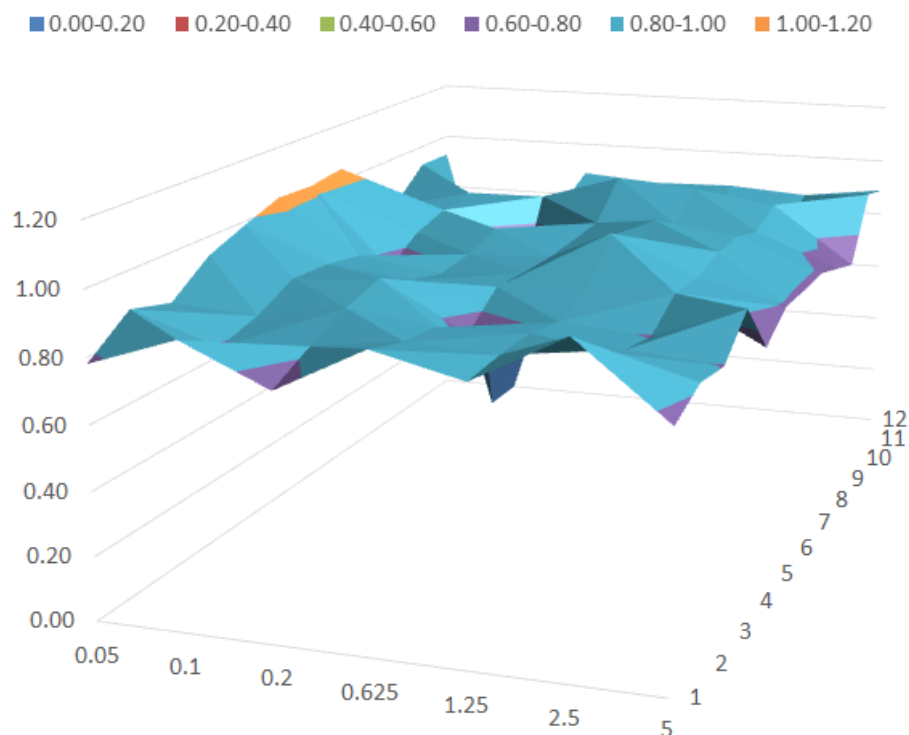
Tabela 1. Rezultati Monte Karlo simulacija – apsorbovana doza po čestici za ozračivanje u poljima zračenja radionuklida ^{137}Cs i ^{60}Co , bez dodatnih materijala, kao i uz dodatak olovne ploče, fiziološkog rastvora, i kombinacije ovih materijala.

	Co	Co Pb	Co FR	Co Pb FR	Cs	Cs Pb	Cs FR	Cs Pb FR
Dozimetar	D(Gy)/čestici							
1	1.00E-14	3.32E-15	1.06E-14	3.40E-15	5.85E-15	5.49E-16	6.20E-15	5.67E-16
2	2.15E-14	6.67E-15	2.12E-14	6.32E-15	1.25E-14	1.11E-15	1.24E-14	1.05E-15
3	2.15E-14	6.67E-15	2.12E-14	6.31E-15	1.25E-14	1.11E-15	1.24E-14	1.05E-15
4	1.00E-14	3.32E-15	1.05E-14	3.40E-15	5.84E-15	5.47E-16	6.19E-15	5.66E-16
5	2.17E-14	7.22E-15	2.14E-14	7.04E-15	1.26E-14	1.19E-15	1.26E-14	1.17E-15
6	2.17E-14	7.23E-15	2.14E-14	7.05E-15	1.27E-14	1.19E-15	1.26E-14	1.18E-15
7	2.17E-14	7.22E-15	2.14E-14	7.05E-15	1.27E-14	1.19E-15	1.26E-14	1.18E-15
8	2.17E-14	7.24E-15	2.14E-14	7.07E-15	1.27E-14	1.20E-15	1.26E-14	1.18E-15
9	1.00E-14	3.32E-15	1.05E-14	3.41E-15	5.84E-15	5.48E-16	6.19E-15	5.67E-16
10	2.15E-14	6.65E-15	2.12E-14	6.30E-15	1.25E-14	1.11E-15	1.24E-14	1.05E-15
11	2.15E-14	6.67E-15	2.12E-14	6.32E-15	1.25E-14	1.11E-15	1.24E-14	1.05E-15
12	1.00E-14	3.33E-15	1.06E-14	3.41E-15	5.85E-15	5.48E-16	6.20E-15	5.68E-16
Sr. vr.	1.77E-14	5.74E-15	1.77E-14	5.59E-15	1.03E-14	9.49E-16	1.04E-14	9.30E-16
R	1.00E+00	3.09E+00	1.00E+00	3.17E+00	1.72E+00	1.87E+01	1.71E+00	1.91E+01

Tabela 2. Rezultati očitavanja TL dozimetara dobijeni eksperimentalnim postupkom ozračivanja.

Referentna doza	50 mGy	100 mGy	200 mGy	625 mGy	1.25 Gy	2.5 Gy	5 Gy
Dozimetar	D(Gy)						
1	3.91E-02	8.76E-02	1.51E-01	5.61E-01	1.04E+00	2.46E+00	3.82E+00
2	4.42E-02	7.92E-02	1.64E-01	5.36E-01	1.05E+00	2.20E+00	4.08E+00
3	4.22E-02	8.27E-02	1.75E-01	5.24E-01	1.06E+00	2.05E+00	3.98E+00
4	4.70E-02	8.87E-02	1.82E-01	4.72E-01	1.02E+00	1.99E+00	4.52E+00
5	4.94E-02	8.79E-02	1.69E-01	5.30E-01	1.08E+00	2.18E+00	3.62E+00
6	5.16E-02	8.55E-02	1.63E-01	5.25E-01	1.24E+00	2.16E+00	3.97E+00
7	5.13E-02	7.57E-02	1.65E-01	5.23E-01	1.08E+00	2.24E+00	3.95E+00
8	5.21E-02	8.33E-02	1.73E-01	5.28E-01	1.17E+00	2.25E+00	3.95E+00
9	4.25E-02	8.65E-02	1.65E-01	5.35E-01	1.09E+00	2.16E+00	3.76E+00
10	4.15E-02	8.83E-02	1.77E-01	6.08E-01	1.19E+00	2.28E+00	3.56E+00
11	4.65E-02	8.65E-02	1.67E-01	5.02E-01	1.01E+00	1.96E+00	4.60E+00
12	4.64E-02	8.83E-02	1.82E-01	5.41E-01	1.09E+00	2.13E+00	4.45E+00
Sr. vr.	4.61E-02	8.45E-02	1.69E-01	5.32E-01	1.09E+00	2.17E+00	3.75E+00
St. dev.	4.34E-03	4.09E-03	8.91E-03	3.22E-02	7.09E-02	1.35E-01	3.40E-01
CoV (%)	9.41	4.84	5.27	6.06	6.50	6.23	9.05

**Slika 3. Linearnost očitavanja TL dozimetara**



Slika 4. Prostorna raspodela doza

Diskusija

Na osnovu rezultata Monte Karlo simulacija odstupanje apsorbovane doze u slučaju kada je fiziološki rastvor prisutan i kada nije, iznosi 3 % odakle se zaključuje da su svi uslovi ravnoteže sekundarnih nalektrisanih čestica ispunjeni kada bi se koristio TLD sistem za proveru tačnosti bez prisustva uzoraka krvi. Dobijeni rezultati očitavanja TL dozimetara pokazuju odstupanja od isporučених vrednosti apsorbovanih doza u intervalu od 7.8 % do 19.6 % (usrednjeno 14 % na datom opsegu doza) uz zadovoljavajuću linearnost ($R = 0.997$). Za izabranu debljinu olova ($d = 2.4$ cm) očekivane vrednosti slabljenja za ^{60}Co i ^{137}Cs iznose 3.03 i 11.76, respektivno, dok su vrednosti slabljenja dobijene simulacijama redom 3.09 i 10.89. Odstupanja ovih slabljenja iznose 2 % i 8 %, što potvrđuje postavljenu geometriju simulacija, te se odavde sada mogu izračunati konverzioni koeficijenti za polje ^{137}Cs u kojem inicijalni TL sistem nije kalibrisan. Prikazana prostorna raspodela doza prikazuje zadovoljavajuću uniformnost polja ozračivanja (koeficijent varijacije manji od 10%), što dodatno potvrđuje adekvatnost izračunatih konverzionih koeficijenata.

Zaključak

Na osnovu rezultata dobijenih simulacijama i eksperimentalnim putem pokazano je da ovakav metod može u potpunosti da se primeni za potrebe provere tačnosti, linearnosti i prostorne raspodele isporučene doze u uzorcima krvi za bilo koji sistem ozračivača krvi. Sledeće istraživanje će obuhvatiti opseg doza zračenja $\sim 10\text{Gy}$ i više, i tako upotpuniti krivu linearnosti.

Literatura

- [1] Moradi F. et al, Dose mapping inside a gamma irradiator measured with doped silica fibre dosimetry and Monte Carlo simulation, Radiation Physics and Chemistry Volume 140 (2017) 107-111
- [2] De Amorin Soares G. et al, Blood Compounds irradiation process: Assessment of absorbed dose using fricke and thermoluminescent dosimetric systems,
- [3] X-5 Monte Carlo Team, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code version 5 Volume 1 – Theory and overview, 2003
- [4] X-5 Monte Carlo Team, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code version 5 Volume 2 – Users guide, 2003

APPLICATION OF TL DOSIMETERS FOR TESTING THE ACCURACY OF DELIVERED DOSE IN BLOOD IRRADIATOR

Jelena VLAHOVIĆ^{1,2}, Predrag BOŽOVIĆ¹, Andrea KOJIĆ¹, Nikola KRŽANOVIĆ¹,
Dušan TOPALOVIĆ¹, Jelena STANKOVIĆ PETROVIĆ¹

- 1) *Institute for nuclear Sciences Vinca, Institute of national significance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*
- 2) *Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Novi Sad, Serbia*

ABSTRACT

The aim of this work is to examine the accuracy of the delivered dose inside the blood irradiator using TL dosimeters. The TL dosimeters were placed behind the lead plate and were irradiated with absorbed dose values ranging from 50 mGy to 5 Gy in the ⁶⁰Co reference radiation field. The deviations of the TL dosimeter readings in relation to the delivered values of the absorbed dose range from 7.8 % to 19.6 % with satisfactory linearity over the entire range of delivered doses (R=0.997). Monte Carlo simulations were used to determine the conversion coefficients for the application of this method in the ¹³⁷Cs radiation field for devices that work with this type of radiation source.

**БИОЛОШКИ ЕФЕКТИ
ЈОНИЗУЈУЋИХ ЗРАЧЕЊА**

**BIOLOGICAL EFFECTS
OF IONIZING RADIATION**

SINTEZA LUTECIJUMA(III) KOMPLEKSA SA POLIAZAMAKROCİKLIČNIM LIGANDOM

Vojislav STANIĆ¹, Slađana TANASKOVIĆ², Ivana JELIĆ¹, Marija JANKOVIĆ¹,
Dragoljub JOVANOVIĆ³, Tamara GERIĆ⁴, Branislav NASTASIJEVIĆ¹

- 1) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke Vinča, Beograd, Srbija,*
- 2) *Univerzitet u Beogradu, Farmaceutski fakultet, Beograd, Srbija,*
- 3) *Univerzitet u Beogradu, Veterinarski fakultet, Beograd, Srbija,*
- 4) *Institut za higijenu i tehnologiju mesa, Beograd, Srbija,*

Autor za korespondenciju: Vojislav STANIĆ, voyo@vinca.rs

SAŽETAK

Radijaciono zračenje predstavlja specifičan način onkološkog lečenja, kod kojeg se antitumorski efekat postiže dejstvom jonizujućeg zračenja. Visokoenergetsko jonizujuće zračenje oštećuje genetski materijal ćelija tumorskog tkiva i tako ograničava ili onemogućuje njihovu sposobnost daljnjeg deljenja. Radioizotopi koji se koriste u lečenju u većini slučajeva generišu beta zračenje koje izaziva uništenje obolelih ćelija. Interesovanje za razvoj ¹⁷⁷Lu kao radiofarmaceutika može se pripisati podobnosti njegovih nuklearnih svojstava za terapijsku upotrebu, emisija β(-) i γ zračenja i njegovo dobro kompleksiranje sa raznim ligandima. U ovom radu je prikazana preliminarna sinteza kompleksa Lu(III) sa poliazamakrocikličnim ligandom.

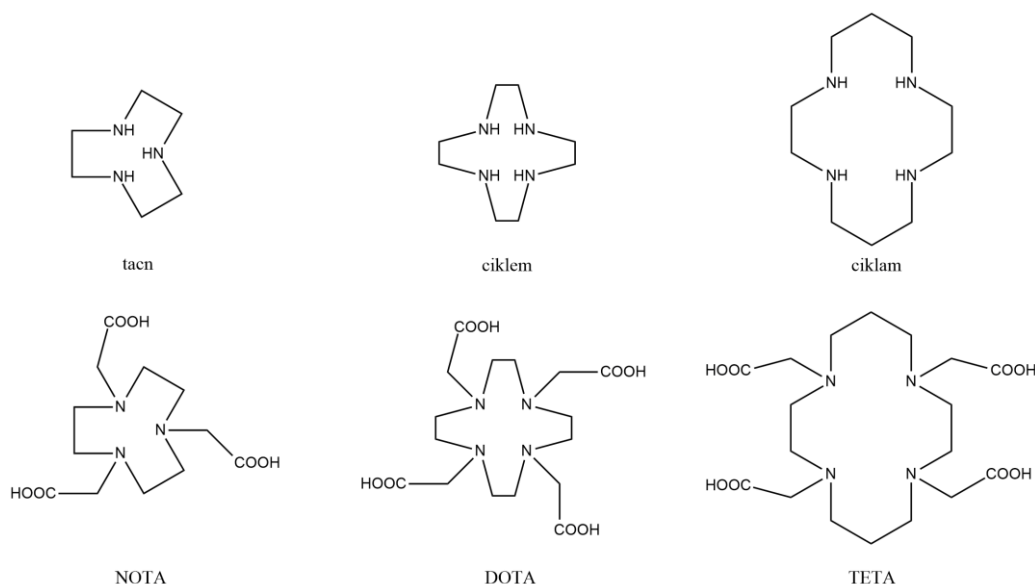
Uvod

Radionuklidi i radiofarmaceutici se u medicini široko primenjuju u dijagnostici kao obeleživači ili u terapiji kao ozračivači. Radiofarmaceutik se sastoji od radionuklida koji je hemijski vezan za biološki aktivna jedinjenja. Svrha radionuklida u radiofarmaceutiku je da se on nakon aplikacije detektuje i prati njegove metaboličke distribucije u živom biološkom sistemu odgovarajućim uređajima, dok farmaceutik ima ulogu vezivanja za ispitivani organ ili učestvuje u njegovoj fiziološkoj funkciji. Primena radiofarmaceutika je u stalnom razvoju i postala je veoma važna za kliničku praksu. Izotopi koji se koriste u dijagnostici su gama i pozitronski emiteri sa emiterima alfa i beta čestica od interesa za ciljane aplikacije radioterapije. Izotopi koji se najčešće koriste u dijagnostici su: ^{99m}Tc, ¹¹¹In, ⁶⁸Ga i ⁹⁰I. Tehnecijum-99m je najpoznatiji i najviše korišćeni radionuklid u dijagnostici [1].

Pored dijagnostike, radiofarmaceutici se sve više koriste i u terapiji. Princip primene radiofarmaceutika se zasniva na selektivnoj depoziciji doza jonizujućeg zračenja u tkivima tumora ili organa koji se tretiraju. Savremena nuklearna medicina za terapiju koristi radionuklide koji emituju beta čestice ili istovremeno beta čestice i prateće gama zračenje koje se koristi za dozimetriju, praćenje akumulacije i *in vivo* kontrolisanje efekata terapije. Terapijska primena farmaceutika u nuklearnoj medicini se zasniva na principu njegovog karakterističnog metabolisanja. Uspešnost terapije pomoću radiofarmaceutika ne zavisi samo od njegovih fizičkih, hemijskih i biohemijskih osobina već i od prirode i lokacije patološkog procesa. U svetu se vrše intenzivna istraživanja u cilju izbora najpogodnijeg radionuklida za datu patološku indikaciju. Vreme poluraspada radionuklida mora biti optimizovano kako bi se postigao željeni terapijski efekat, i da se tretman po potrebi može ponoviti. U terapijske svrhe se najviše koriste radionuklidi – ³²P, ⁸⁹Sr, ⁹⁰Y i ¹³¹I, razmatraju se novi, kao što su, na primer, ¹⁵³Sm, ¹⁸⁶Re ili ¹⁸⁸Re. Jedan od potencijalno vrlo korisnih radionuklida je ¹⁷⁷Lu.

Njegovo vreme poluraspada iznosi 6,7 dana i emituje visoko energetske beta čestice sa $E_{\beta \text{ max}} = 497 \text{ keV}$ (78.6 %), 384 keV (9.1 %) i 176 keV (12.2 %), i gama fotone $E_{\gamma} = 208 \text{ keV}$ (11.1%), 113 keV (6.6%). Postoje i višestruki rendgenski zraci niske energije (65 keV ili manje), ali emituju se u kratkom vremenskom periodu [2]. Prisustvo gama fotona omogućava procenu efikasnosti lečenja primenjenog ^{177}Lu . Trenutno, ^{177}Lu se može koristiti za lečenje stanja poput raka prostate, neuroendokrinih tumora i određenih metastatskih lezija na kostima i na limfnim čvorovima [3-5].

Makrociklični ligandi, koordinacijom sa metalnim jonima grade stabilne komplekse različitih struktura, katalitičkih, redoks i drugih osobina. Neki od njih se koriste kao modeli za aktivne centre metaloenzima, potencijalno su bioaktivni, mogu se koristiti u raznim oblastima medicine u oblasti dijagnostike ili za lečenje raznih bolesti [6, 7]. Upotreba makrocikličnih liganada kao helatora u radiofarmaceutskim preparatima i formiranje bifunkcionalnih helatora je predmet mnogih istraživanja u svetu [5, 8]. Posebno su interesantni azamakrociklični ligandi, zbog svojih koordinativnih svojstava koja delimično zavise od veličine njihovog prstena i raznih bočnih modifikacija sa ligatorskim funkcionalnim grupama. Najčešće do sada istraživani azamakrociklični ligandi u sintezi radiofarmaceutika su: tacn, ciklen, ciklam, NOTA, DOTA i TETA, kao i njihovi supstitucionni dervati Slika 1. [9]



Slika 1. Azamakrociklični ligandi korišćeni u sintezi radiofarmaceutika [9].

U ovom radu, 1,4,8,11-tetraazaciklotetradekan (ciklam) kao makrociklični ligand je korišćen za sintezu kompleksa sa jonom lutecijuma (III).

Eksperimentalni deo

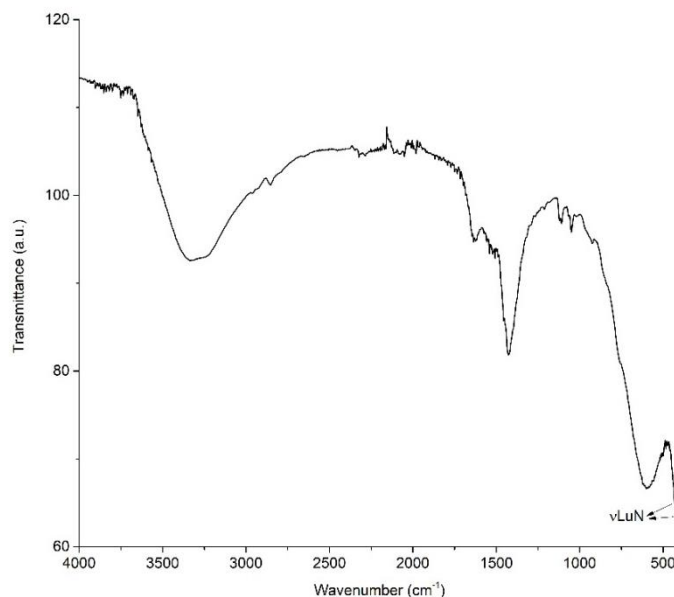
Hemikalije: LuCl_3 i CH_3CN dobijene od Merck, Nemačka; 1,4,8,11-tetraazaciklo- tetradekan (ciklam) od Aldrich, USA, sve hemikalije su p.a. čistoće.

Rastvor LuCl_3 (35 mg; 0,125 mmol) u vodi (5 mL) i suspenzija ciklama (25,15 mg; 0,125 mmol) u CH_3CN (5 mL) su pomešani i zagrevani na vodenom kupatilu ($80 \text{ }^\circ\text{C}$) 48 h uz mešanje i refluks. Nakon toga je reakciona smeša filtrirana pod vakuumom, prekrivena parafilnom koji je perforiran i ostavljena u frižideru preko noći. Beli mikrokristali su se pojavili nakon nekoliko dana, izolovani vakuum filtracijom i ostavljeni u eksikatoru iznad silika gela.

Infracrveni spektri su snimljeni na NICOLET-u6700 FTIR (ATR tehnika) u opsegu 400–4000 cm^{-1} .

Rezultati i diskusija

Infracrvena spektroskopija (IR) se može koristiti za identifikaciju jedinjenja i proučavanje odgovarajućih hemijskih interakcija metal-ligand u koordinacionoj hemiji. Frekvencije na kojima molekuli apsorbuju IR zračenje zavise od funkcionalnih grupa, unutrašnjih vibracija molekula, i interakcije sa okolnim molekulima. Slika 2. prikazuje FTIR spektar sintetizovanog kompleksnog jona $[\text{Lu}(\text{tpmc})]^{3+}$.



Slika 2. Infracrveni spektar dobijenog kompleksnog jona $[\text{Lu}(\text{ciklam})]^{3+}$.

U Tablici 1. prikazane su karakteristične frekvencije za ciklam i dobijeni kompleksni jon $[\text{Lu}(\text{ciklam})]^{3+}$. Slobodan ligand ciklam u IR spektrima pokazuje više karakterističnih νNH traka u oblasti od 3300 do 3000 cm^{-1} koje potiču od slobodnih $-\text{NH}$ grupa kao i od njihovih međusobnih vodoničnih veza. U kompleksnom jonu $[\text{Lu}(\text{ciklam})]^{3+}$ navedene νNH trake su spojene u jednu široku, kao posledica koordinativnog vezivanja jona $\text{Lu}(\text{III})$ za $-\text{NH}$ grupe iz liganda. Najintenzivnije trake na oko 1467 i 1428 cm^{-1} u ligandu i kompleksu mogu se pripisati δCH asimetričnom i simetričnom vibracijama. Traka na 1128 cm^{-1} u ligandu je pomeren na 1122 cm^{-1} i 1110 cm^{-1} u kompleksu što odgovara νCN vibraciji. Slaba traka na 1068 cm^{-1} u ligandu ostaje na istoj frekvenciji u kompleksu; prema tome, ovaj opseg se može pripisati νCC vibraciji. Traka koja se nalazi samo u spektru kompleksa na 1016 cm^{-1} treba da odgovara dNH modu [10]. Trake na 430 i 421 cm^{-1} se nalaze samo u spektru kompleksa i pripisuju se valencionim vibracijama (νLuN). Frekvencije dodeljene νLuN modovima su u opsegu sličnim za νCuN trake u kompleksu $\text{Cu}(\text{II})$ sa ciklamomi νCrN u kompleksu $\text{Cr}(\text{III})$ sa 1,4,8,12-tetraazaciklopentadekanom [10, 11]. Pomeranje ili gubitak odgovarajućih frekvencija karakterističnih za ciklam kao i pojava novih frekvencija na 430 i 421 cm^{-1} u kompleksnom jonu $[\text{Lu}(\text{ciklam})]^{3+}$ su posledica promene u strukturi liganda usled koordinativnog vezivanja ligandnih atoma N za jon $\text{Lu}(\text{III})$.

Tablica 1. Položaj infracrvenih frekvencija u ligandu ciklamu [10] i u kompleksnom jonu [Lu(ciklam)]³⁺

Ciklam	[Lu(ciklam)] ³⁺	Tip vibracije
	3330 vs	vOH (H ₂ O prisutna)
3268 vs	3226 vs	
3187vs		vNH
3000 ms		
2917 bs		
2873 bs	2850 m	vCH
2803 bvs		
2657 ms	2647 vw	
2589 vw		
	1620 m	
1519 ms	1520 vw	
1467 vs	1457 (rame)	δCH
1434 sh	1428	
1377 vw		
1335 s	1337 vw (prevoj)	vCC + δCH
1286 s	1287 vw	
1254 sh		
1207 s	1210 vw	
1128 vs	1122 w	vCN + δCH
	1110	
	1116 vw	
1068 s	1068 vw	
	1050 w	
967 s		δNH
941 sh	924 vw	
894 bms		ρCH
832 vs		ρCH + CC
794 ms		
522 ms		Makrociklične deformacije
	430	vLuN
	421	
380 w		
337 s		
272 w		Makrociklične deformacije
261 w		
210 vs		
188 s		
129 bms		

*Relativni intenzitet: ms, veoma jaka; s, jaka; m, srednja; w, slaba; vw, veoma slaba; b, široka

Zaključak

Sintetisan je novi katjonski kompleks Lu (III) sa makrocikličnim ligandom, 1,4,8,11-tetraazaciklotetradekanom (ciklam). Podaci infracrvene spektroskopije sugerišu da je makrociklični ligand preko atoma azota koordinativno vezan za jon Lu (III).

Zahvalnica

Istraživanje je finansijski podržano od strane Ministarstva za nauku, tehnološki razvoj i inovacije Republike Srbije (evidencioni broj Aneksa ugovora: 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] J. Vučina, R. Han. Primena radionuklida u terapiji. Medicinski Pregled Vol 5-6, 2001,245-250.
- [2] B. P. Van Wyk, F. Hasford, N. E. Nyakale, M.-D.-T. Vangu, B. Oelofse, H. M. Leboea, Critical appraisal of radionuclide calibrators and gamma cameras prior to Lutetium-177 internaldosimetry at two south african hospitals. World Journal of Nuclear Medicine, 2022, 21.01: 044-051.
- [3] C. J. Smith, H. Gali, G. L. Sieckman, D. L. Hayes, N. K. Owen, D. G. Mazuru, W. A. Volkert, T. J. Hoffman, Radiochemical investigations of ^{177}Lu -DOTA-8-Aoc-BBN[7-14]NH₂: an *in vitro/in vivo* assessment of the targeting ability of this new radiopharmaceutical for PC-3 human prostate cancer cells. Nuclear Medicine and Biology 30,2003, 101–109.
- [4] R. Bergmann, M. Meckel, V. Kubiček, J. Pietzsch, J. Steinbach, P. Hermann, F. Rösch, ^{177}Lu -labelled macrocyclic bisphosphonates for targeting bone metastasis in cancer treatment. EJNMMI Research Vol 6, 2016, 5. doi:10.1186/s13550-016-0161-3
- [5] J. M. Kelly, A. Amor-Coarasa, A. Nikolopoulou, D. Kim, C. Williams Jr., S. Vallabhajosula, J. W. Babich, Assessment of PSMA targeting ligands bearing novel chelates with application to theranostics: Stability and complexation kinetics of $^{68}\text{Ga}^{3+}$, $^{111}\text{In}^{3+}$, $^{177}\text{Lu}^{3+}$ and $^{225}\text{Ac}^{3+}$. Nuclear Medicine and Biology Vol 55, 2017, 38–46. doi:10.1016/j.nucmedbio.2017.10.001.
- [6] A. Majkowska-Pilip, A. Bilewicz, Macrocyclic complexes of scandium radionuclides as precursors for diagnostic and therapeutic radiopharmaceuticals. Journal of Inorganic Biochemistry Vol 105, 2011, 313-320.
- [7] R. Kanaoujiya, D. Singh, T. Minocha, S. K. Yadav, S. Srivastava, Synthesis, characterization of ruthenium (III) macrocyclic complexes of 1,4,8,11-tetraazacyclotetradecane(cyclam) and *in vitro* assessment of anti-cancer activity. Materials Today: Proceedings Vol 65, 2022, 3143–3149.
- [8] A. Hu, V. Brown, S. N. MacMillan, V. Radchenko, H. Yang, L. Wharton, C. F. Ramogida, J. J. Wilson, Chelating the alpha therapy radionuclides $^{225}\text{Ac}^{3+}$ and $^{213}\text{Bi}^{3+}$ with 18-membered macrocyclic ligands macrodipa and py-macrodipa. Inorganic Chemistry Vol 61, 2022, 801–806. doi:10.1021/acs.inorgchem.1c03670.
- [9] R. E. Mewis, S. J. Archibald, Biomedical applications of macrocyclic ligand complexes. Coordination Chemistry Reviews 254, 2010, 1686–1712.
- [10] G. F. Diaz, R.E. C. Clavijo, M.M. Campos-Vallette, M S. Saavedra, S Diez, R Muñoz, Specular reflectance infrared spectra of the macrocycles cyclam and cyclamdione and their Cu(II) complexes deposited onto a smooth copper surface. Vibrational Spectroscopy Vol 15, 1997, 201–209. doi: 10.1016/S0924-2031(97)00032-5.
- [11] P. Chaudhuri, K. Wieghardt, The chemistry of 1,4,7-triazacyclononane and related tridentate macrocyclic compounds, in: Progress in Inorganic Chemistry, US, 329-436.

SYNTHESIS OF LUTETIUM(III) COMPLEX WITH A POLYAZAMACROCYCLIC LIGAND

Vojislav STANĆ¹, Slađana TANASKOVIĆ², Ivana JELIĆ¹, Marija JANKOVIĆ¹,
Dragoljub JOVANOVIĆ³, Tamara GERIĆ⁴, Branislav NASTASIJEVIĆ¹

- 1) *University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences - Institute of National Importance for the Republic of Serbia, Radiation and Environmental Protection Department, Mike Petrovića Alasa 12-14, 11001 Belgrade, Serbia*
- 2) *Faculty of Pharmacy, University of Belgrade, Serbia*
- 3) *Faculty of Veterinary Medicine, University of Belgrade*

ABSTRACT

Radiation is a specific method of oncological treatment, in which the action of ionizing radiation achieves the antitumor effect. High-energy ionizing radiation damages the genetic material of tumor tissue cells and thus limits or disables their ability to divide further. Radioisotopes used in treatment in most cases generate beta radiation that causes the destruction of diseased cells. The interest in developing ¹⁷⁷Lu as a radiopharmaceutical can be attributed to the suitability of its nuclear properties for therapeutic use, the emission of $\beta(-)$ and γ radiation, and its good complexation with various ligands. This paper presents the preliminary synthesis of Lu(III) complex with a polyazamacrocyclic ligand

ANTIOKSIDATIVNI I RADIOPROTEKTIVNI EFEKAT FLAVONOIDA NA UČESTALOST MIKRONUKLEUSA U HUMANIM LIMFOCITIMATijana MILOVANOVIĆ¹, Miroslava STANKOVIĆ¹1) *Javno preduzeće „Nuklearni objekti Srbije”, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd**Autor za korespondenciju: Tijana MILOVANOVIĆ,
tijana.milovanovic@nuklearniobjekti.rs***SAŽETAK**

Analizirani su potencijalni protektivni genotoksični efekti flavonoida (procijanidola, kvercetina i arbutina) izolovanih iz semenki i pokožice crnog grožđa i biljke *Atriplex littoralis*. Efekat ovih flavonoida na genotoksičnost ispitivan je mikronukleus (MN) testom na humanim limfocitima u *in vitro* uslovima. Prisutnost mikronukleusa smatra se kvantitativnim pokazateljem strukturnih i/ili numeričkih aberacija hromozoma, nastalih pod dejstvom genotoksičnih agenasa. Dobijeni rezultati pokazuju da flavonoidi koji su u ovom eksperimentu korišćeni, smanjuju bazalni nivo (broj i frekvencu) mikronukleusa. Kako broj mikronukleusa služi kao indikator DNK oštećenja, naši rezultati su pokazali da ispitivani flavonoidi imaju dobar protektivni efekat na DNK molekule. Pored toga, dobijeni rezultati su pokazali da se prosečna učestalost mikronukleusa menja sa promenom koncentracije flavonoida koje se dodaju ćelijskim kulturama. U opsegu ispitivanih koncentracija flavonoida, najveće smanjenje bazalnog nivoa mikronukleusa postiže se sa koncentracijom od 1 µg/mL. Povećavanjem koncentracije flavonoida, dolazi do porasta učestalosti mikronukleusa. Posebno dobre protektivne efekte pokazuje arbutin koji smanjuje frekvencu mikronukleusa za čak 43,6 % u odnosu na kontrolnu grupu.

Uvod

U savremenoj radijacionoj citogenetici odavno je prihvaćen postulat po kome DNK molekul, kao esencijalni biološki supstrat, predstavlja najznačajniju metu jonizujućeg zračenja [1]. Indukovane lezije na molekulu DNK i neuspeli pokušaji njihove popravke vidljivi su u fazi deobe ćelije kao raznovrsni hromozomski oblici, kakvi normalno ne postoje u humanom kariotipu, a nazivaju se hromozomskim aberacijama. Poznato je da su hromozomske aberacije krajnji rezultat čitavog niza kompleksnih biohemijskih reakcija i verovatno citološka manifestacija neuspešnih pokušaja ćelije da molekularnim intervencijama popravi i eliminiše primarno oštećenje na naslednom materijalu [2].

Pojačano stvaranje slobodnih radikala mogu favorizovati spoljašnji činioci kao što su: jonizujuće zračenje, metaboliti različitih toksičnih jedinjenja i lekova kao i povećana koncentracija kiseonika. U uslovima nekontrolisanog stvaranja slobodnih radikala, njihova količina može prevazići kapacitet ćelije i tada nastaje oksidativni stres.

Pri ispitivanju radioprotektivne efikasnosti jedinjenja različitih struktura, u *in vitro* i *in vivo* uslovima, najbolje zaštitne osobine su pokazala jedinjenja koja u svom molekulu imaju dve grupe različite po hemijskim osobinama: jednu koja nosi bazne osobine – aminogrupu i drugu, koja ima kisela svojstva određene jačine, raspoređene jedna od druge na odstojanju od 2 do 3 metilenske grupe [3].

Prirodni polifenoli su najveća i najrasprostranjenija grupa sekundarnih metabolita viših biljaka. Veoma su heterogeni po svojoj strukturi, a zajednička osobina im je prisustvo fenolne funkcionalne grupe. Najrasprostranjenija grupa polifenola su flavonoidi. To su jedinjenja koja

se najčešće nalaze u prirodi. To su jedinjenja sa 4 ili 5 OH-grupa, veći broj OH-grupa poboljšava njihova antioksidativna svojstva [3].

Jedan od načina za dobijanje boljih rezultata u citogenetskim ispitivanjima je povećanje broja analiziranih ćelija po ispitaniku. U vezi sa tim, analiza citokinezis blok mikronukleus test za sada predstavlja najbolje rešenje. Sigurnost citokinezis blok mikronukleus testa zasniva se na činjenici da se iz jednog uzorka može analizirati više desetina hiljada binuklearnih limfoblasta, što daje objektivnu sliku učestalosti i distribucije hromozomskih aberacija [4]. Osnovna prednost citokinezis blok mikronukleus testa je pouzdana identifikacija ćelija koje su prošle samo jednu deobu [2]. Citokinezis blok mikronukleus test nalazi široku primenu u ispitivanju mutagenog efekta različitih agenasa [5]. Od strane velikog broja autora ova metoda je predložena kao alternativa za dugotrajne metafazne analize hromozoma [1,4,5], naročito kada se radi o populacionim monitoring studijama u kojima je potrebna brza i precizna informacija da li je data supstanca genotoksična ili ne.

Materijal i metode

Analiza mikronukleusa je rađena na limfocitnoj kulturi četiri zdrave, odrasle osobe ženskog pola, prosečne starosti 43,5 godine, koje profesionalno nisu izložene fizičkim ili hemijskim mutagenima. Agensima životne sredine smo svi izloženi od rođenja, a ovde su kao kontrola uzeti ljudi koji profesionalno nisu izloženi hemijskim i fizičkim mutagenima. Svi analizirani efekti aplikovanih ekstrakata u koncentracijama od 1,0 µg/mL i 3,5 µg/mL su testirani *in vitro* citokinezis blok mikronukleus testom.

Za svaku ispitivanu osobu su postavljene dve kulture. Za svaku ispitivanu osobu je postavljena pozitivna kontrola, negativna kontrola i obična kontrola. Kao negativna kontrola korišćen je alkilirajući agens, mitomicin C (MMC) u finalnoj koncentraciji 0,2 µg/mL [5]. Pozitivna kontrola je bio amifostin WR-2721 (agens za reparaciju DNK) u koncentraciji 1 µg/mL. U običnu kontrolu ništa nije dodavano. U ostale kulture su dodavani flavonoidi u različitim koncentracijama.

Sve kulture su inkubirane u termostatu na 37 °C tokom 19 sati. Posle toga su sve kulture isprane u čistom medijumu, dodato je 5 mL svežeg RPMI 1640 hranjivog medijuma (RPMI 1640 Medium + GlutaMAX + 25 mM HEPES) i nastavljeno je inkubiranje u toku 72 sata.

Nakon 44 sati inkubacije dodaje se citohalazin-B u konačnoj koncentraciji od 6 µg/mL i inkubiranje se nastavlja još 24 sata. Nakon završenih 72 sata vrši se centrifugiranje (na 1200 rpm), ispiranje ćelija u 0,9 % NaCl, ponovo centrifugiranje ćelija (na 1200 rpm) i ispiranje u blago hipotoničnom rastvoru koji se sastojao od 0,56 % KCl + 0,9 % NaCl, u odnosu 1:1. Suspenzija ćelija se fiksira u rastvoru metanola i sirćetne kiseline u odnosu 3:1. Preparati su osušeni na vazduhu i bojeni 2 %-tnim rastvorom Gimza boje. Za analizu mikronukleusa je prebrojano 1000 binuklearnih ćelija po uzorku, po kriterijumima [6] i [7].

Rezultati su izraženi kao srednja vrednost ± standardna greška (SE). Statistička analiza je rađena koristeći Origin softverski paket verzija 7.0.

Statistička značajnost je računata pomoću analize varijanse (One-way ANOVA) korišćenjem Tukey test-a. Smatrane su statistički značajnim razlike za koje je $p < 0,05$ i $p < 0,01$.

Dejstvo ispitivanih ekstrakata na ćelijsku proliferaciju je ispitivano određivanjem proliferacijskog indeksa (CBPI), koji se računa kao $[(MI + 2MII + 3(MIII + MIV))/N]$, gde M I–IV predstavlja broj ćelija sa 1 do 4 jedara, a N je ukupan broj izbrojanih ćelija [2].

Rezultati i diskusija

Uticaj flavonoida (procijanidola, kvercetina i arbutina), na hromozomske aberacije u perifernim limfocitima, ispitivan je citokinezis blok mikronukleus testom u koncentracijama od 1,0 $\mu\text{g/mL}$ i 3,5 $\mu\text{g/mL}$. Određena je učestalost i raspodela mikronukleusa (MN) u humanim limfocitima.

Tretiranje ćelija mitomicinom C (negativna kontrola), u koncentraciji od 0,2 $\mu\text{g/mL}$ dovodi do značajnog povećanja učestalosti MN od 37 % u poređenju sa kontrolnom grupom. U ćelijskim kulturama tretiranim amifostinom WR-2721 (pozitivna kontrola) u koncentraciji od 1,0 $\mu\text{g/mL}$, dolazi do smanjenja učestalosti mikronukleusa od 14 % u poređenju sa kontrolnim ćelijskim kulturama. Arbutin, procijanidol i kvercetin, u koncentraciji od 1,0 $\mu\text{g/mL}$ dovode do smanjenja učestalosti MN za (43,6 %, 42 % i 22 %), u odnosu na kontrolne ćelijske kulture. Koncentracija arbutina i procijanidola od 3,5 $\mu\text{g/mL}$, dovodi do smanjenja učestalosti MN za (18 % i 19 %), u odnosu na kontrolne ćelijske kulture (tabela 1). Ovo smanjenje je veće nego u slučaju sintetskog radioprotektora amifostina koji za 14 % smanjuje učestalost mikronukleusa u odnosu na kontrolne ćelijske kulture. Koncentracija kvercetina od 3,5 $\mu\text{g/mL}$, pokazuje vrednosti koje su slične vrednostima u kontrolnim ćelijskim kulturama. Kako broj mikronukleusa služi kao indikator DNK oštećenja, dobijeni rezultati pokazuju da ispitivani flavonoidi u koncentraciji od 1,0 $\mu\text{g/mL}$ pokazuju snažan protektivni efekat na humane hromozome.

Tabela 1: Učestalost MN, % binuklearnih ćelija sa MN, distribucija MN po ćeliji i citokinezis blok proliferacioni indeks, mereno u ćelijskim kulturama limfocita koji su tretirani različitim koncentracijama flavonoida

Kontrola [$\mu\text{g/mL}$]	MN/1000 BN ćelija mean \pm s.e.	% BN ćelija sa MN mean \pm s.e.	MN/BN Ćelija mean \pm s.e.	PRI mean \pm s.e.	Frekvencija MN u odnosu na koncentraciju
Kontrolne ćelije	26,4 \pm 1,18	2,3 \pm 0,10	1,2 \pm 0,05	1,7 \pm 0,05	100 %
Amifostin (1 $\mu\text{g/mL}$)	22,7 \pm 0,51 ^{a,c}	1,9 \pm 0,04	1,2 \pm 0,03	1,6 \pm 0,02	86 %
Mitomicin C (0,2 $\mu\text{g/mL}$)	36,9 \pm 0,85 ^{a,b}	3,4 \pm 0,13	1,1 \pm 0,03	1,7 \pm 0,08	136,9 %
Kvercetin 1 $\mu\text{g/mL}$	20,6 \pm 1,11 ^{a,b,c}	1,7 \pm 0,07	1,2 \pm 0,05	1,7 \pm 0,04	78 %
Kvercetin 3,5 $\mu\text{g/mL}$	25,3 \pm 0,85 ^{b,c}	2,0 \pm 0,08	1,2 \pm 0,06	1,6 \pm 0,04	96 %
Procijanidol 1 $\mu\text{g/mL}$	15,2 \pm 1,28 ^{a,b,c}	1,4 \pm 0,16	1,2 \pm 0,07	1,6 \pm 0,01	57,6 %
Procijanidol 3,5 $\mu\text{g/mL}$	21,4 \pm 1,22 ^{a,b,c}	1,8 \pm 0,17	1,1 \pm 0,07	1,6 \pm 0,03	81 %
Arbutin 1 $\mu\text{g/mL}$	14,9 \pm 0,97 ^{a,b,c}	1,4 \pm 0,11	1,2 \pm 0,07	1,6 \pm 0,03	56,4 %
Arbutin 3,5 $\mu\text{g/mL}$	21,6 \pm 0,70 ^{a,b,c}	1,7 \pm 0,09	1,2 \pm 0,03	1,7 \pm 0,01	82 %

Legenda:

MN/1000 BN ćelija \rightarrow broj mikronukleusa na 1000 pregledanih binuklearnih ćelija

MN/BN ćelija \rightarrow broj mikronukleusa/binuklearnoj ćeliji

PRI \rightarrow citokinezis blok proliferacioni indeks

Frekvencija MN \rightarrow učestalost mikronukleusa predstavljena kao % kontrolne grupe (kolika je učestalost mikronukleusa u ispitivanim uzorcima u odnosu na kontrolnu grupu)

a \rightarrow poređenje sa kontrolnom grupom

b \rightarrow poređenje sa grupom u koju je dodat amifostin

c \rightarrow poređenje sa grupom u koju je dodat MMC

Dobijeni rezultati pokazuju da postoje statistički značajne razlike u učestalosti MN, korišćenjem ANOVA-Tukey test-a ($p < 0,01$), između ćelijskih kultura kontrolne grupe i ćelijskih kultura tretiranih procijanidolom, arbutinom i kvercetinom u koncentraciji od 1,0 $\mu\text{g/mL}$. Takođe, statistički značajna razlika ($p < 0,01$) postoji i između ćelijskih kultura tretiranih amifostinom i ćelijskih kultura tretiranih procijanidolom, arbutinom i kvercetinom u koncentraciji od 1,0 $\mu\text{g/mL}$ (Tabela 1).

Zaključak

Pokazano je da flavonoidna jedinjenja utiču na smanjenje DNK oštećenja, tako što sprečavaju stvaranje slobodnih radikala. Flavonoidna jedinjenja (procijanidol, kvercetin i arbutin) smanjuju aktivnosti peroksi radikala i inhibiraju proces lipidne peroksidacije. Takođe, sa povećavanjem koncentracije flavonoida, dolazi do porasta učestalosti mikronukleusa.

Smatra se da dobra protektivna svojstva flavonoida potiču od njihove strukture. Procijanidoli su proizvodi polimerizacije flavan-3-ola do oligomera. Međutim, samo aglikonski oblik ovih jedinjenja je odgovoran za antioksidativnu aktivnost ovih molekula. Danas se zna da monomeri-katehini, efikasno hvataju OH radikale, a da dimeri procijanidola, naročito esterifikovani oblici sa galnom kiselinom na C3 poziciji, imaju mnogo veći kapacitet hvatanja kiseonikovih slobodnih radikala nego jedinjenja sa C4-C6 vezom.

Literatura

- [1] Fenech, M. Cytokinesis-Block Micronucleus Cytome Assay Evolution into a More Comprehensive Method to Measure Chromosomal Instability. *Genes* 2020, *11*, 1203.
- [2] J. Surrallés, F. Darroudi, A. T. Natarajan. Low level of DNA repair in human chromosome 1 heterochromatin, *Genes, chromosomes & cancer* vol. 20, 173-184, 1997.
- [3] J. R. Williams, P. E. Y. Spencer, C. Rice-Evans. Flavonoids: Antioxidants or signaling molecules?, *Free Radical Biology and Medicine* vol. 36, 838-894, 2004.
- [4] M. Fenech. The advantages and disadvantages of the cytokinesis-block micronucleus method, *Mutation Research: Fundamental and Molecular Mechanisms of Mutagenesis* vol. 392, 11-18, 1986.
- [5] I. Vučković, V. Vajs, M. Stanković, V. Tešević, S. Milosavljević (2010). A New Prenylated Flavanonol from *Seseli annuum* Roots Showing Protective Effect on Human Lymphocytes DNA. *Chemistry & Biodiversity*, 7(3), 698–704.
- [6] P.I. Countryman, J.A. Heddle. The production of micronuclei from chromosome aberration in irradiated cultures of human lymphocytes, *Mutation Research: Fundamental and Molecular Mechanisms of Mutagenesis* vol. 41, 321-332, 1976.
- [7] M. Fenech, A. A. Morley. The cytokinesis-block micronucleus technique: A detailed description of the method and its application to genotoxicity studies in human population, *Mutation Research: Fundamental and Molecular Mechanisms of Mutagenesis* vol. 285, 35-44, 1993.

**ANTIOXIDATIVE AND RADIOPROTECTIVE EFFECT OF FLAVONOIDS ON
FREQUENCY OF MICRONUCLEI IN HUMAN LYMPHOCYTES**Tijana MILOVANOVIĆ¹, Miroslava STANKOVIĆ¹1) *Public company „Nuclear Facilities of Serbia”, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd***ABSTRACT**

In this paper, potential protective genotoxic effects of flavonoids (procyanidol, quercetin and arbutin), isolated from the seeds and scarfskin of black grapes and the plant *Atriplex littoralis*, were analyzed. The effect of these flavonoids on genotoxicity was investigated by the micronucleus (MN) test on human lymphocytes *in vitro* conditions. The presence of micronuclei is considered as a quantitative indicator of structural and/or numerical chromosome aberrations, caused by genotoxic agents. The obtained results show that the flavonoids used in this experiment reduce the basal level (number and frequency) of micronuclei. As the number of micronuclei serves as an indicator of DNA damage, our results showed that the examined flavonoids have a good protective effect on DNA molecules. In addition, the obtained results showed that the average frequency of micronuclei changes with the change in the concentration of flavonoids added to the cell cultures. In the range of tested concentrations of flavonoids, the greatest reduction in the basal level of micronuclei is achieved with a concentration of 1 µg/mL. Increasing the concentration of flavonoids leads to an increase in the frequency of micronuclei. Particularly good protective effects are shown by arbutin, which reduces the frequency of micronuclei by 43,6 % compared to the control group.

**PROMENE GENETIČKOG MATERIJALA U LIMFOCITIMA PERIFERNE KRVI
IZLOŽENIH U VANREDNOM DOGAĐAJU NA GRANIČNOM PRELAZU BEZDAN**Jelena PAJIĆ¹, Slađana VUKOVIĆ¹, Milenko ĐUKIĆ¹, Jovica STEPOVIĆ¹, Boban RAKIĆ¹1) *Institut za medicinu rada Srbije „Dr Dragomira Karajović“, Beograd, Srbija**Autor za korespondenciju: Jelena PAJIĆ, jelena.pajic@institutkarajovic.rs***SAŽETAK**

Analiza genetičkog materijala u vanrednim pregledima ima značajnu ulogu u proceni individualnog odgovora na akcidentalna izlaganja jonizujućim zračenjima. Nakon vanrednog događaja na graničnom prelazu Bezdan, pregledanim radnicima carine I policije (N=12) uzorkovana je krv za citogenetičke analize. Rezultati su statistički obrađeni programom SPSS ver. 26.

Kod eksponovanih radnika nisu detektovane nestabilne hromozomske aberacije. Dobijeni rezultati analize mikronukleus testa kod 92% ispitanika nalaze se u referentnom opsegu za opštu populaciju Srbije (u intervalu od 3-13 mikronukleusa na 1000 binuklearnih limfocita). Kod jednog radnika broj mikronukleusa je povišen (24 mikronukleusa na 1000 binuklearnih limfocita), ali još uvek u granicama za profesionalno izložena lica, što se objašnjava obavljenim radiodijagnostičkim medicinskim izlaganjem u prethodnom šestomesečnom periodu.

Dobijeni rezultati u skladu su sa do sada zabeleženim slučajevima akcidentalnog izlaganja opšte populacije u sličnim događajima na svetskom nivou, prema podacima UNSCEAR iz 2008. godine.

Uvod

Jonizujuća zračenja su potentni klastogeni genotoksični agensi, sposobni da indukuju širok spektar oštećenja molekula DNK. Ćelijski reparativni enzimski sistemi obično nisu u stanju da poprave teške lezije DNK ili oštećenje isprave pogrešno, što prouzrokuje greške u procesu replikacije. Indukovane lezije na DNK i neuspeli pokušaji popravke vidljivi su u fazi deobe ćelije kao raznovrsni hromozomski oblici (kakvi normalno ne postoje). Nestabilne hromozomske aberacije (dicentrični hromozom, ring hromozom, praćeni acentričnim fragmentima) i mikronukleusi (kao indirektni pokazatelj učestalosti nestabilnih hromozomskih aberacija) su pokazatelji skorašnjeg ozračivanja i kao takvi koriste se u biodozimetrijskoj proceni apsorbovane doze prilikom akutne ekspozicije. Zbog toga analiza genetičkog materijala u vanrednim pregledima ima značajnu ulogu u proceni individualnog odgovora na akcidentalna izlaganja jonizujućim zračenjima [1-4].

Cilj rada

Cilj rada je analiza genetičkog materijala (nestabilnih hromozomskih aberacija i mikronukleusa) radnika na carinskom prelazu koji su tokom rutinske kontrole detektovali povećanu radioaktivnost od neovlašćeno transportovanog radioaktivnog gromobrana, a nakon obavljenih vanrednih pregleda.

Materijal i metode

Za studiju preseka analizirani su uzorci ~~perif~~ periferne krvi zaposlenih koji su obavili vanredni pregled u Institutu za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“ u periodu od

07. do 14. marta 2023. godine, prema etičkim načelima Helsinške deklaracije. Testirano je ukupno 12 radnika metodama analize nestabilnih strukturnih hromozomskih aberacija i mikronukleus testom, prema standardnom protokolu [5]. Analizom su obuhvaćeni svi radnici upućeni na pregled. Statistička analiza je sprovedena upotrebom softverskog paketa SPSS, verzija 26 (SPSS for Windows software package, version 26.0; SPSS Inc, Chicago, Illinois, USA), korišćenjem metoda deskriptivne statistike.

Rezultati i diskusija

Ukupno je pregledano 8 carinskih i 4 policijska radnika prosečne starosti 47 godina (u intervalu 30-62 god.). Od ukupnog broja, 8 ispitanika je bilo muškog i 4 ženskog pola. Prosečna dužina radnog staža iznosi 24 godine (u intervalu 6-38 god.), a na aktuelnom radnom mestu radnici rade u proseku 21 godinu (u intervalu 6-35 god.). Karakteristike ispitanika prikazane su na tabelama 1 i 2.

Tabela 1. Osnovne karakteristike ispitanika.

	N	Minimum	Maximum	Prosečna vrednost	SD
Godine života	12	30	62	46,9	9,1
Ukupni radni staž (godine)	12	6	38	24,1	8,5
Radni staž na aktuelnom radnom mestu (godine)	12	6	35	21,5	2,3

Tabela 2. Distribucija ispitanika u odnosu na pol.

Pol ispitanika	N	%
Muški	8	66,7
Ženski	4	33,3
Ukupno	12	100

Nakon vanrednog događaja na graničnom prelazu Bezdan, pregledanim radnicima carine i policije (N=12) uzorkovana je krv za citogenetičke analize. Informacije o hromozomskim rearanžmanima kod ljudi se najčešće dobijaju iz T limfocita periferne krvi. Oni su lako dostupni za analizu, lako se stimulišu na deobu, dugoživeći su i poseduju sposobnost recirkulacije i na taj način se ponašaju kao mali biološki dozimetri.

Spontana učestalost dicentrika u zdravoj opštoj populaciji je veoma mala (0- 1 dicentrik na 1000 ćelija)[5]. Nakon obavljenog pregleda kod eksponovanih radnika nisu detektovane nestabilne hromozomske aberacije. Prosečan broj mikronukleusa iznosio je 8,6 (u intervalu 3-24). Kod jednog radnika broj mikronukleusa je bio van referentnog opsega za opštu populaciju (24 mikronukleusa na 1000 binuklearnih limfocita), ali još uvek u granicama referentnih za profesionalno izložena lica, što se objašnjava obavljenim radiodijagnostičkim medicinskim izlaganjem u prethodnom šestomesečnom periodu. Dobijeni rezultati analize mikronukleus testa kod 92% ispitanika nalaze se u referentnom opsegu za opštu populaciju Srbije (u intervalu od 3-13 mikronukleusa na 1000 binuklearnih limfocita). Naime, osnovni preduslov za primenu mikronukleus testa u svrhu nadzora izloženih populacija je poznavanje njegovih vrednosti u opštoj populaciji, utvrđenih na velikom broju ispitanika, koji žive u istom podneblju i dele slične životne navike. U citogenetičkoj laboratoriji Instituta za medicinu rada Srbije sprovedeno je opsežno istraživanje u cilju utvrđivanja normalnih (bazalnih) vrednosti parametara mikronukleus testa u opštoj populaciji Srbije [6,7].

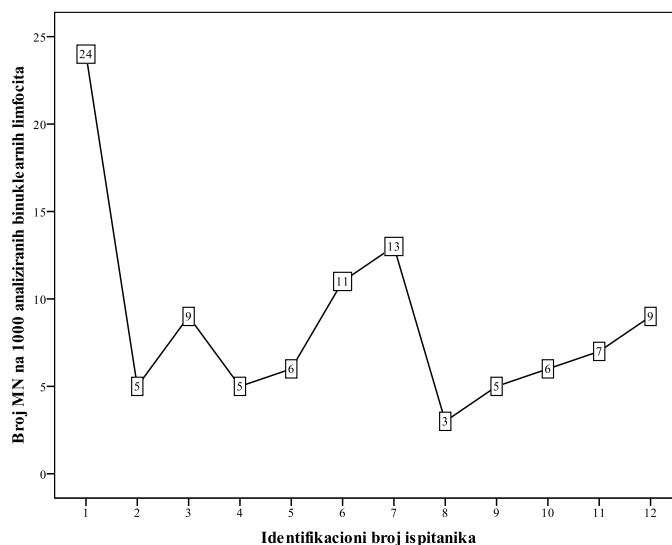
Tabele 3 i 4 i grafikon 1 prikazuju vrednosti mikronukleusa ispitanika.

Табела 3. Вредности микронуклеус теста.

	N	Minimum	Maximum	Prosečna vrednost	SD
Број микронуклеуса на 1000 анализираних бинуклеарних лимфоцита	12	3	24	8,6	5,6

Табела 4. Дистрибуција испитаника у односу на референтне вредности Лабораторије за општу популацију Србије.

Вредности микронуклеуса по групама	N	%
0-15	11	91,6
>15	1	8,4



Графикон 1. Вредност микронуклеуса код испитаника.

Закључак

Биодозиметрија, као метод процене апсорбоване дозе зрачења, посебно је значајна јер, за разлику од физичке дозиметрије, у обзир узима и интерindividualну варијабилност у одговору на зрачење. Цитогенетичким анализирањем узорака периферне крви нису уочени поремећаји генетичког материјала код испитаника ове студије.

Литература

- [1] Hall EJ, Giaccia AJ. Radiobiology for the Radiologist. Lippincot Williams and Wilkins. New York, 2012.
- [2] BEIR VII. Report of the Advisory Committee on the Biological Effects of Ionising Radiations. National Academy of Sciences, National Research Council, Washington DC, USA, 2006.
- [3] Joksić G. Citogenetika. U: Vidaković A, ur. Medicina rada II. Beograd: Udruženje za medicinu rada Jugoslavije, 1997: 563-575.
- [4] United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation. Sources And Effects Of Ionizing Radiation. UNSCAER 2008 Report, United Nations, New York, 2010.

- [5] International Atomic Energy Agency. Cytogenetic Dosimetry: Applications in Preparedness for and Response to Radiation Emergencies. Vienna: IAEA 2011.
- [6] Boban Rakić. Učestalost mikronukleusa u limfocitima periferne krvi opšte i populacije profesionalno izložene jonizujućim zračenjima na teritoriji Srbije. [Specijalistički rad]. Beograd: Univerzitet u Beogradu, 2013.
- [7] Pajić J, Rakić B, Jovičić D. Učestalost mikronukleusa u limfocitima periferne krvi opšte populacije na teritoriji Srbije: rezultati citogenetičke biomonitoring studije. Simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Zbornik, Vršac 2015: 369-376.

CYTOGENETIC CHANGES IN PERIPHERAL BLOOD LYMPHOCYTES OF THE EXPOSED PERSONS IN THE EMERGENCY EVENT AT THE BORDER CROSSING BEZDAN

Jelena PAJIĆ¹, Slađana VUKOVIĆ¹, Milenko ĐUKIĆ¹, Jovica STEPOVIĆ¹, Boban RAKIĆ¹

1) *Serbian Institute of Occupational Health „Dr Dragomira Karajović“, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

The analysis of genetic material in case of emergency has a significant role in the assessment of individual response to accidental exposures to ionizing radiation. After the radiological accident at the Bezdan border crossing, blood was sampled for cytogenetic analyzes from the examined customs and police officers (N=12). The results were statistically processed with SPSS v. 26.

No unstable chromosomal aberrations were detected in the exposed workers. The obtained results of the analysis of the micronucleus test in 92% of the subjects are in the reference range for the general Serbian population (in the interval of 3-13 micronuclei per 1000 binuclear lymphocytes). One employee has elevated micronuclei number (24 micronuclei per 1000 binuclear lymphocytes), but still within the limits for occupationally exposed persons; increase in micronuclei frequency can be explained by radiodiagnostic medical exposure performed in the previous six-month period.

The obtained results are consistent with the cases of accidental exposure of the general population in similar events at the world level, according to UNSCEAR data from 2008.

ANALIZA ZDRAVSTVENOG STANJA RADNIKA NA CARINSKOM PRELAZU AKCIDENTALNO IZLOŽENIH RADIOAKTIVNOM ZRAČENJU

Slađana VUKOVIĆ¹, Milenko ĐUKIĆ¹, Jovica STEPOVIĆ¹, Jelena PAJIĆ¹, Boban RAKIĆ¹

1) *Institut za medicinu rada Srbije „Dr Dragomira Karajović“, Beograd, Srbija,*

Autor za korespondenciju: Slađana VUKOVIĆ, sladjana.vukovic@institutkarajovic.rs

SAŽETAK

“Orphan radioactive source” označava radioaktivne izvore koji su napušteni, izgubljeni, ukradeni ili uklonjeni van regulatorne kontrole. Zatvoreni izvori ili njihovi kontejneri mogu biti privlačni za trgovinu otpadnim metalima, a s obzirom da su neobeleženi mogu dovesti do radijacionog incidenta i vanrednog događaja u opštoj populaciji.

Analizirano je zdravstveno stanje radnika na carinskom prelazu koji su tokom rutinske kontrole detektovali povećanu radioaktivnost od neovlašćeno transportovanog radioaktivnog gromobrana. Rezultati su obrađeni metodama deskriptivne statistike.

Pregledano je 8 carinskih i 4 policijska radnika. Najzastupljenije tegobe bile su glavobolja (42%), napetost i nervoza (8%), dijareja i bol u stomaku (17%). Kod 67% je registrovan povišen arterijski pritisak. Rezultati hematološkog ispitivanja bili su u granicama referentnih vrednosti kod 83% ispitanika. Zabrinutost za sopstveno zdravlje bila je proporcionalna objektivnim okolnostima kod svih ispitanika.

Neposredno nakon vanrednog događaja nisu uočena oštećenja radiosenzitivnih tkiva i organa. Zabeleženi su napetost, nervoza, glavobolja i skok arterijskog pritiska u sklopu akutne reakcije na stres. Navedeni poremećaji zdravlja nisu narušili radnu sposobnost ispitanika.

Uvod

“Orphan radioactive source” označava radioaktivne izvore koji su napušteni, izgubljeni, ukradeni ili uklonjeni van regulatorne kontrole. Uzrok su niza neželjenih posledica koji uključuju uticaje na zdravlje ljudi, socio-psihološke, ekološke, ekonomske i političke uticaje [1, 2, 3]. Zatvoreni izvori ili njihovi kontejneri mogu biti privlačni za trgovinu otpadnim metalima, a s obzirom da su neobeleženi mogu dovesti do radijacionog incidenta i vanrednog događaja u opštoj populaciji. Tačan broj ovih izvora jonizujućih zračenja u svetu nije poznat, ali procenjuje se u hiljadama [1]. Kompanije iz SAD izgubile su trag za 1.500 radioaktivnih izvora u periodu od 1996. godine, dok u Evropi godišnje oko 70 izvora ostaje van regulatorne kontrole [1]. Ovo je posebno veliki problem u zemljama bivšeg SSSR [1, 2], a beležen je i na teritoriji R. Srbije. Na carinskom prelazu Bezdan, tokom rutinske kontrole od strane službenika carine i granične policije, detektovana je 05. marta 2023. godine povišena radioaktivnost u putničkom automobilu zbog neovlašćeno transportovanog radioaktivnog gromobrana. Dodatnim merenjima ustanovljeno je da, nakon uklanjanja radioaktivnog izvora, ne postoji kontaminacija vozila i okoline. Gromobran je u sebi sadržavao europijum-152, izvor koji se u gromobrane ugrađivao tokom sedamdesetih godina prošlog veka. Od 1984. godine zakonom je zabranjena ugradnja radioaktivnih gromobrana, a naloženo je i njihovo uklanjanje [4].

Cilj rada

Cilj rada je analiza zdravstvenog stanja i poremećaja zdravlja uočenih na vanrednom pregledu radnika, a nastalih usled akcidentalnog izlaganja radioaktivnom zračenju na carinskom prelazu.

Materijal i metode

Za studiju preseka analizirani su rezultati dobijeni iz zdravstvenog kartona zaposlenih koji su obavili vanredni pregled u Institutu za medicinu rada Srbije „Dr Dragomir Karajović“ u periodu od 07. do 14. marta 2023. godine, prema etičkim načelima Helsinške deklaracije. Pregledano je ukupno 12 radnika u skladu sa elementima vanrednog pregleda zaposlenih u zoni jonizujućih zračenja. Elementi pregleda definisani su Pravilnikom o prethodnim i periodičnim lekarskim pregledima zaposlenih na radnim mestima sa povećanim rizikom [5] i Pravilnikom o uslovima za dobijanje licence za obavljanje radijacione delatnosti [6]. Analizom su obuhvaćeni svi radnici upućeni na pregled. Za analizu su korišćene metode deskriptivne statistike, a statistička analiza je sprovedena upotrebom softverskog paketa SPSS, verzija 26.

Rezultati i diskusija

Od ukupno 12 pregledanih, 8 ispitanika je bilo muškog i 4 ženskog pola, prosečne starosti 47 godina (30-62 god.). Pregledano je 8 carinskih i 4 policijska radnika. Prosečna dužina radnog staža iznosila je 24 godine (u intervalu 6-38 god.), a na aktuelnom radnom mestu radnici su radili u proseku 21 godinu (u intervalu 6-35 god). Karakteristike ispitanika prikazane su na tabelama 1 i 2.

Tabela 1. Osnovne karakteristike ispitanika.

	N	Minimum	Maximum	Prosečna vrednost	SD
Godine života	12	30	62	46,9	9,1
Ukupni radni staž (godine)	12	6	38	24,1	8,5
Radni staž na aktuelnom radnom mestu (godine)	12	6	35	21,5	2,3

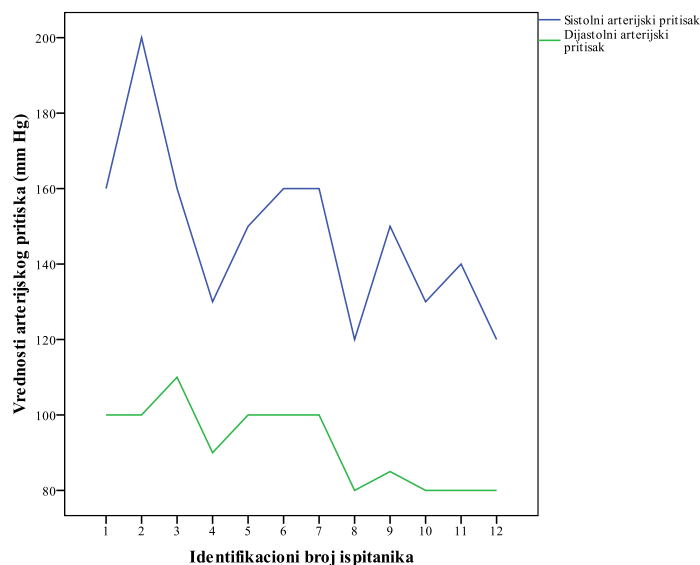
Tabela 2. Distribucija ispitanika u odnosu na pol.

Pol ispitanika	N	%
Muški	8	66,7
Ženski	4	33,3
Ukupno	12	100

Neposredno nakon incidenta četiri ispitanika je bilo bez tegoba (33,3%), pet se žalilo na difuznu glavobolju (41,7%), dva na dijareju i bol u stomaku (16,7%), jedan na napetost i nervozu (8,3%). Dva dana od incidenta bez tegoba je bilo osam ispitanika (66,7%), glavobolju referišu dva ispitanika (16,7%), a isti broj referiše napetost i nervozu (16,7%).

U toku fizikalnog pregleda kod većine, tj osam ispitanika, izmerene su povišene vrednosti arterijskog pritiska (više od 130/85 mm Hg), sa napomenom da je samo jedan ispitanik hipertoničar pod terapijom. Prosečna vrednost sistolnog arterijskog pritiska iznosila je 148,3±22,5 mm Hg (u intervalu 120-200 mm Hg), a dijastolnog arterijskog pritiska 92,1±10,8 mm Hg (u intervalu 80-110 mm Hg). Kod tri ispitanika registrovane su vrednosti glikemije više od 6,1 mmol/l, pri čemu je samo jedan ispitanik dijabetičar na terapiji oralnim hipoglikemicima. Prosečne vrednosti glikemije iznosile su 5,9±1,0 mmol/l (u intervalu

4,9-8,4 mmol/l). Distribucija izmerenih vrednosti sistolnog i dijastolnog pritiska prikazana je na grafikonu 1.



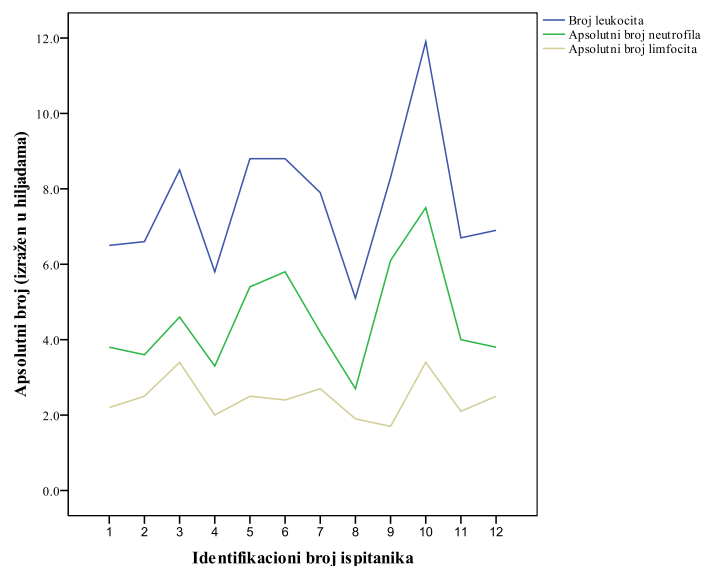
Grafikon 1. Distribucija izmerenih vrednosti sistolnog i dijastolnog arterijskog pritiska.

Ovi rezultati mogu se objasniti akutnom reakcijom na stres usled navedenog incidenta. Anksioznost, napetost i nervoza su prirodne reakcije tela na stres kada se pojačano luči hormon stresa (kortizol) i oslobađa u krvotok. Krvni sudovi se skupljaju i krvni pritisak raste. Dolazi do porasta šećera u krvi. U stresnim situacijama telo aktivira i simpatički nervni sistem koji nam pomaže da se izborimo u datoj situaciji [7,8]. Svi naši ispitanici su obavili pregled kod psihologa i psihijatra, sa zaključkom da je registrovana zabrinutost za sopstveno zdravlje bila proporcionalna objektivnim okolnostima. Naši ispitanici prosečno duže od 20 godina obavljaju poslove carinskog ili policijskog radnika i obučeni su za delovanje u vanrednim događajima.

U toku ispitivanja radiosenzitivnih tkiva i organa, nisu uočene promene koje se mogu dovesti u vezu sa akutnom izloženošću jonizujućim zračenjima. Rezultati hematološkog ispitivanja bili su u granicama referentnih vrednosti kod 83% ispitanika. Kod jednog ispitanika uočena je blaga leukocitoza i neutrofilija u leukocitarnoj formuli (u sklopu pozitivnog zapaljenskog sindroma). Kod dva ispitanika uočeno je blago odstupanje u broju trombocita. Tabela 5 prikazuje karakteristike ispitivanih hematoloških i biohemijskih parametara, dok su na grafikonu 2 prikazane apsolutne vrednosti elemenata bele krvne loze kod ispitanika.

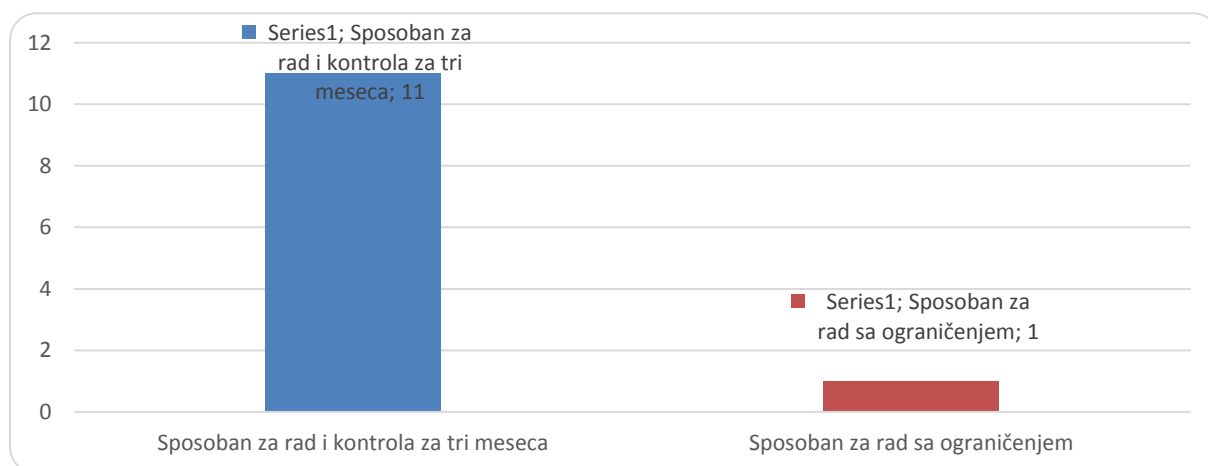
Tabela 5. Karakteristike ispitivanih hematoloških i biohemijskih parametara.

	N	Minimum	Maximum	Prosečna vrednost	SD
Glikemija (mmol/l)	12	4,9	8,4	5,9	1,0
Broj leukocita	12	5,1	11,9	7,6	1,8
Apsolutni broj neutrofila	12	2,7	7,5	4,6	1,4
Relativni broj neutrofila	12	53,4	72,0	59,2	5,7
Apsolutni broj limfocita	12	1,7	3,4	2,4	0,5
Relativni broj limfocita	12	20,7	40,7	32,8	5,4
Broj eritrocita	12	4,0	5,6	4,7	0,5
Hemoglobin u krvi	12	117	160	139,8	13,9
Hematokrit	12	0,362	0,500	0,435	0,04
Broj trombocita	12	138	477	272,9	87,5



Grafikon 2. Apsolutne vrednosti elemenata bele krvne loze kod ispitanika.

Nakon pregleda data je ocena radne sposobnosti, a rezultati su prikazani na grafikonu 3.



Grafikon 3. Ocena radne sposobnosti

Navedeni poremećaji zdravlja nisu narušili radnu sposobnost ispitanika. Kod jednog ispitanika data su ograničenja za teško fizičko opterećenje i zahtevano dalje internističko ispitivanje/lečenje zbog neregulisanog arterijskog pritiska. Svim ispitanicima zakazana je kontrola za tri meseca radi daljeg praćenja zdravstvenog stanja.

Zaključak

Kod naših ispitanika, neposredno nakon vanrednog događaja i incidentalnog izlaganja radioaktivnom zračenju, nisu uočena oštećenja radiosenzitivnih tkiva i organa. Zabeleženi su napetost, nervoza, glavobolja, skok glikemije i arterijskog pritiska u sklopu akutne reakcije na stres. Zabrinutost za sopstveno zdravlje bila je proporcionalna objektivnim okolnostima kod svih ispitanika. Navedeni poremećaji zdravstvenog stanja nisu narušili njihovu radnu sposobnost.

Literatura

- [1] United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation. Sources And Effects Of Ionizing Radiation. UNSCAER 2008 Report, United Nations, New York, 2010. Vol. I
- [2] United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation. Sources And Effects Of Ionizing Radiation. UNSCAER 2008 Report, United Nations, New York, 2010. Vol. II
- [3] Eugenio GIL. Orphan Sources. Extending Radiological Protection outside the Regulatory Framework. Second European IRPA Congress on Radiation Protection Paris, May 15 -19, 2006.
- [4] Preuzeto sa <https://www.srbatom.gov.rs/srbatommm/saopstenje-za-javnost/>
- [5] Pravilnik o prethodnim i periodičnim lekarskim pregledima zaposlenih na radnim mestima sa povećanim rizikom, Beograd: Službeni glasnik Republike Srbije br. 53, 2017.
- [6] Pravilnik o uslovima za dobijanje licence za obavljanje radijacione delatnosti Sl. Gl. RS (61/2011-67, 101/2016-107, 44/2018-27 (dr zakon), 50/2018-123, 30/2022-64 (dr. pravilnik))
- [7] Peruničić B. Fiziologija stresa. U: Vidaković A, ur. Medicina rada I. Beograd: Udruženje za medicinu rada Jugoslavije, 1996: 47-51.
- [8] Čabarkapa M. Psihološki aspekti stresa. U: Vidaković A, ur. Medicina rada I. Beograd: Udruženje za medicinu rada Jugoslavije, 1996: 38-47.

**ANALYSIS OF THE HEALTH CONDITION AFTER THE EMERGENCY EVENT
AT BEZDAN BORDER CROSSING**

Sladana VUKOVIĆ¹, Milenko ĐUKIĆ¹, Jovica STEPOVIĆ¹, Jelena PAJIĆ¹, Boban RAKIĆ¹

1) *Serbian Institute of Occupational Health „Dr Dragomira Karajović“, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

"Orphan radioactive source" are by definition radioactive sources that have been abandoned, lost, stolen or removed outside of regulatory control. Closed sources or their containers can be attractive for the scrap metal trade, and since they are unmarked they can lead to a radiation incident and an emergency event in the general population.

The health condition of workers at the customs crossing was analyzed, who during routine control detected increased radioactivity from an unauthorized transported radioactive lightning rod. Descriptive statistics methods were used for the analysis.

Eight customs and 4 police officers were inspected. The most common complaints were headache (42%), tension and nervousness (8%), loose stools and stomach pain (17%). In 67%, elevated arterial pressure was registered. The results of the hematological examination were within the reference values in 83% of the subjects. The degree of health concern was proportional to the objective circumstances.

Immediately after the extraordinary event, tension, nervousness, headache and a jump in arterial pressure were recorded, without damage to radiosensitive tissues and organs.

THE EFFECT OF HONEY ON MALONDIALDEHYDE LEVEL IN PLASMA EXPOSED TO A THERAPEUTIC DOSE OF RADIATION

Vojislav STANIĆ¹, Ljubica GAVRILOVIĆ², Vesna STOJILJKOVIĆ², Aleksandar Karakašević², Marija PANTELIĆ², Tamara GERIĆ³, Srboљub STANKOVIĆ¹

- 1) *Institute of Nuclear Sciences "Vinča", National Institute of the Republic of Serbia, Department of Radiation and Environmental Protection, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*
- 2) *Institute of Nuclear Sciences "Vinča", National Institute of the Republic of Serbia, Department of Molecular Biology and Endocrinology, University of Belgrade, Belgrade, Serbia*
- 3) *Institute of Meat Hygiene and Technology, Kaćanskog 13, 11000 Belgrade, Serbia*

Autor za korespondenciju: Vojislav STANIĆ, voyo@vinca.rs

ABSTRACT

Malondialdehyde (MDA) is the end product of lipid peroxidation and biomarker of free radicals. The aim of this study is to investigate the effect of honey on concentrations of MDA in plasma exposed to a therapeutic dose of radiation. In this experiment animals were divided into two groups: in CONTROL group the animals were given distilled water orally for 28 days, and HONEY group consisted of animals given 1,5 ml/kg honey orally for 28 days. Blood samples of both groups were collected from a rat's tail. All blood samples were exposed to radiation of 2 Gy. Malondialdehyde concentration in plasma was determined using *spectrophotometric method*. Honey treatment in the blood plasma exposed to a therapeutic dose of 2 Gy significantly decreased MDA level *by 30 %* compared with control group. The present results indicated that honey had an effect on the levels of MDA in plasma exposed to radiation.

Introduction

Radiotherapy is one of the main therapies in the treatment of cancer. During radiotherapy, ionizing radiations generate reactive oxygen species (ROS) in the irradiated tissue. Literature data have confirmed that ROS are responsible for structural and functional damage to membrane lipids [1]. Namely, Tabarraei and colleges [2] have confirmed that cell membrane permeability in the irradiated tissue is hampered. Free radical metabolites play an important role in the pathogenesis of radiation induced tissue injury [3,4]. Malondialdehyde (MDA) is the end product of lipid peroxidation and biomarker of free radicals. Numerous animal studies have shown that endogenous antioxidants reduce the cellular damage induced by ionizing radiation, and provide some degree of protection [5]. In addition, literature data imply that natural radioprotectors such as melatonin, curcumin, sheng-mai-san, dan-hong and metformin protect against ionizing-radiation toxicities to several organs [5]. Many studies have shown that honey plays a role in reducing cell death resulting from oxidative stress. For example, Gharzouli and coworkers [6] have confirmed that honey is considered good natural dietary source of antioxidants. Additionally, earlier studies showed that honey significantly increased total antioxidant status [7,8]. However, very little is known about the ability of honey to inhibit the development of lipid peroxidation and neutralize ROS during radiotherapy. Because radiation induces oxidative damage, detecting the changes of lipid peroxidation level in irradiated plasma of rats treated with honey may be very important in the research of the antioxidant capacity of honey.

Determination of MDA levels is the usually applied assay for lipid peroxidation in biomedical sciences [9]. For this reason, in this study we examined the effect of linden honey on malondialdehyde (MDA) level in rat plasma exposed to a therapeutic dose of radiation of 2 Gy. It is a dose that can be given in one session, without damaging the healthy tissues beyond repair [10].

Materials and methods

Experiments were performed on 11-week-old Wistar male rats weighing (300-350) g. The animals were maintained under standard vivarium conditions in a temperature-controlled room (22 ± 1.0) °C and 12 h/12 h light/dark cycle, with water and food *ad libitum* and kept three to four per cage. The care was taken to minimize the pain and discomfort of the animals according to the recommendations of the Ethical Committee of the Vinča Institute of Nuclear Sciences (03/2023).

In this experiment linden honey was used, collected in 2022, in the farm by dr Vojislav Stanić (region Vojvodina-Fruška Gora) and stored at room temperature in the dark until the experiment.

The honey was mixed with distilled water in a ratio of 1:1. The doses of honey used in this study have been reported by Abdulmajeed and colleges [7] and Halawa and coworkers (1.5 ml/kg honey orally for 28 days) [8]. Ten animals were randomly divided into two groups: CONTROL group (n=5) and HONEY group (n=5). Due to the administration of honey, the rats were housed individually (one rat per cage) (Photo 1). While the HONEY group animals were given the solution of honey in distilled water (1.5 ml/kg), the CONTROL group animals were given distilled water in the same period (1 hour a day, 5 days a week). The experiment lasted 28 days [7, 8].



Photo 1. Animals take honey orally



Photo 2. Blood samples collection.

After the described treatment, blood samples were collected from both groups. Blood was sampled from a rat's tail (Photo 2). After blood collection, the animals remained alive.

All blood samples (about 1 ml blood in a test tube) placed on the radiation bench at a position where the absorbed dose was 6 Gy/h, in Department of Radiation and Environmental Protection, Institute of Nuclear Sciences “Vinča” (Photo 3). The exposure to gamma radiation lasted for 20 minutes, so the samples received an absorbed dose of 2 Gy. It is a dose that can be given in one session, without damaging the healthy tissues beyond repair [10].



Photo 3. Blood irradiation.

The blood samples were centrifuged at 2400g for 10 minutes to obtain plasma. Aliquots were then prepared and stored at -70°C until the time of biochemical analysis.

Determination of MDA level was performed using spectrophotometric method previously described by Siddique and coworkers [11]. All samples were read on spectrophotometer at 586 nm. Malondialdehyde concentration was expressed as μM of plasma.

The data are presented as means \pm S.E.M. The differences of plasma concentration of MDA between CONTROL group and HONEY group were analyzed by t-test. Statistical analysis was carried out using the SigmaPlot 10.0 with SigmaStat integration. The statistical significance was accepted at $p < 0.05$.

Results

Honey treatment in the blood plasma exposed to a therapeutic dose of 2 Gy significantly decreased MDA level by 30 % ($p < 0.05$, t-test) compared with control group.

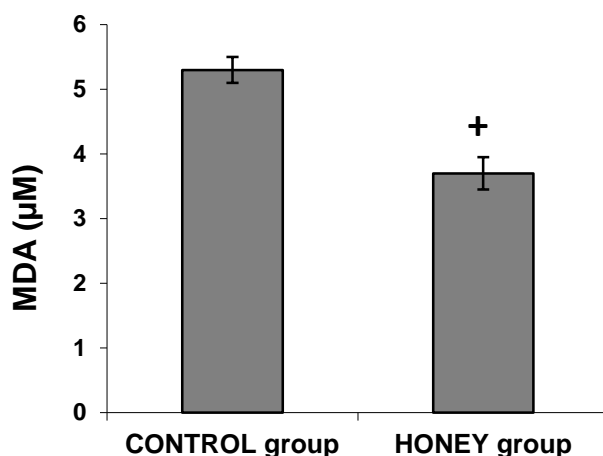


Figure 1. Effects of honey on malondialdehyde (MDA) level in plasma. The values are means \pm S.E.M. of 10 rats. Statistical significance: +p < 0.05 HONEY group vs. CONTROL group (t-test). Concentration of MDA was expressed as μM of plasma.

Discussion

The results in this study suggest a lower level of lipid peroxidation and free radical generation after the ingestion of honey, which points out the beneficial effects of honey in preventing oxidative damage. We assume that honey increases antioxidant activity and in that way can protect tissue against oxidative stress. Our result is in accordance with the reports of Steinberg and Witztum [12] who found that antioxidant supplementation gave therapeutic effects in subjects with high oxidative stress. Oxidative stress is the condition in which the cellular antioxidant defence system is insufficient to keep the levels of ROS low in the body. It is known that antioxidants are molecules that can safely interact with ROS and terminate the chain reaction before vital molecules are damaged. The first line of defense includes antioxidant enzymes such as copper, zinc superoxide dismutase, manganese superoxide dismutase and catalase which directly remove ROS. In addition, glutathione peroxidase is one of the most important enzymes for removing peroxides from cells. Shabeeb and coworkers [1] have showed that irradiation of the skin tissues led to a significant reduction in superoxide dismutase and catalase activities as well as increased MDA levels. The ability of honey to prevent oxidative damage might be due to its phenolic and non phenolic antioxidant content or indirectly through the action of antioxidant enzymes activity in reducing hydrogen peroxide [13]. Lodovici and colleges [14] have confirmed that polyphenols have the capacity to decrease lipid peroxidation, and prevent DNA oxidative damage. Also, protective effect of honey may be attributed to the biologically active compounds flavonoids that work to scavenge ROS [15]. Kečkeš et al. [16] identified a total of 43 polyphenols in Serbian unifloral honey. Numerous flavonoids (such as apigenin, pinocembrin, pinobanksin, kaempferol, quercetin, galangin, chrysin, and luteolin) and phenolic acids (caffeic, gallic, cinnamic, protocatechuic, p-coumaric, and chlorogenic acids) were identified in samples of Serbian unifloral honey [17]. Literature data imply that honey also can contain vitamins A, C, E as antioxidants that can capture ROS [18]. Additionally, the antioxidant trace elements iron, zinc and selenium which are essential cofactors for the enzymatic antioxidant defense system represented by catalase, superoxide dismutase and glutathione peroxidase [19]. Costa-Silva and coworkers [20] explained that honey induced increase in glutathione peroxidase activity might be due to the presence of selenium in honey. In this experiment we used linden honey because it is a source of more vitamins and minerals than other honey varieties, including more than 400 substances and compounds. These include calcium, magnesium, sulfur, copper, potassium,

zinc, iodine, aluminum, nickel, phosphorus, manganese and cobalt, vitamins (B1, B2, B5, B6, C, biotin, tocopherol and niacin) and organic and inorganic acids (gluconic, citric, lactic malic, tartaric, linolenic, oxalic, succinic, hydrochloric and phosphoric). In addition, the results of Gašić and coworkers [17] have showed that samples of honey from Vojvodina and Zlatibor region were distinguished from the honey varieties from the rest of Serbia due to the presence of dicaffeoylquinic acid, ellagic acid, caffeic acid phenethyl ester, and chlorogenic acid. Halawa and colleges [8] have suggested that honey exert its protective role through its antioxidant mechanism and through restoring glutathione activity. Namely, honey is a good natural source of sulfhydryl (SH) group. Also, it is known that the most important endogenous antioxidant is glutathione, as well as that SH group of glutathione is important as a direct scavenger of ROS [21].

It can be concluded that honey had an effect on the levels of MDA in the blood plasma exposed to a therapeutic dose of radiation. Findings from the present study have shown that linden honey has the potential to protect against radiotherapy-induced oxidative stress. However, in order to better understand this mechanism, future studies should investigate the activity of antioxidant enzymes, as well as the content of phenolic and non phenolic antioxidants in linden honey.

Acknowledgments

This work was supported by the Ministry of Science, Technological Development and Innovation of the Republic of Serbia (Research Grant No.451-03-47/2023-01/200017).

References

- [1] Shabeeb, D., Musa, A.E., Abd Ali, H.S., Najaf, M. Curcumin Protects Against Radiotherapy-Induced Oxidative Injury to the Skin. *Drug. Des. Dev. Ther.* 14, 2020, 3159–3163.
- [2] Tabarraei, Y., Bakhshandeh, Z., Behrouzki, Z., Peirouvi, T., Pourissa, M., Asghari, M., Dehghan, M.H., Refahi, S., Ghamami, G. Short-term changes in histopathological markers of irradiated rat's lung: preliminary study. *Res. J. Pharm. Biol. Chem. Sci.* 5(3), 2014, 307–315.
- [3] Hall, E.J. and Giaccia, A.J. Radiobiology for the Radiologist. *Lippincott Williams & Wilkins, Philadelphia.* 2005, 215-218.
- [4] Şener, G., Kabasakal, L., Atasoy, B.M., Erzik, C., Ogunc, A.V., Cetinel, S., Gedik, N., Yegen, B.C. Ginkgo biloba extract protects against ionizing radiation-induced oxidative organ damage in rats. *Pharmacol. Research.* 53, 2006, 241-252.
- [5] Cihan, Y.B., Ozturk, A., Gokalp, S.S. Protective Role of Royal Jelly Against Radiation-Induced Oxidative Stress in Rats. *International Journal of Hematology and Oncology.* 2(23), 2013, 79-87.
- [6] Gharzouli, K., Gharzouli, A., Amira, S., Khennouf, S. Protective effect of mannitol, glucose-fructose– maltose mixture, and natural honey hyperosmolar solutions against ethanol –induced gastric mucosal damage in rats. *Exp. Toxic. Pathol.* 53, 2001, 175-180.
- [7] Abdulmajeed, W.I., Sulieman, H.B., Zubayr, M.O., Imam, A., Amin, A., Biliaminu, S.A., Oyewole, L.A., Owoyele, B.V. Honey prevents neurobehavioural deficit and oxidative stress induced by lead acetate exposure in male wistar rats- a preliminary study. *Metab. Brain. Dis.* 31, 2016, 37–44.

- [8] Halawa, H.M., El-Nefiawy, N.E., Makhlof, N.A., Mady, A.A. Evaluation of honey protective effect on lead induced oxidative stress in rats. *JASMR*. 4(2), 2009, 197-208.
- [9] Seljeskos, E., Hervig, T., Mansoor, M.A. A novel HPLC method for the measurement of thiobarbituric acid reactive substances (TBARS). A comparison with a commercially available kit. *Clin. Biochem.* 39, 2006, 947-954.
- [10] Petković, M. Radioterapija – primena i mere zaštite. *SvetMedicine*
- [11] Siddique, Y.H., Ara, G., Afzal, M. Estimation of lipid peroxidation induced by hydrogen peroxide in cultured human lymphocytes. *Dose-Response*. 10(1), 2012, 1-10.
- [12] Steinberg, D. and Witztum, J.L. Is the oxidative modification hypothesis relevant to human atherosclerosis? *Circulation*. 105, 2000, 2107-2111.
- [13] El-Shafey, A.A.M., Seliem, M.M.E., El-Zawahry, S.A.M., Shahen, E.M.S., Mahmoud D.E.M. Effect of honey bee on some antioxidant enzymes and lipid profile in hypercholesterolemic male albino rats. *Z.U.M.J.* 21(1), 2015, 68-78.
- [14] Lovrić, J., Mesić, M., Macan, M., Koprivanac, M., Kelava, M., Bradamante, V. Measurement of malondialdehyde (MDA) level in rat plasma after simvastatin treatment using two different analytical methods. *Period. biol.* 110(1), 2008, 63-67.
- [15] El Rabey, H.A., Al Seeni, M.N., AlSolamy, S.M. Bees' honey protects the liver of male rats against melamine toxicity. *BioMed. Res. Intern.* 2013, ID 786051: 8.
- [16] Kečkeš, S., Gašić, U., Ćirković Veličković, T., Milojković-Opsenica, D., Natić, M., Tešić, Ž. The determination of phenolic profiles of Serbian unifloral honeys using ultra-high performance liquid chromatography/high resolution accurate mass spectrometry. *Food Chem.* 138(1), 2013, 32-40.
- [17] Gašić, U., Kečkeš, S., Dabić, D., Trifković, J., Milojković-Opsenica, D., Natić, M., Tešić, Ž. Phenolic profile and antioxidant activity of Serbian polyfloral honeys. *Food Chem.* 145, 2014, 599-607.
- [18] Al-Waili, N.S. Effects of daily consumption of honey solution on hematological indices and blood levels of minerals and enzymes in normal individuals. *J. Med. Food.* 6, 2003, 135-140.
- [19] Machlin, I.K., and Bendich, A. Free radical tissue damage: protective role of antioxidant nutrients. *Free Radic Biol. Med.* 6, 1987, 441-445.
- [20] Costa-Silva, F., Maia, M., Matos, C.C., Calçada, E., Barros, A.I.R.N.A., Nunes, F.M. Selenium content of Portuguese unifloral honeys. *J. Food Comp. Anal.* 24, 2011, 351-355.
- [21] Schulz, J.B., Lindenau, J., Seyfried, J. Glutathione oxidative stress and neurodegeneration. *Eur. J. Biochem.* 267, 2000, 4904-4911.

DELOVANJE MEDA NA NIVO MALONDIALDEHIDA U PLAZMI IZLOŽENOJ TERAPIJSKOJ DOZI ZRAČENJA

Vojslav STANIĆ¹, Ljubica GAVRILOVIĆ², Vesna STOJILJKOVIĆ², Aleksandar Karakašević², Marija PANTELIĆ², Tamara GERIĆ³, Srboљub STANKOVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke „Vinča”, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Univerziteta u Beogradu, Beograd, R Srbija*
- 2) *Institut za nuklearne nauke „Vinča”, Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Laboratorija za molekularnu biologiju i endokrinologiju, Univerziteta u Beogradu, Beograd, R Srbija*
- 3) *Institut za higijenu i tehnologiju mesa, Kačanskog br. 13, 11040 Beograd, R Srbija*

SAŽETAK

Malondialdehid (MDA) je krajnji proizvod peroksidacije lipida i biomarker slobodnih radikala. Cilj ovog istraživanja je bio da se ispita uticaj meda na koncentraciju MDA u krvnoj plazmi izloženoj terapijskoj dozi zračenja. U ovom eksperimentu životinje su podeljene u dve grupe: u kontrolnoj grupi životinje su dobijale destilovanu vodu oralno tokom 28 dana, a drugu grupu činile su životinje koje su tokom 28 dana dobijale oralno 1.5 ml/kg meda. Uzorci krvi obe grupe su sakupljeni iz repa pacova. Svi uzorci krvi bili su izloženi zračenju od 2 Gy. Koncentracija MDA u plazmi određena je spektrofotometrijskom metodom. Tretman medom u krvnoj plazmi izložen terapijskoj dozi od 2 Gy značajno je smanjio nivo MDA (30 %) u poređenju sa kontrolnom grupom.

**OKSIDATIVNI STATUS KOD PACIJENATA OBOLELIH OD DOBRO
DIFERENTOVANIH KARCINOMA ŠTITASTE ŽLEZDE NAKON TERAPIJE ¹³¹I**Vera D. SPASOJEVIĆ-TIŠMA¹, Marija Ž. JEREMIĆ²

- 1) *Javno preduzeće „Nuklearni objekti Srbije“, Mike Petrovića Alasa 12-14, 11351 Vinča*
- 2) *Univerzitetski klinički centar Kragujevac, Centar za nuklearnu medicinu, Zmaj Jovina 30, 34000 Kragujevac*

*Autor za korespondenciju: Marija JEREMIĆ, marijafiz@yahoo.com***SAŽETAK**

Ablacija radioaktivnim jodom (¹³¹I) se primenjuje u lečenju pacijenata sa dobro diferentovanim karcinomom štitaste žlezde (DTC). Zračenje koje se ovom prilikom primenjuje, izaziva oksidativni stres, oštećuje ćelije i tkiva, pri tome aktivirajući mehanizme antioksidativne odbrane. U ovom radu su ispitane promene reaktivnih vrsta kiseonika i antioksidativnih komponenti (AO), kao i njihov značaj za peroksidaciju lipida. Rezultati su pokazali da je nivo reaktivnih supstanci tiobarbiturne kiseline bio povećan tokom prvih 30 dana nakon terapije ¹³¹I. Među antioksidativnim komponentama, superoksid dismutaza (SOD) je povećana 3. i 30. dana, a redukovani glutation (GSH) 3. i 7. dana nakon terapije ¹³¹I. Što se tiče prooksidanata, redukcija vodonik peroksida (H₂O₂) zabeležena je 7. i 30. dana, a superoksid anjonski radikal (O₂⁻) je ostao nepromenjen nakon izlaganja ¹³¹I. Ovi rezultati ukazuju na to da su pacijenti sa diferenciranim karcinomom štitaste žlezde pod stalnim oksidativnim stresom.

Uvod

Rak štitaste žlezde je najčešći maligni tumor endokrinog sistema i čini 1-2% svih malignih bolesti u svetu [1]. Pošto tačni mehanizmi redoks procesa izazvanih izlaganjem ¹³¹I nisu u potpunosti poznati, želeli smo da ispitamo promene najvažnijih faktora (ROS, enzimske i neenzimske antioksidativne komponente), njihov značaj za nastanak reaktivnih supstanci sa tiobarbiturnom kiselinom (TBA), kao i mere hidroperoksidacije lipida (LPO).

Materijal i metode*Subjekti*

Ispitivana populacija je obuhvatila 45 pacijenata sa dobro diferentovanim karcinomom štitaste žlezde oba pola (33 žene i 12 muškaraca, prosečne starosti 42,5 ± 14,3 godine) nakon totalne tiroidektomije. Među njima, 39 pacijenata je imalo papilarni karcinom, a 6 pacijenata je imalo folikularni karcinom. Nakon 10 dana dijete sa niskim sadržajem joda, svi pacijenti su lečeni fiksnom dozom od 3,7 GBq (100 mCi) ili 5,55 GBq (150 mCi) natrijum-jodida primenjenim oralno, u vidu jedne ili više kapsula, u skladu sa smernicama EANM [2]. U vreme primene ¹³¹I, svi pacijenti su bili hipotiroidni (koncentracija tireostimulirajućeg hormona u krvi bila je TSH > 30 mIU L⁻¹). To je postignuto obustavljanjem hormonske terapije na najmanje četiri nedelje. Pacijenti su otpušteni iz posebnih prostorija namenjenih radionuklidnoj terapiji na kućno lečenje kada je izmerena aktivnost ¹³¹I u telu bila ispod 400 MBq (obično posle 3-4 dana). Uzorci krvi pacijenata sa DTC uzimani su 4 puta: pre i 3, 7. i 30. dana nakon tretmana sa ¹³¹I. Određeni su sledeći antioksidativni parametri i parametri oksidativnog stresa: superoksid dismutaza (SOD), redukovani glutation (GSH), indeks peroksidacije lipida (TBARS), koncentracija superoksidnog anjonskog radikala (O₂⁻) i

vodonik peroksid (H_2O_2) Studiju je odobrila Etička komisija Kliničkog centra Kragujevac broj 02-3034. Takođe, svi pacijenti su dali pismeni informisani pristanak za učešće u studiji u skladu sa Helsinškom deklaracijom.

Priprema uzorka

Određivanje parametara oksidativnog stresa

Koncentracija superoksidnih anjonskih radikala

Koncentracija O_2^- je procenjivana metodom Auclair i Voisin [3]. Metoda se zasniva na redukciji nitroplavo-tetrazolijuma (NBT) u monoformazan pomoću O_2 u medijumu zasićenom alkalnim azotom. Žuti proizvod ove reakcije je meren spektrofotometrijski na 550 nm. Koncentracija O_2^- je izražena u nmolml^{-1} u plazmi.

Koncentracija vodonik peroksida

Određivanje koncentracije H_2O_2 u krvnoj plazmi vršeno je metodom Pick-a i Keisarija [4]. Zasniva se na oksidaciji fenol crvenog pomoću H_2O_2 uz pomoć enzima peroksidaze iz konjske rotkvice. Ovom reakcijom se stvara jedinjenje čiji je maksimum apsorpcije 610 nm. Koncentracija i količina oslobođenog H_2O_2 izračunava se na osnovu faktora apsorbanace po jednom $\text{nmol H}_2\text{O}_2$.

Koncentracija peroksidacije lipida

TBARS je određen prema Ohkava et al. [5]. TBARS meri malondialdehid, proizvod lipoperoksidacije uzrokovane uglavnom slobodnim hidroksilnim radikalima. Prvo, plazma je deproteinizovana trihlorosirćetnom kiselinom (TCA), a zatim je precipitat tretiran tiobarbiturnom kiselinom na 100°C tokom 15 min. TBARS je određen apsorbanacijom na 535 nm i izračunat kao nmolml^{-1} u plazmi.

Određivanje parametara antioksidansa

SOD aktivnost

Aktivnost SOD je merena epinefrinskom metodom Misra & Fridovich [6]. Ova metoda spada u grupu metoda „negativnog” tipa, jer prati smanjenje brzine autooksidacije u alkalnoj sredini koja zavisi od O_2^- . Brzina autooksidacije epinefrina do adrenohroma je detektovana spektrofotometrijski kao promena apsorbanacije na 480 nm. Jedna jedinica aktivnosti SOD je bila definisana kao količina ekstrakta koja inhibira brzinu formiranja adrenohroma za 50%. Koncentracija SOD je izražena u jedinicama aktivnosti SOD po gramu hemoglobina (jedinica po gramu Hb).

GSH

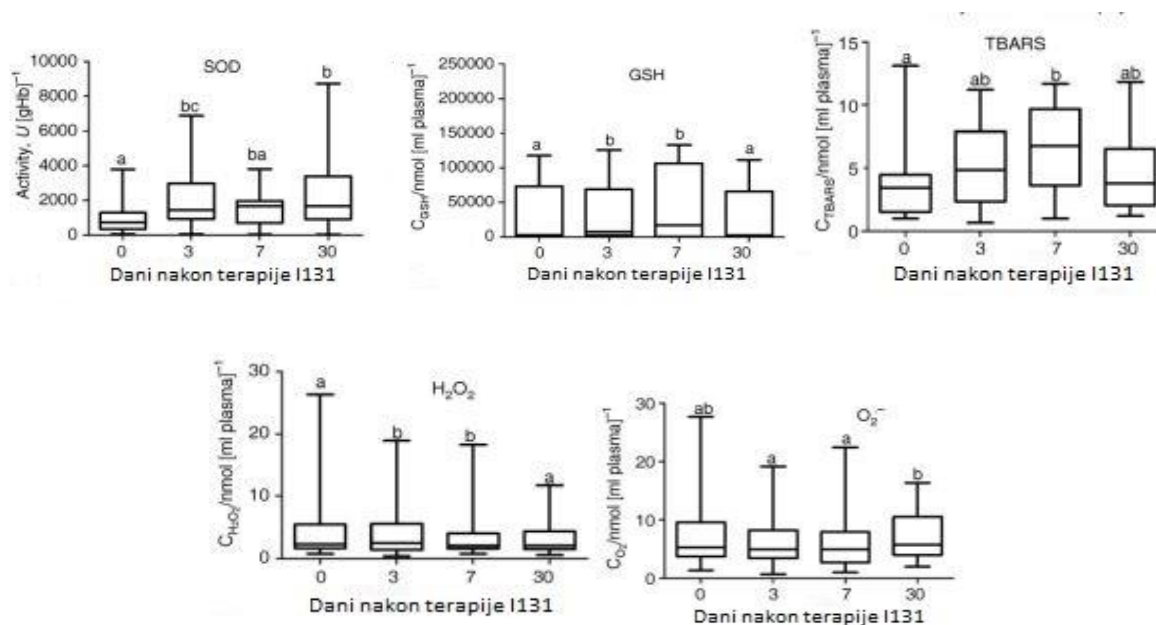
Redukovani glutation je meren pri apsorbanaci od 412 nm prema Beutlerovoj metodi [7]. U ovoj metodi, redukovani GSH prisutan u uzorku reaguje sa ditionitrobenzoevom kiselinom (DTNB) i intenzitet boje je meren na 412 nm i izračunat kao nmolml^{-1} plazme.

Statistička analiza

Zbog ne-Gausove distribucije vrednosti, za upoređivanje nivoa parametara pre i posle terapije ^{131}I , korišćen je Fridmanov test (t), praćen Nemenjijevim višestrukim poređenjem u paru sa Bonferonijevom korekcijom (p). Automatsko linearno modeliranje (ALM) je korišćeno za procenu parametarskih vrednosti svih ispitivanih redoks parametara na nivou LPO. Dvostrani $p < 0,05$ smatran je statistički značajnim. Svi podaci su analizirani korišćenjem IBM SPSS Statistics verzije 23 i softvera Graph Pad Prism 4.

Rezultati

U poređenju sa vrednošću pre terapije ^{131}I , aktivnost SOD posle terapije je povećana u sve tri ispitivane vremenske tačke, ali je samo povećanje u danima 3 ($p = 0,000$) i 30 ($p = 0,000$) utvrđeno kao statistički značajno. Utvrđeno je da je nivo GSH značajno povećan u 3. ($p = 0,000$) i 7. ($p = 0,003$) danu, nakon čega se vratio na bazni nivo 30. dana. Nivo H_2O_2 je značajno smanjen 3. ($p = 0,000$) i 7. ($p = 0,003$) dan nakon terapije ^{131}I . Nivo O_2^- nakon terapije dostigao je maksimum 30. dana, ali je ovo povećanje bilo značajno samo u poređenju sa nivoima O_2^- 3. ($p = 0,009$) i 7. ($p = 0,007$) dana nakon terapije ^{131}I . Nakon terapije ^{131}I koncentracija TBARS je povećana u sve tri ispitivane vremenske tačke, ali značajno tek 7. dana ($p = 0,001$), (sl. 1).



Slika 1. Aktivnost SOD i koncentracije GSH, H_2O_2 , O_2^- i TBARS – 0. dan (dan kada je aplikovana terapija), 3. dana, 7. dana i 30. dana nakon terapije ^{131}I .

Rezultati višestruke linearne regresione analize su pokazali da od svih testiranih parametara, samo aktivnost SOD, nivoi H_2O_2 i O_2^- imaju statističku značajnost na nivo TBARS (Tab. 1).

Tabela 1. Analiza višestruke linearne regresije korišćenjem automatskog linearnog modeliranja sa TBARS kao zavisnom promenljivom i aktivnostima SOD; nivoi GSH, O_2^- i H_2O_2 kao nezavisnih varijabli; prikazane su samo varijable sa značajnim parametarskim vrednostima.

Parametri	Koeficijent	Standardna devijacija	<i>t</i>	<i>p</i>
SOD	0,000	0,000	3,134	0,002
H_2O_2	-1,148	-2,715	-2,715	0,007
O_2^-	0,107	2,057	2,057	0,041

Diskusija

Rani efekti zračenja nastaju tokom nekoliko sati do nekoliko nedelja nakon izlaganja i obično uključuju manifestacije kao što su ćelijska smrt, zapaljenje i oksidativni stres [8]. Rezultati našeg istraživanja su potvrdili postojanje ranog redoks disbalansa 3. dana nakon tretmana sa ^{131}I . U ovom trenutku smo primetili povećanje TBARS-a (čiji je nivo povećan za 52 % iako ne statistički značajno) i indukcija AO sistema percipirana kao povećanje aktivnosti SOD i nivoa GSH. Odsustvo povećanja koncentracija H_2O_2 i O_2^- ukazuje da je AO odbrambeni

sistem dovoljan da održi redoks ravnotežu na nivou osnovne linije. U krvi pacijenata sa DTC ispitivanim u ovoj studiji, aktivnost SOD je statistički povećana 30. dana, ali i više nego udvostručena 3. dana nakon tretmana ^{131}I . Ove promene su značajne za ukupnu zaštitu AO, jer su aktivnost SOD i nivo O_2^- među tri najvažnija parametra za predviđanje TBARS kao indikatora oksidativnog stresa.

Aktivnost SOD-a štiti od oštećenja slobodnih radikala pretvaranjem O_2^- u H_2O_2 , čime onemogućava O_2^- da se kombinuje sa NO i formira peroksinitrit-jon (ONOO^-), koji inicira peroksidaciju lipida. Naši rezultati su pokazali da su u krvi pacijenata sa DTC nivo O_2^- nepromenjeni u svim ispitivanim vremenskim tačkama u poređenju sa bazalnim nivoima dobijenim pre terapije, pa se čini da ovaj put formiranja ONOO^- nije odgovoran za uočeno povećanje LPO.

Nivo GSH u krvi pacijenata sa DTC je povećan 3. i 7. dana nakon izlaganja ^{131}I , što ukazuje da je neenzimska AO zaštita takođe bila povišena u prvim danima nakon radioterapije. GSH ima višestruku ulogu u regulaciji ćelijske homeostaze. Pored svog značaja u enzimskim i neenzimskim antioksidativnim procesima, GSH je neophodan za ćelijsku proliferaciju i apoptozu, transdukciju signala, proizvodnju citokina i imuni odgovor [9]. Takođe, kako GSH može direktno da neutrališe O_2 i OH, što dovodi do stvaranja oksidovanog glutationa [10], njegova povećana količina u krvi pacijenata sa DTC može pomoći SOD u održavanju bazalnog nivoa O_2 nakon izlaganja ^{131}I .

U našem eksperimentu, nivo TBARS-a kod pacijenata sa DTC je povećan u sve tri vremenske tačke nakon zračenja. Povećanje je bilo značajno 7. i povećano za 52 % i 33 % 3. i 30. dana nakon terapije ^{131}I . Višak LPO u serumu može biti rezultat zračenjem izazvane apoptotičke i mitotičke smrti ćelija u preostalom tkivu štitaste žlezde. Za razliku od radikala koji napadaju biomolekule u njihovoj neposrednoj okolini, proizvodi peroksidacije lipida mogu lako da difunduju kroz membrane i kovalentno modifikuju biomolekule daleko od mesta njihovog porekla [11]. Treba napomenuti da je kod pacijenata sa DTC stepen oksidativnog stresa verovatno bio širi nego što bi se moglo zaključiti iz naših rezultata, pošto je nivo LPO u serumu pre terapije ^{131}I , koju smo koristili za poređenje, nekoliko puta veći kod pacijenata sa karcinomom nego kod zdravih ispitanika. [12].

Zaključci

Povećani nivo TBARS-a uočen u ovom radu ukazuje da su pacijenti sa DTC pod stalnim oksidativnim stresom tokom prvih 30 dana nakon terapije ^{131}I . Praćenje i razumevanje ovih promena je važno jer ne postoji latentni period za izlaganje zračenju i rani oksidativni stres može da promoviše kaskadu događaja koji mogu dovesti do kasnih efekata terapije ^{131}I .

Reference

- [1] Sipos, I., Mazzaferri, E. L., Thyroid Cancer Epidemiology and Prognostic Variables, Clin. Oncol., 22 (2010), 6, pp. 395-404
- [2] Pacini, F., et al., Radioiodine Ablation of thyroid remnants after preparation with Recombinant Human Thyrotropin in Differentiated Thyroid Carcinoma: Results of an International, Randomized, Controlled Study, Clin. Endocrinol. Metab., 91 (2006), 3, pp. 926-932
- [3] Auclair, C., Voisin, E., CRC Hand book of Methods for Oxygen Radical Research, CRC Press, Boca Raton., Fla., USA, 1985, pp 123-132

- [4] Pick, E., Keisari, Y., A Simple Colorimetric Method for the Measurement of Hydrogen Peroxide Produced by Cells in Culture, *J. Immunol. Methods*, 38 (1980), 1-2, pp. 161-170
- [5] Ohkawa, H., et al., Assay for Lipid Peroxides in Animal Tissues by Thiobarbituric Acid Reaction, *Anal. Biochem.*, 95 (1979), 2, pp. 351-358
- [6] Misra, H. P., Fridovich, I., The Role of Superoxide Anion in the Autoxidation of Epinephrine and a Simple Assay for Superoxide Dismutase, *J. Biol. Chem.*, 247 (1972), 10, pp. 3170-3175
- [7] Beutler, E., *Red Cell Metabolism: A Manual of Biochemical Methods*, Grune and Stratton, New York, USA, 1982, p. 105
- [8] Formenti, S. C., Demaria, S., Systemic Effects of Local Radiotherapy, *Lancet Oncol.*, 10 (2009), 7, pp. 718-726
- [9] Wu, G., et al., Glutathione Metabolism and Its Implications for Health, *J. Nutr.*, 134 (2004), 3, pp. 489-492
- [10] Kosower, N. S., Kosower, E. M., The Glutathione Status of Cells, *Int. Rev. Cytol.*, 54 (1978), pp. 109-160
- [11] Negre-Salvayre, A., et al., Advanced Lipid Peroxidation end Products in Oxidative Damage to Proteins, Potential Role in Diseases and Therapeutic Prospects for the Inhibitors, *Br. J. Pharmacol.*, 153 (2008), 1, pp. 6-20
- [12] Makarewicz, J., et al., Radioiodine Remnant Ablation of Differentiated Thyroid Cancer Does not Further Increase Oxidative Damage to Membrane Lipids – Early Effect, *Thyroid. Res.*, 3 (2010), 1, p. 7

OXIDATIVE STATUS IN PATIENTS SUFFERED FROM WELL DIFFERENTIATED THYROID CARCINOMA AFTER ¹³¹I THERAPYVera D. SPASOJEVIĆ-TIŠMA¹, Marija Ž. JEREMIĆ²1) *Public Company Nuclear Facilities of Serbia, Belgrade, Serbia*2) *University Clinical Center Kragujevac, Kragujevac, Serbia***ABSTRACT**

Ablation with radioactive iodine (¹³¹I) is used in the treatment of patients with well-differentiated thyroid cancer. The radiation applied on this occasion also causes oxidative stress and damages cells and tissues, activating antioxidant defense mechanisms. In this paper, the changes of reactive oxygen species and antioxidant components were examined, as well as their importance for lipid peroxidation. The results have showed that the levels of thiobarbituric acid reactive substance were increased during the first 30 days after ¹³¹I therapy. Among the antioxidant components, superoxide dismutase was increased on days 3 and 30, and reduced glutathione on days 3 and 7 after ¹³¹I therapy. Regarding prooxidants, reduction of hydrogen peroxide (H₂O₂) was noted on days 7 and 30, and superoxide anion radical (O₂⁻) remained unchanged after exposure to ¹³¹I. These results indicate that patients with differentiated thyroid cancer are under constant oxidative stress.

**РАДИОАКТИВНИ ОТПАД
И ДЕКОНТАМИНАЦИЈА**

**RADIOACTIVE WASTE
AND DECONTAMINATION**

BEZBEDNO UPRAVLJANJE ZATVORENIM IZVORIMA JONIZUJUĆEG ZRAČENJA: MOGUĆI PRISTUPI, RUKOVANJE, KONDICIONIRANJE I SKLADIŠTENJE

Mihajlo JOVIĆ¹, Nenad ŠIPKA¹, Ivana SMIČIKLAS¹

1) *Institut za nuklearne nauke „Vinča“ - Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Mike Petrovića Alasa 12-14, 11351 Beograd*

Autor za korespondenciju: Mihajlo JOVIĆ, mjovic@vin.bg.ac.rs

SAŽETAK

Zbog široke primene u industriji, medicini, poljoprivredi i različitim oblastima istraživanja, broj zatvorenih izvora jonizujućeg zračenja u svetu je u konstantnom porastu. Kod izvora ovog tipa radioaktivni materijal je hermetički zatvoren/zapečaćen u odgovarajuća kućišta/kapsule, kako bi se sprečio kontakt sa okolinom pri normalnim uslovima primene. U slučajevima kada se korišćenje zatvorenih izvora zamenjuje drugom tehnikom, izvor postane nedovoljne aktivnosti ili oštećen, deklarise se kao isluženi izvor jonizujućeg zračenja koji i dalje može biti visoko radioaktivan i potencijalno opasan po zdravlje ljudi i životnu sredinu. Širom sveta zabeležen je veliki broj akcidenata, pa adekvatno upravljanje predstavlja prioritet sa ciljem sprečavanja nezgoda ovog tipa. Isluženi izvor nije nužno i radioaktivni otpad, pa se pre deklarisanja kao takvog razmatraju i druge opcije. Cilj ovog rada je da predoči moguće pristupe i pruži uvid u neophodne korake u bezbednom upravljanju zatvorenim izvorima jonizujućeg zračenja.

Uvod

Zatvoreni izvor jonizujućeg zračenja (*eng.* sealed radioactive sources – SRS) definiše se kao radioaktivni izvor u kojem je radioaktivni materijal trajno/hermetički zatvoren ili je ugrađen u čvrstom stanju, u odgovarajuće kućište/kapsulu, najčešće od nerđajućeg čelika, radi sprečavanja širenja radioaktivnih supstanci pri normalnim uslovima upotrebe [1]. Kapsula mora biti dovoljno jaka da obezbedi nepropusnost (spreči kontakt sa okolinom) u uslovima normalne upotrebe i habanja, ali i u specifičnim uslovima projektovanim analizom i procenom rizika. Međutim, postoje i stari SRS koji nisu proizvedeni po važećim standardima, pa je za takve uređaje i izvore neophodno predvideti sve sigurnosne rizike kako ne bi došlo do akcidentalnog izlaganja jonizujućem zračenju. SRS su našli veliku primenu i intezivno se koriste širom sveta u industriji, medicini, poljoprivredi, različitim oblastima istraživanja i obrazovanja, kao i u vojnim i odbrambenim aplikacijama. Aktivnosti izvora kreću se od nekoliko kilobekerela (kBq), obično u proizvodima široke potrošnje i smatraju se relativno bezopasnim, pa sve do petabekerela (PBq) koji se koriste u objektima namenjenim za ozračivanje, sterilizaciju i radioterapiju, a koji mogu imati smrtonosno dejstvo čak i tokom kratkotrajnog izlaganja. Uređaji koji koriste SRS mogu biti mobilni/prenosivi ili stacionarni. SRS ugrađeni u stacionarne uređaje predstavljaju manji sigurnosni i bezbedonosni rizik u odnosu na mobilne uređaje čija upotreba zahteva čest transport, neretko i na velike udaljenosti. Primera radi, izvori iridijuma (Ir-192) koji se koriste u industrijskoj radiografiji i ugrađeni su u mobilne uređaje (defetoskope) doprinose najvećem broju nesreća usled čestog transporta, mogućnosti pogrešnog rukovanja i gubitka izvora, ali i česte zamene izvora zbog kraćeg vremena poluraspada [2].

Instalaciju i servisiranje uređaja koji sadrže izvore, montažu/demontažu, redovan servis i/ili zamenu izvora, može da obavlja samo pravno lice licencirano od strane nadležnog/regulatornog tela. Sve aktivnosti obavljaju se sa velikom pažnjom na osnovu prethodno pripremljenog detaljnog plana i analize rizika uz poštovanje svih sigurnosnih i bezbedonosnih procedura i pravila. Tehnička dokumentacija uređaja, obučeno osoblje sa odgovarajućim nivoom teorijskog i praktičnog znanja i iskustva, adekvatne prostorije, objekti, vozila i oprema, samo su neki od zahtevanih preduslova.

U situacijama kada se izvor zamenjuje drugim izvorom (usled nedovoljne aktivnosti, zastarelosti, oštećenja), ili drugom tehnikom, deklarise se kao isluženi izvor jonizujućeg zračenja koji i dalje može biti visoko radioaktivan i potencijalno opasan po zdravlje ljudi i životnu sredinu. Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti ("Sl. glasnik RS", br. 95/2018 i 10/2019) propisuje obavezu nosiocu odobrenja za obavljanje delatnosti sa zatvorenim izvorom zračenja da nakon proglašenja izvora isluženim preduzme sve neophodne mere da vrati izvor isporučiocu. U slučajevima kada vraćanje izvora isporučiocu nije moguće, a budući da isluženi izvor nije nužno i radioaktivni otpad, razmatraju se i druge opcije kao što su upotreba u drugim aplikacijama, prenos na drugog nosioca licence, reciklaža. Ukoliko ni jedna od prethodnih opcija nije ostvarljiva iz tehničkih, ekonomskih i/ili bilo kojih drugih razloga, isluženi izvor jonizujućeg zračenja se deklarise kao radioaktivni otpad i kako takva predaje u centralno skladište radioaktivnog otpada.

Među najznačajnijim akcidentima sa radioaktivnim i nuklearnim materijalima posebno je veliki broj onih koji su izazvani isluženim radioaktivnim izvorima. Neke od ovih nesreća dovele su do smrti ljudi i/ili kontaminacije ljudi i velikih površina. Za sanaciju posledica utrošena su velika novčana sredstva, a konsekvence pojedinih nesreća vidljive su i danas [2]. Više hiljada puta su širom sveta radioaktivni izvori pronađeni u metalnom otpadu, a zabeleženo je i više desetina slučajeva topljenje zatvorenih radioaktivnih izvora u železarama [3]. Neophodno je da izvori koji su u upotrebi, ili su deklarirani kao isluženi, ne predstavljaju opasnost za radnike, širu javnost i/ili životnu sredinu. Izvori u upotrebi moraju biti pod strogom regulatornom kontrolom uz primenu sistema zaštite od jonizujućeg zračenja, a koji podrazumeva zakonske, tehničke, tehnološke, građevinske norme, pravila i mere, higijenske norme, pravila i mere profesionalne sigurnosti i norme, pravila i mere zaštite životne sredine kojima se garantuje zaštita ljudi i životne sredine od štetnog uticaja jonizujućeg zračenja [4]. Adekvatno upravljanje SRS predstavlja prioritet u cilju sprečavanja nezgoda, a cilj ovog rada je da objedini i istakne specifičnosti bezbednog upravljanja SRS.

Karakteristike, kategorizacija/klasifikacija i primena SRS

Za izradu detaljnog plana upravljanja SRS, neophodne su informacije o parametrima i karakteristikama samog izvora kao što su: fizički oblik (agregatno stanje: čvrsto, tečno ili gasovito), radiološke karakteristike (radionuklid, vrsta zračenja – α , β , γ , netroni, aktivnost, vreme poluraspada, faktori konverzije energije i doze), hemijske karakteristike (rastvorljivost, zapaljivost, korišćena jedinjenja ili legure), struktura i dizajn (uključujući dimenzije aktivnog punjenja i kapsule), fizičko stanje (netaknut, oštećen, ustanovljeno curenje), karakteristike koje se odnose na određeni način primene izvora (otpornost na koroziju, toplotu, stabilnost itd).

SRS se koriste u različite svrhe i namene, sadrže širok spektar radionuklida i količine radioaktivnog materijala, pa se njihova kategorizacija zasniva na karakteristikama zračenja i opasnosti koju radioaktivni izvor predstavlja za ljude i životnu sredinu. Kategorizacija SRS je od značaja u svim fazama životnog ciklusa jednog radioaktivnog izvora, od proizvodnje, preko upotrebe, do konačnog odlaganja. Tri glavna međunarodna sistema kategorizacije su

razvijena za informisanje o strategijama upravljanja isluženim radioaktivnim izvorima, a sistemi su razvijeni za različite svrhe donošenja odluka: 1) IAEA kategorizacija na kategorije 1, 2, 3, 4 i 5, zasnovana na mogućnosti radioaktivnog izvora da izazove determinističke zdravstvene efekte (izvori kategorije 1 pokazuju najveći rizik u upravljanju zatvorenim izvorima, dok se kategorija 5 odnosi na najmanji rizik) [5]; 2) IAEA bezbedonosna kategorizacija bazirana na ciljevima koje svaki bezbednosni nivo treba da obezbedi (nivo bezbednosti: A - sprečiti neovlašćeno uklanjanje izvora, B - minimizirati verovatnoću neovlašćenog uklanjanja izvora, C - smanjiti verovatnoću neovlašćenog uklanjanja izvora) [1]; i 3) ISO klasifikacija izvora zasnovana na performansama ispitivanja (naznačava opšte zahteve, testove performansi, testove proizvodnje, obeležavanja i sertifikacije koje izvori namenjeni za određenu aplikaciju moraju da ispune) [6].

U Tabeli 1 prikazane su tipične oblasti primene uređaja koji sadrže različite vrste izvora.

Tabela 1: Tipične oblasti primene SRS i vrste uređaja sa pripadajućim radionuklidima

PRIMENA	RADIONUKID	PERIOD POLURASPADA
Industrija		
Merači debljine	^{85}Kr ; ^{90}Sr (^{14}C ; ^{32}P ; ^{147}Pm ; ^{241}Am)	10,8a; 28,1a (5730a; 14,3d; 2,6a; 432,2a)
Merači nivoa	^{137}Cs ; ^{60}Co (^{241}Am)	30,2a 5,3a (432,2a)
Merači gustine	^{137}Cs ; ^{241}Am (^{90}Sr)	30,2a; 432,2a (28,1a)
Merači vlage	$^{241}\text{AmBe}$ (^{252}Cf ; $^{226}\text{RaBe}$)	432,2a (2,6a; 1600a)
Sterilizacija	^{60}Co ; ^{137}Cs	5,3a, 30,2a
Ispitivanje bušotina	$^{241}\text{AmBe}$; ^{137}Cs	432,2a; 30,2a
Industrijska radiografija	^{60}Co ; ^{192}Ir (^{137}Cs ; ^{170}Tm)	5,3a; 73,8d (30,2a; 128,6d)
Uklanjanje statičkog naelektrisanja	^{210}Po ; ^{226}Ra ; ^{241}Am	138,4d; 1600a; 432,2a
Medicina		
Klinička teleradioterapija	^{60}Co (^{137}Cs ; ^{192}Ir)	5,3a (30,2a; 73,8d)
Denzitometrija kostiju	^{241}Am ; ^{125}I	432,2a; 59,4 d
Brahiterapija	^{137}Cs ; ^{192}Ir ; ^{226}Ra ; ^{60}Co	30,2a; 73,8d; 1600a; 5,3a
Istraživanja		
Uklanjanje statičkog naelektrisanja	^{210}Po ; ^{226}Ra	138,4d; 1600a
Ozračivanje	^{60}Co	5,3a
Kalibracioni izvori	veliki broj radionuklida	

* u zagradama su prikazani alternativni radionuklidi koji se takođe mogu koristiti u datoj aplikaciji.

U gotovo svim primenama, radioaktivni izvor se nalazi unutar kućišta/nosača koji sadrži ili je povezan sa drugim uređajima ili mehaničkim hardverom. U mnogim slučajevima kućište uređaja se koristi za transport SRS do mesta na kojem je predviđena njegova upotreba i pri tome obezbeđuje dovoljnu zaštitu apsorbujući zračenje do bezbednog nivoa. Ovaj tip uređaja poseduje blende/zatvarače čijim otvaranjem se snop zračenja usmerava u željenu metu.

Tabela 1 ilustruje širok spektar primena SRS, a kao najčešće korišćeni radionuklidi mogu se izdvojiti ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{192}Ir i ^{241}Am .

Poseban problem predstavljaju stari SRS koji su korišćeni pre uspostavljanja odgovarajućih regulatornih zahteva i planova za upravljanje isluženim izvorima, a i dan danas se nalaze u upotrebi. Tipični predstavnici ove grupe SRS su radioaktivni gromobrani, postavljeni u mnogim zemljama. Kao izvor korišćeni su ^{60}Co , $^{152,154}\text{Eu}$, ^{85}Kr , ^{226}Ra ili ^{241}Am , sa ciljem da se efikasnost uređaja poveća jonizacijom okolnog vazduha. Kod gromobrana u koje su ugrađivani ^{60}Co , ^{152}Eu i ^{85}Kr , radionuklidi su inkapsulirani (ne postoji opasnost od kontaminacije), snop zračenja je usmeren u vis, ali doza zračenja i do nekoliko hiljada mSv/h na vrhu uređaja predstavlja značajan sigurnosni i bezbednosni rizik. Sa druge strane, radionuklidi ^{226}Ra i ^{241}Am nisu inkapsulirani već su nanošeni na ili u odgovarajuće podloge (npr. folija, keramika), doza zračenja je manja (1 mSv/h), ali postoji opasnost od kontaminacije. Iz navedenih razloga, ali i zbog nedovoljne efikasnosti ovih uređaja, upotreba radioaktivnih gromobrana je prekinuta, a krajem XX veka i zabranjena. I pored toga, na teritoriji naše zemlje i dalje je prisutan određeni broj ovih uređaja koji sadrže ^{60}Co ili $^{152,154}\text{Eu}$, koji su i dalje visoko radioaktivni i potencijalno opasni po zdravlje ljudi i životnu sredinu (Slika 1).



Slika 1: Četiri tipa gromobrana sa radioaktivnim izvorom koji su ugrađivani na teritoriji Republike Srbije: (a) ^{60}Co , (b), (c), (d) $^{152,154}\text{Eu}$ (izvor: Laboratorija Zaštita, INN „Vinča“)

Rukovanje, kondicioniranje i skladištenje

Rukovanje radioaktivnim izvorom se može definisati kao svaka fizička manipulacija izvorom: premeštanje, transfer, uklanjanje iz ili stavljanje u kontejner, rastavljanje dela opreme koji sadrži izvor, uklanjanje izvora iz opreme, merenje, inspekcija ili testiranje. Prilikom planiranja i izvođenja radova koji uključuju rukovanje radioaktivnim izvorima, mora se uzeti u obzir velika mogućnost gubitka kontrole usled potencijalne kontaminacije i potencijalno visoke izloženosti radnika tokom rukovanja radioaktivnim izvorima. Zatvoreni izvori su često sastavni deo opreme povezane sa hemijskim i/ili fizičkim procesima, pa su u takvim slučajevima potrebne posebne mere predostrožnosti da bi se izbegle određene opasnosti i rizici. Takođe, SRS mogu biti u jedinstvenom hemijskom/fizičkom obliku ili oštećeni, što opet zahteva posebne mere predostrožnosti i bezbednosti. Rukovanje SRS odobrava se od strane nadležnog regulatornog tela kroz izdavanje licence u kojoj su navedene sve operacije i aktivnosti koje se mogu preduzeti. Sve aktivnosti koje uključuju rukovanje SRS obavljaju se sa velikom pažnjom na osnovu prethodno pripremljenog detaljnog plana i analize rizika uz poštovanje svih sigurnosnih i bezbedonosnih procedura i pravila.

Svako rukovanje SRS predstavlja potencijalni radiološki rizik koji zavisi od vrste radionuklida, aktivnosti izvora, hemijskog i fizičkog oblika radionuklida, fizičkog stanja i

eventualnog oštećenja izvora. Pre preduzimanja bilo kakve operacije rukovanja izvorom neophodno je isplanirati, sagledati i proceniti vrstu i prirodu svih potencijalnih rizika, proceniti dozu zračenja za svaku specifičnu proceduru/fazu rukovanja izvorom, uzeti u obzir sve faktore koji mogu uticati na bezbednost i dovesti do potencijalne izloženosti radnika i/ili kontaminacije životne sredine. Detaljno planiranje neophodno je bez obzira na tip SRS, kao i na to da li je izvor „go“ (eng. bare source), u kontejneru, u transportnom pakovanju, u originalnom kućištu/kontejneru, ili kao deo aparata/instrumenta. Sve operacije rukovanja treba planirati, testirati i sprovoditi uz prisustvo lica odgovornog za zaštitu od jonizujućeg zračenja koje je obučeno, osposobljeno i odgovorno za sprovođenje mera zaštite od jonizujućeg zračenja u delatnosti koja se obavlja. Rukovanje izvorom u velikom broju slučajeva zahteva manipulaciju i pomeranje teških, glomaznih predmeta, korišćenje opreme sa podizanje, pomeranje i kretanje predmeta i materijala, rad na visini, upotrebu standardnih, ali i specifičnih alata za otvaranje i zatvaranje kontejnera, instrumenata i uređaja, adekvatno osvetljenje i izvore napajanja, uređaje i instrumente za praćenje nivoa zračenja i kontaminacije. Ova delatnost zahteva osoblje sa odgovarajućim nivoom teorijskog i praktičnog znanja i iskustva, dobro istrenirano i uvežbano, dobrog fizičkog i metalnog zdravlja, koje poštuje pripadajuće obaveze i zaduženja, koordinisani timski rad i hijerarhiju u odlučivanju.



Slika 2: Neki od primera uređaja sa SRS i specifičnost uslova njihovim rukovanjem (izvor: Laboratorija Zaštita, INN „Vinča“)

Kondicioniranje je postupak koji ima za cilj da se radioaktivni materijal prevede u ambalažu/paket prihvatljiv za rukovanje, transport, skladištenje i/ili odlaganje, a sve u skladu sa propisima o transportu, zahtevima za skladištenje i/ili kriterijumima za prijem radioaktivnog otpada na odlaganje. Kondicioniranje zatvorenih izvora jonizujućeg zračenja najčešće se obavlja radi smeštanja izvora u odgovarajući kontejner ili prepakivanja izvora u namensku kapsulu [3]. Rizik pri kondicioniranju predstavlja činjenica da je aktivnost radionuklida skoncentrisana u relativno maloj zapremini. Proizvedena ambalaža/pakovanje mora biti potpuno okarakterisana, a mora se uzeti u obzir i mogućnost ponovnog izvlačenja izvora iz ambalaže.

Skladištenje i odlaganje SRS je obično skupo, te se u određenim slučajevima razmatra uklanjanje izvora iz originalnih uređaja. Ova opcija rezultira smanjenjem zapremine SRS i obezbeđuje racionalnije korišćenje prostora za skladištenje ili odlaganje isluženih SRS. Od izuzetne je važnosti da ne dođe do oštećenja izvora ili narušavanja njegovog fizičkog

integriteta tokom procesa uklanjanja. SRS, nakon uklanjanja iz uređaja/radnog kontejnera, mogu se preneti u standardizovane zaštitne kontejnera za skladištenje. Kontejneri treba da budu projektovani tako da obezbede prihvatljivu dozu zračenja na površini kontejnera, zaštitu izvora u skladu sa relevantnim propisima, kao i da minimiziraju mogućnost neovlašćenog pristupa izvoru. Međutim, uklanjanje izvora sa uređaja uključuje manipulaciju „golim“ izvorima, za šta je potrebna posebna stručnost, dobro projektovana radna mesta sa odgovarajućom vrstom zaštite i opreme koja ima za cilj da obezbediti operatera od mogućeg povišenog nivoa izlaganja jonizujućem zračenju i eventualne kontaminacije. Oprema i alati neophodni za rukovanje SRS obuhvataju razne vrste pinceta, hvataljke, manipulatora, privremene/modularne zaštitne barijere od odogvarajućeg materijala sa olovnim prozorima, digestore („glove box“), vruće ćelije opremljene robotskim manipulatorima, različite prihvatne zaštitne kontejnere, opremu za podizanje i pomeranje tereta, itd.

Nakon uklanjanje izvora iz uređaja, izvori se u zaštitnom kontejneru mogu privremeno čuvati u skladištu za privremeno čuvanje. U ovim objektima isluženi izvori se čuvaju sa namerom ponovnog iznošenja nakon urađenog servisa uređaja, radi obrade, prerade ili odlaganja, oslobađanja od regulatorne kontrole, izvoza, reciklaže i ponovne upotrebe u odobrenoj delatnosti. U slučajevima kada vraćanje izvora isporučiocu nije moguće, razmatraju se i druge opcije kao što su upotreba u drugim aplikacijama, prenos na drugog nosioca licence, reciklaža, a ukoliko ne postoji ni opcija za dalju upotrebu, isluženi SRS se proglašava za radioaktivni otpad i predaje nosiocu licence za upravljenje centralnim skladištem radioaktivnog otpada koji vrši njihovo razdvajanje prema aktivnosti, vremenu poluraspada radionuklida, fizičkim i hemijskim svojstvima radionuklida.

Zaključak

Širom sveta zabeležen je veliki broj akcidenata sa zatvorenim izvorima jonizujućeg zračenja, koji su nažalost dovele do smrti ljudi i/ili kontaminacije ljudi i velikih površina, a za čiju sanaciju su utrošene velike količine novca. Konsekvence pojedinih nesreća vidljive su i danas, pa adekvatno upravljanje predstavlja prioritet sa ciljem sprečavanje nezgoda ovog tipa. Svi zahtevi za bezbedno korišćenje zatvorenih izvora jonizujućeg zračenja i upravljanje islužanim zatvorenim izvorima jonizujućeg zračenja treba da budu dostupni pre početka njihove primene. Izvori u upotrebi moraju biti pod strogom regulatornom kontrolom uz primenu sistema zaštite od jonizujućeg zračenja. Svako rukovanje, kondicioniranje, transport i/ili skladištenje zatvorenih izvora jonizujućeg zračenja predstavlja potencijalni radiološki rizik, pa je pre bilo kakve manipulaciju izvornom neophodno isplanirati, sagledati i proceniti vrstu i prirodu svih potencijalnih rizika, proceniti dozu zračenja za svaku specifičnu proceduru/fazu rukovanja izvorom, uzeti u obzir sve faktore koji mogu uticati na bezbednost i dovesti do potencijalne izloženosti radnika i/ili kontaminacije životne sredine.

Zahvalnica

Rad je podržan od strane Ministarstva nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ugovor br. 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] Management for the Prevention of Accidents from Disused Sealed Radioactive Sources, IAEA-TECDOC-1205, Vienna, 2001, ISSN 1011-4289.
- [2] National Academies of Sciences, Engineering, and Medicine. Radioactive Sources: Applications and Alternative Technologies, Washington, DC: The National Academies Press, 2021, ISBN 978-0-309-44791-1.

- [3] O. Ciraj-Bjelac, M. Vujović. Upravljanje radioaktivnim otpadom, Univerzitet u Beogradu - Elektrotehnički fakultet, 2017, ISBN: 978-86-7466-679-1.
- [4] Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti. Sl. gl. RS 95/2018 i 10/2019, 2019.
- [5] Categorization of Radioactive Sources, IAEA Safety Standards Series No. RS-G-1.9, Vienna, 2005, ISBN 92-0-103905-0.
- [6] Radiological Protection - Sealed Radioactive Sources - General Requirements and Classification, International Organization for Standardization, ISO 2919:2012, Geneva, 2012.

SAFE MANAGEMENT OF SEALED RADIOACTIVE SOURCES: POSSIBLE APPROACHES, HANDLING, CONDITIONING AND STORAGEMihajlo JOVIĆ¹, Nenad ŠIPKA¹, Ivana SMIČIKLAS¹

1) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade*

ABSTRACT

Due to their wide application in industry, medicine, agriculture, and various research fields, the number of sealed radioactive sources (SRS) in the world is constantly increasing. In SRS, the radioactive material is hermetically sealed in a suitable capsule to prevent contact with the environment under normal conditions of use. In cases where such a source is replaced by another technique, becomes obsolete, has insufficient activity or is damaged, it is declared as a disused sealed radioactive source that can still be highly radioactive and potentially dangerous for human health and the environment. A large number of accidents have been recorded worldwide, so adequate management is a priority with the aim of preventing accidents of this type. The disused sealed radioactive source is not necessarily radioactive waste, so other options are considered before declaring it as such. This work aims to present possible approaches and provide insight into the necessary steps to manage sealed radioactive sources safely.

EFIKASNOST I KAPACITET SORPCIJE JONA Ba²⁺ ZEOLITOM 4A I PRIRODNIM KLINOPTILOLITOM I UTICAJ KOMPETICIJE SA JONIMA Sr²⁺Ivana SMIČIKLAS¹, Mihajlo JOVIĆ¹, Snežana DRAGOVIĆ¹

1) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke „Vinča” - Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*

Autor za korespondenciju: Ivana SMIČIKLAS, ivanat@vin.bg.ac.rs

SAŽETAK

Radioaktivni izotop barijuma Ba-133 ($t_{1/2} = 10,55$ god.), generisan u nuklearnim reaktorima, testiranjem nuklearnog oružja, drugim nuklearnim aktivnostima i akcidentima, dospeva u životnu sredinu atmosferskom emisijom, putem kontaminiranih voda i izluživanjem iz otpada. Uzimajući u obzir da efikasnost separacije polutanta iz vodene sredine zeolitima zavisi od niza procesnih faktora, neophodni su testovi koji osiguravaju njihovu optimalnu upotrebu u specifičnim uslovima. U ovom radu je izučavano uklanjanje jona Ba prirodnim klinoptilolitom i sintetičkim zeolitom 4A iz jednokomponentnih rastvora i dvokomponentnih smeša jona Ba i Sr, u ravnotežnim uslovima. Rezultati su pokazali da se joni Ba preferentno vezuju u odnosu na Sr nezavisno od tipa zeolita, ali su kapaciteti i efikasnost sorpcije Ba, kao i oba katjona u uslovima kompeticije, značajno veći primenom Z4A. Ukupni kapacitet sorpcije jona se povećava u dvokomponentnim sistemima, što ukazuje na učešće dodatnih aktivnih centara zeolita u prisustvu jona Sr.

Uvod

Barijum (Ba) se u povišenim koncentracijama može javiti u zemljištu, sedimentima, rečnoj i morskoj vodi, kao i u otpadnim vodama iz poljoprivrede i raznih grana industrije [1]. Rastvorljive vrste Ba su veoma toksične, pa i u niskim koncentracijama u pijaćoj vodi predstavljaju uzrok ozbiljnih zdravstvenih problema. Svetska zdravstvena organizacija (SZO), koja generiše smernice o kvalitetu vode kao osnov za postavljanje standarda u zemljama širom sveta, propisuje granicu od 0,7 mg/L za Ba u pijaćoj vodi [2]. Takođe, prisustvo radioaktivnih izotopa Ba u životnoj sredini, posebno γ -emitera Ba-133 sa periodom poluraspada od 10,55 godina, može predstavljati značajan rizik po ljudsko zdravlje. Ovi izotopi su proizvodi fisije nuklearnog goriva, a oslobađaju se putem efluenta koji sadrže radioaktivni otpad iz nuklearnih elektrana, preradom nuklearnog goriva, akcidentima u nuklearnim elektranama, kao i testiranjem nuklearnog oružja [3].

Široka upotreba zeolita za uklanjanje radioaktivnih izotopa zasniva se na jonskoj izmeni, a velika ponuda prirodnih i sintetičkih proizvoda različitih fizičko-hemijskih karakteristika omogućava izbor optimalnog zeolita za konkretnu primenu [4]. Vanmrežni katjoni zeolita, smešteni u kanale i šupljine, vezani su slabim elektrostatičkim silama i, u zavisnosti od svoje dostupnosti, lakše ili teže se zamenjuju drugim katjonima prisutnim u rastvoru. Stoga, kapacitet izmene katjona i selektivnost, kao funkcionalna svojstva zeolita, zavise od kristalohemijskog i strukturnog sastava samog zeolita [5]. Prisustvo kompetitivnih jonskih vrsta u složenom sastavu realnih matriksa može umanjiti efikasnost uklanjanja radionuklida iz otpadnih voda, kontaminiranih podzemnih voda ili zemljišta. Ciljevi ovog rada bili su da se (1) uporede efikasnosti uklanjanja Ba prirodnim zeolitom i sintetičkim zeolitom tipa 4A u uslovima ravnoteže i (2) ispita efekat kompetitivnih jona Sr na efikasnost i kapacitet sorpcije jona Ba zeolitom.

Eksperimentalni deo

Sorpcioni eksperimenti su izvedeni u šaržnim uslovima, na sobnoj temperaturi (21 ± 1 °C), mešanjem čvrste i tečne faze u plastičnim kivetama na laboratorijskoj mešalici (10 rpm). Precizno odmerene mase (0,1000 g) prirodnog zeolita (PZ – klinoptilolit, ležište Zalau, Rumunija) i sintetičkog zeolita 4A (Z4A – fabrika “Alumina”, Zvornik, Bosna i Hercegovina) uravnotežavane su sa 20 mL simuliranog tečnog otpada tokom 24 sata, radi postizanja sorpcione ravnoteže. Rastvori su pripremljeni rastvaranjem soli analitičke čistoće ($\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ i $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$) u dejonizovanoj vodi. U prvoj seriji eksperimenata su korišćeni rastvori jona Ba u opsegu koncentracija 10^{-4} mol/L – 10^{-2} mol/L, a u drugoj seriji ekvimolarne smeše jona Ba i Sr u kojima je početna koncentracija svakog jona varirana u opsegu 10^{-4} mol/L – 10^{-2} mol/L. Početna pH vrednost svih rastvora je podešena na $5,0 \pm 0,1$. Nakon centrifugiranja (10 min, 9000 rpm), tečne faze su profiltrirane kroz membranske mikrofiltere ($0,45 \mu\text{m}$) i izmerene su ravnotežne pH vrednosti. Metodom optičke emisije spektrometrije sa induktivno kuplovanom plazmom (ICP-OES, Perkin Elmer Avio 200), određene su početne i ravnotežne koncentracije Ba i Sr na talasnim dužinama od 233,527 nm, odnosno 407,771 nm. Količine sorbovanih jona po jedinici mase zeolita (Q_e , mmol/g) i efikasnost uklanjanja jona Ba i Sr (E, %) izračunate su prema jednačinama:

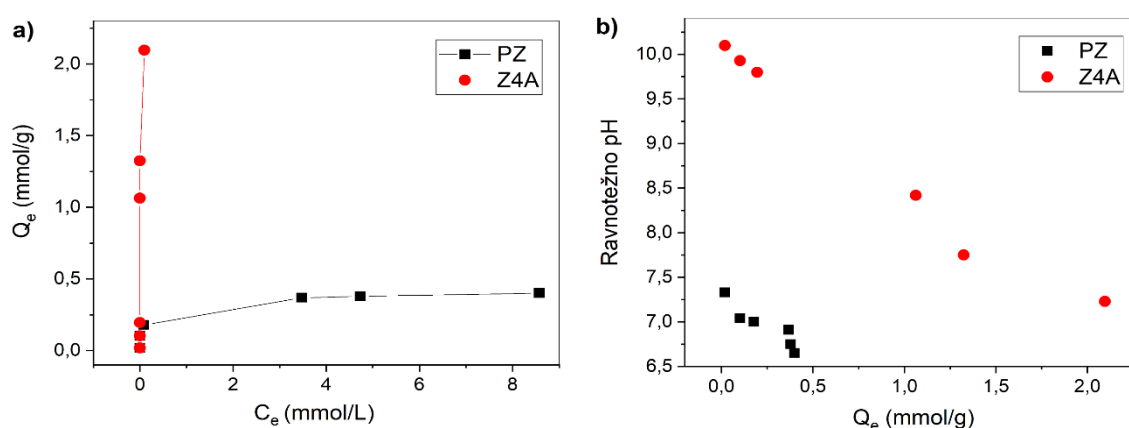
$$(1) \quad Q_e = \frac{(C_0 - C_e) \times V}{m}$$

$$(2) \quad E(\%) = \frac{(C_0 - C_e)}{C_0} \times 100$$

gde C_0 i C_e predstavljaju početnu i ravnotežnu koncentraciju jona u rastvoru (mmol/L), V je zapremina tečne faze (L), a m je masa zeolita (g).

Rezultati i diskusija

Na Slici 1a prikazane su sorpcione izoterme jona Ba na ispitivanim zeolitima, kao zavisnost između količine sorbovane čvrstom fazom i količine zaostale u rastvoru, u uslovima sorpcione ravnoteže.

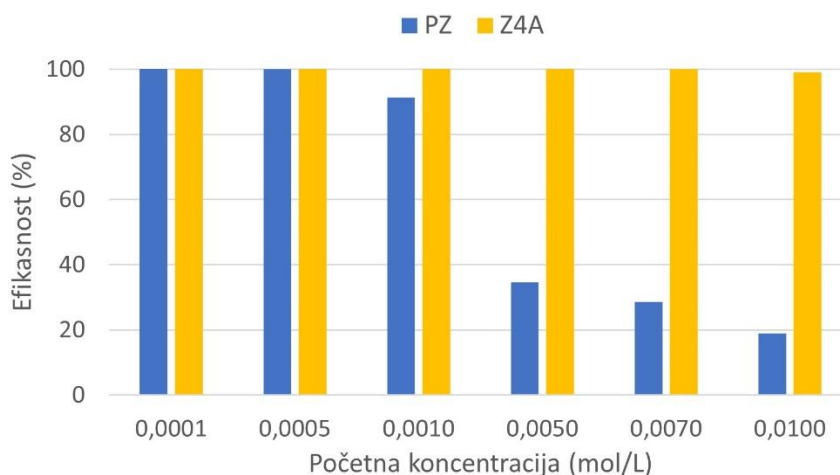


Slika 1: a) Sorpcione izoterme Ba na zeolitima, b) zavisnost pH vrednosti rastvora od sorbovane količine Ba u uslovima ravnoteže

Osim razmenom, katjoni metala mogu biti specifično sorbovani ili precipitirani na površini zeolita, pa je kapacitet zeolita zbir aktivnih jonskih i sorpcionih centara [8]. Slika 1b prikazuje zavisnost između pH vrednosti rastvora nakon tretmana zeolitima i količine

sorbovanih jona Ba. Neutralne pH vrednosti (7,3) opadaju do blago kiselih (6,6) sa porastom sorpcije Ba na PZ, dok se pH vrednosti nakon primene Z4A menjaju od visoko alkalnih (10,1) do neutralnih (7,2) sa porastom sorbovane količine Ba. Ovi podaci potvrđuju učešće mehanizma specifične sorpcije jona Ba na protonovanim aktivnim površinskim centrima oba zeolita.

Efikasnost uklanjanja jona Ba ispitivanim zeolitima u funkciji početne koncentracije jona Ba prikazana je na Slici 2.

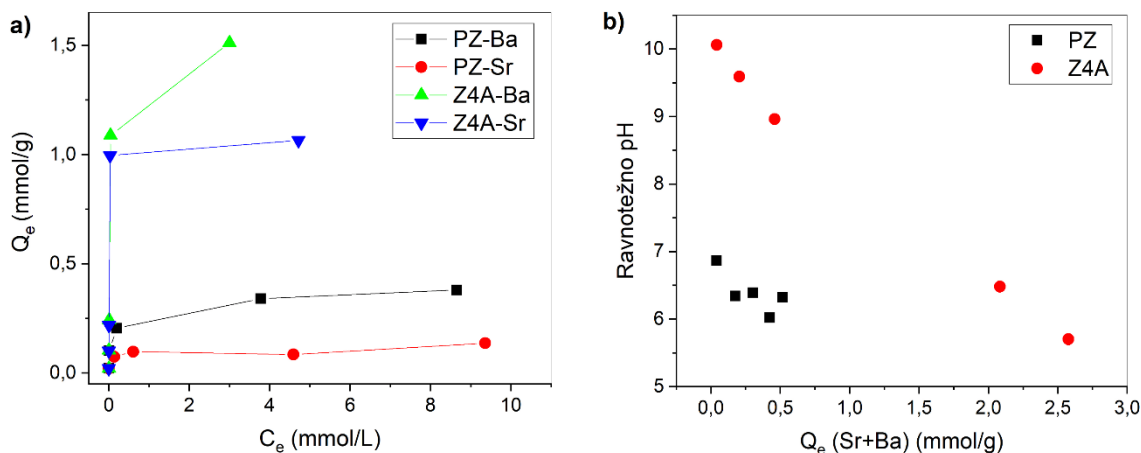


Slika 2: Efikasnost uklanjanja jona Ba zeolitima u funkciji početne koncentracije Ba

Do početne koncentracije od $5 \cdot 10^{-3}$ mol/L, koncentracije Ba u rastvoru nakon tretmana sa Z4A su bile ispod granica detekcije ($<0,005$ mg/L). Efikasnost procesa uklanjanja jona Ba je smanjena od praktično 100 % do 99,1 % pri najvećoj primenjenoj koncentraciji Ba (10^{-2} mol/L). Prirodni zeolit je takođe veoma efikasan za uklanjanje Ba iz rastvora niskih koncentracija (100 % pri $C_0=10^{-4}$ mol/L; 99,9 % pri $C_0=5 \cdot 10^{-4}$ mol/L). Sa daljim povećanjem koncentracije Ba u simuliranoj otpadnoj vodi (10^{-3} mol/L – 10^{-2} mol/L) efikasnost procesa naglo pada opada od 91,3 % do svega 18,9 %.

Na Slici 3a su prikazane kompetitivne sorpcione izoterme jona Ba i Sr na zeolitima. Eksperimentalno određeni maksimalni kapaciteti Z4A su 1,510 mmol/g za Ba i 1,065 mmol/g za Sr. U odnosu na sintetički proizvod, maksimalni kapacitet PZ je ~ 4 puta manji za jone Ba (0,380 mmol/g) i ~ 8 puta manji za jone Sr (0,136 mmol/g). Preklopljeni vertikalni delovi izoterme sorpcije Ba i Sr na Z4A pokazuju da se oba jona sorbuju paralelno do vrednosti od 1 mmol/g, što je u saglasnosti sa literaturnim podacima [9]. Poređenje količina jona Ba sorbovanih iz jednokomponentnih rastvora i smeše pokazuje uticaj kompeticije sa jonima Sr tek pri visokim koncentracijama oba katjona (10^{-2} mol/L) i značajnije smanjenje maksimalnog kapaciteta Z4A prema Ba u odnosu na PZ.

U višekomponentnim rastvorima, fenomen sorpcije je konkurentan, te je pored kapaciteta i selektivnost zeolita prema katjonima iz rastvora važno svojstvo sa aspekta praktične primene. Uzimajući u obzir raznovrsnost kristalografskih mesta u strukturi zeolita i moguću migraciju katjona, sorpciona mesta nisu homogena, a osim afiniteta određenog jona metala prema površinskim centrima, na konkurentnu sorpciju utiču i efekti interakcija. Kombinovanom termodinamičkom analizom utvrđeno je da je u sistemu koji sadrži jone Ba i Sr redosled zauzimanja mesta na površini zeolita 4A modifikovan u odnosu na jednokomponentne rastvore, kao rezultat konkurencije [9]. Pretpostavljeno je da se jedna od komponenti sorbuje na površinskim mestima različitim od onih koje zauzima kada je sama u vodenoj fazi.

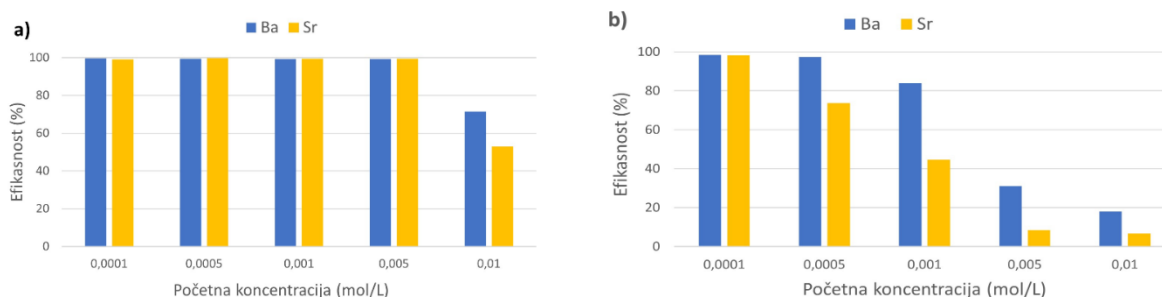


Slika 3: a) Kompetitivne sorpcione izoterme jona Ba i Sr na zeolitima, b) zavisnost pH vrednosti rastvora od sorbovane količine Ba i Sr jona u uslovima ravnoteže

Ukupni kapacitet sorpcije jona ($Q_{e,Ba} + Q_{e,Sr}$) se povećava u dvokomponentnim sistemima u odnosu na jednokomponentne rastvore Ba, dostižući maksimalne vrednosti od 0,517 mmol/g za PZ i 2,576 mmol/g za Z4A. Ova pojava potvrđuje učešće dodatnih aktivnih centara zeolita u prisustvu jona Sr.

Promene ravnotežnih pH vrednosti smeše rastvora sa ukupnom količinom sorbovanih jona prate isti trend kao i u slučaju jednokomponentnih rastvora (Slika 3b). Saglasno većem ukupnom kapacitetu sorpcije jona, pH vrednosti značajnije opadaju (do 6,3 i 5,7 nakon primene PZ i Z4A, respektivno), pokazujući da mehanizam specifične sorpcije učestvuje i u mehanizmu uklanjanja jona Sr zeolitima.

Efikasnost dva zeolita za uklanjanja jona Ba i Sr iz smeše prikazana je na Slici 4. Do početne koncentracije od $5 \cdot 10^{-3}$ mol/L, oba katjona su uklonjena iz rastvora primenom Z4A u visokom procentu (> 99 %), dok je pri početnim koncentracijama jona od 10^{-2} mol/L efikasnost opala na 71,5 % za jone Ba i 53,0 % za jone Sr. Nasuprot tome, PZ efikasno uklanja jone Ba i Sr (> 98%) samo pri najnižoj ispitivanoj početnoj koncentraciji jona od 10^{-4} mol/L, a sa daljim porastom koncentracije jona u smeši efikasnost procesa opada do 18,0 % za Ba i 6,8 % za Sr.



Slika 4: Efikasnost uklanjanja Ba i Sr jona iz ekvimolarnih smeša različitih početnih koncentracija zeolitom 4A (a) i prirodnim zeolitom (b)

Zaključak

U uslovima kompeticije, maksimalni sorpcioni kapaciteti prate trend $Ba > Sr$ nezavisno od tipa zeolita, ali su vrednosti kapaciteta Z4A značajno veće u odnosu na PZ (~ 4 puta za jone Ba i ~ 8 puta za jone Sr). Ukupni kapacitet sorpcije jona (Ba+Sr) se kod oba zeolita povećava u odnosu na kapacitet sorpcije Ba iz jednokomponentnih rastvora, što ukazuje na dostupnost novih

aktivnih centara zeolita u uslovima kompetitivne sorpcije. Bez obzira na kapacitet sorbenta, proces će u praksi biti efikasan samo ukoliko su koncentracije/aktivnosti polutanata u rastvoru nakon tretmana ispod prihvatljivih sigurnih granica. I prirodni klinoptilolit i sintetički Z4A mogu biti efikasni sorbenti koegzistirajućih Ba i Sr jona, međutim, Z4A je efikasan u znatno većem opsegu njihovih početnih koncentracija. Nakon tretmana sa 5g/L Z4A, efikasnost procesa dekontaminacije simulirane otpadne vode je > 99 % do početnih koncentracija Ba od 10^{-2} mol/L, odnosno, do koncentracije $5 \cdot 10^{-3}$ mol/L svakog od jona u dvokomponentnoj smeši. Rezultati ukazuju i na opravdanost korišćenja sintetičkog zeolita 4A u tretmanu industrijskih i drugih voda sa visokim koncentracijama toksičnih Ba jona.

Zahvalnica

Rad je podržan od strane Ministarstva nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ugovor br. 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] H. A. Aziz, M. F. Ghazali, Y.-T. Hung, L. K. Wang. Toxicity, source, and control of barium in the environment, in: Handbook of Advanced Industrial and Hazardous Wastes Management, Eds: L. K. Wang, M.-H. S. Wang, Y.-T. Hung, N. K. Shamma, J. P. Chen, CRP Press, Boca Raton, 2017.
- [2] <https://cpcb.nic.in/who-guidelines-for-drinking-water-quality/>
- [3] Y. Peng, H. Huang, D. Liu, C. Zhong. Radioactive barium ion trap based on metal-organic framework for efficient and irreversible removal of barium from nuclear wastewater, ACS Applied Materials and Interfaces Vol.8 No.13, 2016, 8527–8535, ISSN:1944-8244.
- [4] M. Jiménez-Reyes, P.T. Almazán-Sánchez, M. Solache-Ríos. Radioactive waste treatments by using zeolites. A short review, Journal of Environmental Radioactivity Vol.233, 2021, 106610, ISSN:0265-931X.
- [5] A. Radosavljević-Mihajlović, B. Matović. Prirodni zeoliti i mogućnost njihove primene u zaštiti životne sredine, Nauka, bezbednost, policija Vol.13 No.2, 2008, 107–119, ISSN:0354-8872.
- [6] K. Stocker, M. Ellersdorfer, M. Lehner, J.G. Raith. Characterization and utilization of natural zeolites in technical applications, Berg Huetttenmaenn Monatsh Vol.162, 2017, 142–147, ISSN:0005-8912.
- [7] I. Smičiklas, I. Coha, M. Jović, M. Nodilo, M. Šljivić-Ivanović, S. Smiljanić, Ž. Grahek. Efficient separation of strontium radionuclides from high-salinity wastewater by zeolite 4A synthesized from Bayer process liquids, Scientific Reports Vol.11, 2021, 1738, ISSN:2045-2322.
- [8] V. J. Inglezakis. The concept of “capacity” in zeolite ion-exchange systems, Journal of Colloid and Interface Science Vol.281, 2005, 68–79, ISSN:0021-9797.
- [9] B. PreLOT, M. Araïssi, P. Gras, F. Marchandea, J. Zajac. Contribution of calorimetry to the understanding of competitive adsorption of calcium, strontium, barium, and cadmium onto 4A type zeolite from two-metal aqueous solutions, Thermochemica Acta Vol.664, 2018, 39–47, ISSN:0040-6031.

EFFICIENCY AND CAPACITY OF BA²⁺ IONS SORPTION BY ZEOLITE 4A AND NATURAL KLILOPTILOLITE AND INFLUENCE OF COMPETING SR²⁺ IONSIvana SMIČIKLAS¹, Mihajlo JOVIĆ¹, Snežana DRAGOVIĆ¹1) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade***ABSTRACT**

The radioactive barium isotope Ba-133 ($t_{1/2} = 10.55$ y), generated in nuclear reactors, nuclear weapons testing, other nuclear activities, and accidents, reaches the environment through atmospheric emission, contaminated water and leaching from waste. Considering that the efficiency of pollutant separation from aqueous media using zeolites depends on many process factors, tests are necessary to ensure their optimal use in specific conditions. This work studied the removal of Ba ions by natural clinoptilolite and synthetic zeolite 4A from one-component solutions and two-component mixtures of Ba and Sr ions, under equilibrium conditions. The results showed that Ba ions bind preferentially compared to Sr regardless of zeolite type. However, the capacity and efficiency of Ba sorption and sorption of both cations under competing conditions are significantly higher with the use of Z4A. The total ion sorption capacity increases in two-component systems, indicating the participation of additional active zeolite centers in the presence of Sr ions.

PREGLED POTENCIJALNIH PRIMENA OTPADNOG STAKLA EKRANA U MALTER-MATRIKSU ZA IMOBILIZACIJU TEČNOG RADIOAKTIVNOG OTPADA

Tatjana MILJOJČIĆ¹, Ivana JELIĆ¹, Aleksandar SAVIĆ², Marija ŠLJIVIĆ-IVANOVIĆ¹,
Marija JANKOVIĆ¹, Nataša SARAP¹, Vojislav STANIĆ¹, Milica ĆURČIĆ¹,
Slavko DIMOVIĆ¹, Radmila ŠEROVIĆ³

- 1) *Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke Vinča, Beograd, Srbija*
- 2) *Univerzitet u Beogradu, Građevinski fakultet, Beograd, Srbija*
- 3) *Ministarstvo zaštite životne sredine Republike Srbije, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Ivana JELIĆ, ivana.jelic@vin.bg.ac.rs

SAŽETAK

Brzi napredak elektronske industrije doveo je do generisanja velike količine električnog otpada pre isteka njegovog odgovarajućeg životnog veka. Nelegalno odlaganje starih monitora i TV ekrana, odnosno njihovih katodnih cevi (Cathode-Ray Tubes, CRT), predstavlja veliki problem po životnu sredinu iz razloga što je CRT otpad klasifikovan kao opasan zbog visokog sadržaja olova. Stoga, konačnom zbrinjavanju navedenog otpada mora da prethodi tretman u topionici kako bi se olovo odvojilo od stakla. Dosadašnju praksu u Republici Srbiji (RS) dodatno komplikuje nedostatak takvih postrojenja, što zahteva izvoz CRT-a u Zapadnu Evropu uz dodatni trošak. Dosadašnja istraživanja ukazuju na mogućnost primene CRT stakla u izradi opeka, keramičkih pločica, specijalnih prostorija za odlaganje nuklearnog otpada ili kao agregata u građevinarstvu. Takođe, delimična supstitucija cementa fino mlevenim CRT staklom smanjuje količinu njegove potrošnje povećavajući nivo održivosti ovakvog procesa. Ovaj rad se bavi istraživanjima upotrebe CRT stakla u cementnim materijalima, kako bi se procenila mogućnost njegove upotrebe u malter-matriksima za imobilizaciju tečnog radioaktivnog otpada.

Uvod

Brzi napredak tehnologije, doveo je do stvaranja velike količine električnog otpada (e-otpada) i njegovog odlaganja pre isteka životnog veka proizvoda, čineći e-otpad posebnim tokom otpada sa najbržom stopom rasta na globalnom nivou [1]. Veliki deo e-otpada može da se reciklira, međutim neke njegove vrste, kao što su televizori i kompjuterski monitori sa katodnim cevima (eng. *Cathode Ray Tube, CRT*), predstavljaju opasni otpad zbog sadržaja toksičnih komponenti, prvenstveno olova. Razvojem novih ekrana, npr. displeja sa tečnim kristalima (eng. *Liquid-Crystal Display, LCD*), displeja sa svetlećim diodama (eng. *Light-Emitting Diode, LED*) i plazma displeja potražnja za novim CRT uređajima ne postoji, a na deponijama širom sveta javio se veliki problem sa nagomilavanjem zastarelih uređaja. Dodatni problem u tom procesu je upravo činjenica da se novi CRT uređaji više ne proizvode, pa tzv. *Closed-loop* reciklaža, koja obuhvata proizvodnju novih CRT uređaja od starih više nije moguća. Usled toga je *Open-loop* reciklaža ostala jedini mogući način reciklaže prilikom planiranja ponovne upotrebe starog CRT stakla.

Podaci iz poslednjih nekoliko godina sa tržišta prikupljanja i predtretmana e-otpada govore da se otprilike od 50.000 do 150.000 miliona tona stakla za CRT godišnje prikupi samo u Evropi i ne očekuje se smanjivanje u narednim godinama [2]. Smatra se da se količina prikupljenog CRT stakla neće smanjivati u narednom periodu i da će se prikupljati sve do

sredine tridesetih godina ovog veka [3]. U Evropskoj uniji (EU) količina generisanog e-otpada na godišnjem nivou se procenjuje na oko 15 kg po glavi stanovnika, odnosno 5 – 7 miliona tona godišnje uz projektovani godišnji rast od oko 3 do 5% [3].

U Republici Srbiji (RS) ne postoje precizni podaci o količinama generisanog e-otpada i CRT stakla. Na osnovu podataka Programa upravljanja otpadom u RS za period 2022–2031. godine, tokom 2020. godine operateri su prijavili da je operacijama ponovnog iskorišćenja tretirano oko 42.000 tona otpada od električne i elektronske opreme [4]. Opasne komponente računara i TV-a, kao što su monitori i ekrani sa CRT-om, trenutno se samo skladište u RS i izvoze.

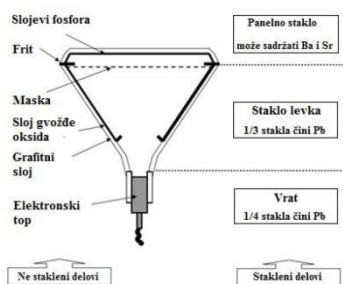
Mešanjem recikliranih i otpadnih materijala sa betonom, kao zamene za cement i/ili agregat može se smanjiti količina eksploatacije ovih prirodnih sirovina [5]. Ukupan obim proizvodnje cementa u svetu je 2022. godine iznosio oko 4,1 milijarde tona, dok je 1995. godine ukupna svetska proizvodnja cementa iznosila samo 1,4 milijarde tona [8]. Budući da proizvodnja cementa čini oko 7% ukupne emisije CO₂ širom sveta, ova industrija se smatra jednim od glavnih problema narušavanja životne sredinu i uzročnikom klimatskih promena [6]. Globalna potrošnja agregata prelazi 40 milijardi tona godišnje [7]. Rezultat je narušavanje biodiverziteta i ekosistema, erozija tla i iscrpljivanje prirodnih resursa. Najviše se eksploatiše pesak, čija je brzina ekstrahovanja daleko veća od brzine stvaranja [8]. Delimična zamena agregata ili veziva sa CRT staklom pokazuje mnoge prednosti [5]. Brojne studije su potvrdile da se i ovo otpadno staklo ponaša kao pucolanski materijal i da pozitivno utiče na mehanička svojstva maltera i betona.

Ovaj rad se bavi istraživanjima upotrebe CRT-a u cementnim materijalima, kako bi se procenila mogućnost njegove upotrebe u malter-matriksima u solidifikaciji tečnog radioaktivnog otpada.

Katodna cev

Prvu staklenu CRT projektovao je nemački fizičar Ferdinand Braun 1897. godine, a serijska proizvodnja TV uređaja započela je u Nemačkoj 1934. godine. Sredinom XX veka pojavile su se CRT u boji, a krajem sedamdesetih godina XX veka počinje i proizvodnja kompjuterskih monitora sa CRT-om [9].

CRT predstavlja vakuumsku cev koja se sastoji iz nestaklenih i staklenih delova (Slika 1). U CRT-u elektroni se fokusiraju i padaju na fluorescentni ekran, proizvodeći na njemu vidljivu tačku [9]. Katoda se zagreva i emituje elektrone, koji se ubrzavaju do anode.



Slika 1. Šematski prikaz CRT [3].

Kod monohromatskih (npr. crno-bela) CRT, postoji jedan sistem za ubrzavanje elektrona – elektronski top. Kod CRT sa prikazom u boji, postoje tri elektronska topa, svaki za posebnu boju (crvena, zelena i plava). Tako ubrzani elektroni se propuštaju kroz tzv. otklonske pločice, gde skreću levo-desno ili gore-dole. Ekran je prekriven fosfornim materijalom koji

svetli kada je погођен електроном [10]. Померањем тачке фокусирања на површини екрана, могуће је произвести слику саčinјену од индивидуалних тачака, односно пиксела. На тај начин се добија слика на екрану.

Три основна стаклена елемента CRT екрана су: врат, левак и панел, а њихов масени удео се разликује и износи: 1%, 33% и 66%, респективно. Врат, иако масено мало заступљен у монитору, садржи око 25% олова, највише од свих стаклених делова. Левак је највећи део CRT-а и садржи око 20% олова. Панел је предњи, видљиви део CRT-а који готово да не садржи олово (0 – 3%), али је премазан слојевима баријума и стронцијума који имају улогу да štite корисника од штетног утицаја UV и X зрачења које стварају електронски топови [11]. Као што се из наведеног може закључити, све три врсте стакла се по хемијском саставу веома разликују. Међутим, иако CRT стакло има различити хемијски садржај, његову главну компоненту чини силицијум диоксид.

Због садржаја олова, баријума и стронцијума, CRT стакло према Каталогу отпада представља опасан отпад и спада у следеће категорије отпада: 16 02 13*, 16 02 15* и 16 03 03* [12]. Хемијски састав катодног стакла у великој мери отежава његову даљу рециклажу, односно примену у производњи неког другог производа. Његов хемијски састав је такав да процес рециклаже мора да задовољи посебне услове који важе за отпад који је означен као „опасан“. Неlegalно одлагање старих монитора и TV екрана, односно њихових катодних цеви представља велики проблем по животну средину услед потенцијалног излуживања штетних метала. Стакло са оловним примесима, какво је CRT стакло, према законској регулативи, не може да се рециклира у RS пошто нема постројења за сепарацију олова, те се извози у Западну Европу што представља финансијско opterećenje за оператере.

Pregled skorašnjih istraživanja

Dosadašnja istraživanja ukazuju na mogućnost primene CRT stakla u izradi raznih vrsta опека, keramičkih pločica, specijalnih prostorija za odlaganje nuklearnog отпада или као агрегата у грађевинарству. Делимиčna супституција цемента или песка fino млевеним или fino дробљеним CRT стаклом смањује количину њихове потрошње повећавајући ниво одрживости оваквог процеса. *Bawab* и др. [13] бавили су се прегледом радова до 2021. године везаних за употребу стакленог CRT отпада у бетону и малтеру на бази цемента. Анализом литературе, аутори су установили да рециклирање ове врсте отпада у материјалима на бази цемента, као замене за песак, побољшава нека својства малтера и бетона. Коришћење отпада од CRT стакла у оваквим материјалима побољшава његову конзистенцију услед глатке површине и веома ниске апсорпције воде. У неким случајевима побољшава и чврстоћу на притисак и чврстоћу на затезање савијањем. Када се користи у малтеру или бетону, отпад од CRT стакла смањује скупљање приликом сушења и упијање воде. Додатак летећег pepела или метаканолина смањује ризик од алкално-силикатне реакције (ASR) у бетону који садржи CRT стакло. Аутори су закључили да се излуживање олова може ублажити различитим техникама, укључујући третман киселином, али и капсулирање коришћењем биополимера, додавањем летећег pepела или самим инкапсулирањем у малтер-матриксу, али и ограничавањем количине CRT стакла у смеси. На основу изведених закључака, предлог аутора је даље истраживање како би се проширило звање о употреби отпада од CRT стакла у материјалима на бази цемента. Generalно, оценовано је да отпад од CRT стакла може бити ваљана компонента у производњи одрживих материјала на бази цемента, посебно за апликације заштите од зрачења.

У последњих пар година публиковано је неколико радова који се, такође, баве овом темом, од чега је у наставку текста представљен један део, као смерница за продубљивање даљих истраживања.

Cabrera i dr. [14] ispitali su mogućnosti kombinovane primene recikliranog agregata sa CRT otpadom, sa smanjenim procentom CRT stakla kako bi se izbegla mogućnost izluživanja štetnih elemenata u životnu sredinu. Ispitana su mehanička svojstva materijala i potencijalna kontaminacija do koje bi mogli da dovedu. Rezultati su pokazali da pri upotrebi CRT stakla kao agregata, u količini od 10%, ne samo da je postignut zadovoljavajući nivo čvrstoće na pritisak kolovozne pod-konstrukcije, već su sve smese klasifikovane kao inertni otpad, te je zaključeno da se navedeni materijali mogu koristiti u niskogradnji.

Grđić i dr. [3] ispitivali su fizičko-mehanička svojstva blokova za popločavanje spravljenih od CRT stakla. Referentni uzorak napravljen je od kvarcnog peska, dok je drugi proizvod predstavljao smesu kvarcnog peska i CRT stakla (50%). Staklo je samleveno do frakcije koja odgovara finoći kvarcnog peska. Ispitano je upijanje vode, otpornost na smrzavanje/odmrzavanje i čvrstoća na zatezanje savijanjem. Zaključeno je da dodatak CRT stakla ne povećava upijanje vode niti smanjuje čvrstoću na zatezanje savijanjem ispod vrednosti propisanih standardima EN 1338 i EN 1339, te rezultati dobijeni eksperimentalnim ispitivanjem nedvosmisleno pokazuju da se CRT staklo može uspešno koristiti za izradu navedenih gotovih proizvoda. U drugoj studiji, Grđić i dr. [15] istraživali su potencijal za korišćenje fino mlevenog CRT stakla kao dodatnog cementnog materijala uz ispitivanje otpornosti ovakvih betona na dejstvo sulfata. Procenat zamene cementa CRT staklom iznosio je 5%, 10%, 15%, 20% i 35%. Procena trajnosti betona na dejstvo sulfata urađena je vizuelnim ispitivanjem izgleda betona, kao i ispitivanjem varijacija čvrstoće na pritisak betonskih uzoraka starih 3, 6, 12 i 36 meseci. Nakon potapanja uzoraka u 5% rastvor Na_2SO_4 tokom 36 meseci, betoni sa 15% i 20% zamenjenog cementa sa fino mlevenim CRT staklom pokazali su istovremeno zadovoljavajuću čvrstoću na pritisak i otpornost na sulfat, te je zaključeno da se ovaj opseg zamene cementa fino mlevenim CRT staklom može preporučiti za praktičnu primenu.

Bijeljic i dr. [16] ispitivali su uticaj upotrebe otpadnog CRT stakla, kao zamene agregata, na mehanička svojstva, ASR i strukturu maltera. Drobljeni otpadni CRT agregat je korišćen za zamenu prirodnog krečnjačkog agregata u masenim udelima od po 0, 25, 50, 75 i 100% u malterskim uzorcima. Rezultati su pokazali da je povećanje procenta CRT stakla kao agregata rezultiralo većom osetljivošću na ASR. Mehanička svojstva i mikroskopija malterskih mešavina pokazali su potencijal korišćenja otpadnog CRT stakla usled male razlike između ispitivanih smesa.

Takođe, *Ling* i dr. [17] proučavali su potencijalnu primenu CRT stakla specifične mase približno $3,0 \text{ g/cm}^3$ kao finog agregata za pripremu cementnih maltera za zaštitu od rendgenskog zračenja. Rezultati su pokazali da su svi pripremljeni malteri imali vrednosti čvrstoće na pritisak veće od 30 MPa, a koje su pogodne za većinu građevinskih primena zasnovanih na ASTM C 270. Uzorci sa CRT staklom pokazali su zadovoljavajuće performanse u zaštiti od zračenja usled prisustva olova. Pored toga, doprinos zaštiti od zračenja CRT stakla bio je izraženiji kada je malter izložen većim energijama.

Pored toga, *Long* i dr. [18] proučavali su reciklažu CRT stakla kao finog agregata u geopolimernom kompozitu na bazi letećeg pepela i šljake. Ispitali su čvrstoću na pritisak, ASR i izluživanje olova iz geopolimernih maltera, a rezultati su pokazali da mehanizam očvršćavanja ovakvih geopolimera uključuje ne samo fizičku inkapsulaciju, već i hemijsko vezivanje olova. Kako se modul silicijum dioksida povećavao, čvrstoća na pritisak i ASR su se prvo povećavali, a zatim smanjivali, dok se koncentracija izluženog olova značajno smanjila. Pokazano je da povećani modul silicijum dioksida poboljšava hemijsko vezivanje jona olova stvaranjem olovnog silikata. Dodatno, povećanje modula silicijum dioksida

značajno poboljšava i ukupnu poroznost, što rezultuje boljim fizičkim performansama inkapsulacije jona Pb.

Zaključak

Prema procenama, količina CRT stakla neće se smanjivati u narednom periodu i prikupljaće se sve do sredine tridesetih godina ovog veka. U RS, nezvanične procene govore da se od ukupne količine generisanog e-otpada reciklira manje od 10%, dok hemijski sastav CRT stakla u velikoj meri otežava njegovu dalju reciklažu, odnosno primenu u proizvodnji nekog drugog proizvoda.

Mešanjem otpadnih materijala sa betonom, kao zamene za cement i/ili agregat moguće je smanjiti eksploataciju ovih prirodnih sirovina, ali i rešiti problem nagomilavanja određene vrste otpada. Budući da proizvodnja cementa čini oko 7% ukupne emisije CO₂ širom sveta, jedan od glavnih problema narušavanja životne sredinu i uzročnik klimatskih promena, na ovaj način može da bude delimično eliminisan.

CRT predstavlja tri vrste stakla koja se po hemijskom sastavu veoma razlikuju. Zbog sadržaja olova, barijuma i stroncijuma, CRT staklo prema *Katalogu otpada* predstavlja opasan otpad. Hemijski sastav katodnog stakla u velikoj meri otežava njegovu dalju reciklažu, odnosno primenu u proizvodnji nekog drugog proizvoda. Staklo sa olovnim primesama, kakvo je CRT staklo, ne može da se reciklira u RS pošto nema postrojenja za separaciju olova, te se izvozi u Zapadnu Evropu što predstavlja finansijsko opterećenje za operatere. Međutim, iako CRT staklo ima različiti hemijski sadržaj, njegovu glavnu komponentu ipak čini silicijum dioksid.

Brojne studije su potvrdile da se CRT staklo ponaša kao pucolanski materijal i da pozitivno utiče na mehanička svojstva maltera i betona. Delimična supstitucija cementa ili peska fino mlevenim ili fino drobljenim CRT staklom smanjuje količinu njihove potrošnje povećavajući nivo održivosti ovakvog procesa. Pregledom literature, zaključuje se da upotreba CRT stakla poboljšava specifična svojstva betona u zavisnosti od udela otpadne sirovine. Rezultati izluživanja pokazuju da koncentracije izluženog olova u životnu sredinu u nekim slučajevima mogu da budu ispod dozvoljenih granica u zavisnosti od udela CRT stakla i, često, zahvaljujući inkapsuliranju u malter-matriksu. Na osnovu navedenih činjenica zaključeno je da CRT staklo može da se upotrebi u pripremi cementnih materijala koji bi se koristili u malter-matriksima za imobilizaciju tečnog radioaktivnog otpada.

Zahvalnica

Istraživanje predstavljeno u ovom radu realizovano je uz finansijsku podršku Ministarstva za nauku, tehnološki razvoj i inovacije Republike Srbije, u okviru finansiranja naučnoistraživačkog rada na Univerzitetu u Beogradu, Institutu za nuklearne nauke Vinča (Ugovor br. 451-03-47/2023-01/200017), Univerzitetu u Beogradu, Građevinskom fakultetu (Ugovor br. 200092) i Univerzitetu u Beogradu, Inovacionom centru Mašinskog fakulteta (Ugovor br. 451-03-47/2023-01/200213).

Literatura

- [1] N. Singh, J. Wang, J. Li. Waste cathode rays tube: An assessment of global demand for processing. *Procedia Environ. Sci.* 31, 2016, 465–474.
- [2] C. P. Baldé, F. Wang, R. Kuehr, J. Huisman. The global e-waste monitor – 2014, United Nations University, Bonn, Germany, 2015.

-
- [3] D. Grdić, I. Despotović, N. Ristić, Z. Grdić, G. T. Ćurčić. Potential for Use of Recycled Cathode Ray Tube Glass in Making Concrete Blocks and Paving Flags. *Materials*. 15, 2022, 1499.
- [4] Program upravljanja otpadom u Republici Srbiji za period 2022 – 2031. godine (Sl. glasnik rs, br. 30/2018).
- [5] Z. Hui, W. Sun. Study of properties of mortar containing cathode ray tubes (CRT) glass as replacement for river sand fine aggregate. *Constr. Build. Mater.* 25, 2011, 4059–4064.
- [6] R. M. Andrew. Global CO₂ emissions from cement production. *Earth Syst. Sci. Data*. 10, 2018, 195–217.
- [7] J. Khatib, A. Jahami, O. Baalbaki, A. Elkordi, H. Abdelgader. Behavior of reinforced concrete beams containing lightweight aggregate in the tensile zone. *BAU J. Sci. Technol.* 1, 2020.
- [8] S. K. Kirthika, S. K. Singh, A. Chourasia. Alternative fine aggregates in production of sustainable concrete – A review. *J. Clean. Prod.* 268, 2020, 122089.
- [9] U. A. Bakshi, A. P. Godse. *Electronic Devices And Circuits*. Vishwakarma Institute of Technology, Pune, India, 2008.
- [10] Delovi Računara. WordPress: <https://partsofpc.wordpress.com/monitori/crt> (preuzeto: 03.07.2023.)
- [11] F. Mear, P. Yot, M. Cambon, M. Ribes. The characterization of waste cathode-ray tube glass. *Waste Manage.* 26, 2006, 1468–1476.
- [12] Pravilnik o kategorijama, ispitivanju i klasifikaciji otpada (Sl. glasnik RS, br. 56/2010, 93/2019 i 39/2021).
- [13] J. Bawab, J. Khatib, H. El-Hassan, L. Assi, M. S. Kırgız. Properties of Cement-Based Materials Containing Cathode-Ray Tube (CRT) Glass Waste as Fine Aggregates – A Review. *Sustainability*. 13, 2021, 11529.
- [14] M. Cabrera, P. Pérez, J. Rosales, F. Agrela. Feasible Use of Cathode Ray Tube Glass (CRT) and Recycled Aggregates as Unbound and Cement-Treated Granular Materials for Road Sub-Bases. *Materials (Basel)*. 13, 2020, 748.
- [15] Z. Grdić, I. Despotović, D. Grdić, G. Topličić-Ćurčić, J. Bijeljić, N. Ristić. Concrete Resistance Achieved with Subtly Ground Tube Glass of Cathode Ray as Supplementary Cementitious Material to Sulphate Attack, *Periodica Polytechnica Civil Engineering*. 67, 2023, 298–307.
- [16] J. Bijeljic, N. Ristić, Z. Grdić, G. Topličić-Ćurčić, N. Stojković. Influence of used waste cathode ray tube glass on alkali silicate reaction and mechanical properties of mortar mixtures. *Facta Universitatis*. 2019, 437–448.
- [17] T. C. Ling, C. S. Poon, W. S. Lam, T. P. Chan, K. K. L. Fung. Utilization of recycled cathode ray tubes glass in cement mortar for X-ray radiation-shielding applications. *J. Hazard. Mater.* 199–200, 2012, 321–327.
- [18] W. J. Long, X. Zhang, J. Xie, S. Kou, Q. Luo, J. Wei, C. Lin, G. L. Feng. Recycling of waste cathode ray tube glass through fly ash-slag geopolymer mortar, *Constr. Build. Mater.* 322, 2022, 126454.

OVERVIEW OF POTENTIAL APPLICATIONS OF SCREEN WASTE GLASS IN MORTAR-MATRIX FOR LIQUID RADIOACTIVE WASTE IMMOBILIZATION

Tatjana MILJOJČIĆ¹, Aleksandar SAVIĆ², Marija ŠLJIVIĆ-IVANOVIĆ¹, Marija JANKOVIĆ¹, Nataša SARAP¹, Vojislav STANIĆ¹, Milica ČURČIĆ¹, Slavko DIMOVIĆ¹, Radmila ŠEROVIĆ³

- 1) *University of Belgrade, Vinča Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, Serbia,*
- 2) *University of Belgrade, Faculty of Civil Engineering, Belgrade, Serbia*
- 3) *Ministry of Environmental Protection of the Republic of Serbia, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

The rapid progress of the electronic industry has led to the generation of a large amount of electrical waste before the end of its useful life. Illegal disposal of old monitors and TV screens, i.e. their Cathode-Ray Tubes (CRT), represents a major concern for the environment being CRT waste is classified as hazardous due to its high lead content. Therefore, the final disposal of this waste must be preceded by treatment in a smelter in order to separate the lead from the glass. The current practice in the Republic of Serbia (RS) is additionally complicated by the lack of such facilities, which requires the export of CRT to Western Europe at an additional cost. Previous research indicates the possibility of CRT glass utilization in the production of bricks, ceramic tiles, and special rooms for the disposal of nuclear waste or as an aggregate in construction. Also, the partial substitution of cement with fine ground CRT glass reduces the amount of its consumption, increasing the level of sustainability of this process. This paper deals with the investigation of CRT glass usage in cement materials, in order to evaluate the possibility of its use in mortar-matrix for the immobilization of liquid radioactive waste.

ПРОБНИ РАД ПОСТРОЈЕЊА ЗА ПРЕРАДУ РАДИОАКТИВНОГ ОТПАДА БЕЗ РАДИОАКТИВНИХ И НУКЛЕАРНИХ МАТЕРИЈАЛА

Бранислав РАДОВАНОВИЋ¹, Иван ГРУЈАНАЦ¹, Данијела СОЛДАТОВИЋ¹

1) *Јавно предузеће „Нуклеарни објекти Србије“, Мике Петровића Аласа 12-14, Београд*

*Аутор за кореспонденцију: Бранислав РАДОВАНОВИЋ,
branislav.radovanovic@nuklearniobjekti.rs*

САЖЕТАК

Након завршетка санације и адаптације, Лабораторија за трансуранске елементе (Латранса) је пренамењена и озакоњена као Постројење за прераду радиоактивног отпада (ППО). Следећи корак је добијање Лиценце за обављање нуклеарне активности: пробни рад нуклеарног постројења, који се састоји од тестирања без и са радиоактивним и нуклеарним материјалима. Циљ прве (хладне) фазе је био да се докаже поузданост у раду свих инфраструктурних инсталација и сигурносних/безбедносних система, да би се прешло на пробни рад са паковањима РАО. Циљ ове фазе је била и провера процедура за обављање планираних активности и обучености запослених, како у редовном погону, тако и у случају акцидента. I фаза показала је да је ППО у погледу сигурносних и безбедносних структура инфраструктурних система у потпуности у исправном и функционалном стању, те да се у том погледу може приступити другој фази. Са друге стране, тестирање је показало да је потребно унапређење технолошких процеса, да би се приступило следећој фази.

Увод

Као један од корака на путу ка пуштању у рад Постројења за прераду радиоактивног отпада (ППО), током јесени 2022. обављена је I фаза пробног рада овог нуклеарног постројења, без радиоактивних и нуклеарних материјала. Основ за њено спровођење било је Решење број 532-01-386/2019-03/2 од 01.02.2022. године, односно Лиценца за обављање нуклеарне активности: пробни рад нуклеарног Постројења за прераду радиоактивног отпада ППО [1], које је издао Директорат за радијациону и нуклеарну сигурност и безбедност Србије. Лиценца је издата на основу и у складу са Коначним извештајем о нуклеарној сигурности за Постројење за прераду радиоактивног отпада ППО, IS.0543.1 [2], верзија 1.1, од 07.07.2021. године и Програмом пробног рада Постројења за прераду радиоактивног отпада ППО ZP.0543.1 [3], број записа 30_1/21 од 22.04.2021. године.

Сврха тестирања је била да се испита рад и поузданост свих инфраструктурних инсталација које су битне за сигуран и безбедан рад ППО (вентилационог система, система радијационог мониторинга, безбедносних система, система раног откривања и дојаве пожара, хидрантске мреже, осталих телекомуникационих система и осталих помоћних система), провери исправност процедура за обављање планираних активности и обави допунска обука непосредних извршилаца тих активности, како у редовном режиму тако и у случају ванредних догађаја.

За сваку активност одређено је одговорно лице, према стручном профилу и компетенцијама, које је пратило описану активност за поједине сегменте пробног рада.

У реализацији пробног рада, које је трајао пет недеља (од 19.09.2022. до 21.10.2022. године), учествовао је већи број сарадника ЈП НОС, из Сектора за управљање радиоактивним отпадом, Сектора за развој и примену нуклеарних технологија, Сектора за нуклеарну безбедност, и из Сектора за радијациону сигурност и заштиту животне средине.

Након завршене I фазе тестирања, носилац лиценце (ЈП НОС) израдио је Извештај о пробном раду нуклеарног постројења за поменуту фазу [4] и исти поднео Директорату.

Реализација пробног рада без радиоактивних и нуклеарних материјала

У оквиру активности пробног рада у току I фазе тестирања нуклеарног постројења ППО без радиоактивних и нуклеарних материјала, спроведен је низ испитивања који одговара специфичним захтевима система нуклеарног постројења, пре свега оних који могу утицати на сигурност и безбедност, као и опреме која ће бити коришћена у II фази тестирања приликом обављања нуклеарних активности.

Кроз обављање послова, описаних у оквиру сваке појединачне провере, извршена је непосредна обука техничара за рад са расположивом опремом (уграђеном, покретном и помоћном), како би се обезбедили услови за обављање свих радњи у току пробног рада са моделима паковања РАО (бетонирана бурад без радионуклида, празни оловни контејнери), провера процедура везаних за прераду и третман, као и манипулацију са РАО и затворених извора јонизујућих зрачења (ЗИЗ) у постројењу ППО.

Реализација пробног рада по активностима дата је у табели 1.

Табела 1. Реализација пробног рада по активностима

Назив активности у току пробног рада	Опис активности	Резиме испитивања
Провера стања постројења ППО (укључујући простор НП15, П14, П15, П16, П17)	визуелни преглед постројења функционална проба врата и прозора	Током тестирања нису утврђене скривене мане на постројењу у целини, као ни на појединим компонентама. Уочени кварови на вратима и бравама су отклоњени, а извршена је и замена једних врата новим.
Провера стања саобраћајница за спољашњи транспорт паковања РАО	визуелни преглед саобраћајница које повезују хангаре Х1, Х2, Х3 и Безбедно складиште (БС) са ППО у оквиру РАО комплекса	Утврђено је да тренутно стање саобраћајница не испуњава услове за сигуран и безбедан транспорт РАО паковања. Саобраћајница која повезује нови хангар Х3/БС са ППО је у задовољавајућем стању. Контрактор је према трипартитном Уговору у обавези да изврши поправку поменутих саобраћајница до издавања лиценце за рад ППО. За потребе пробног рада постројења ППО у II фази тестирања нуклеарног постројења са радиоактивним и нуклеарним материјалом користе се саобраћајнице око самог постројења ППО, и саобраћајница која повезује Х3/БС са ППО-ом, а које су у задовољавајућем стању.
Провера рада спољашње и унутрашње хидранске мреже	визуелни преглед свих хидрантских ормара са припадајућом опремом провера рада хидрантске мреже према важећим прописима визуелни преглед свих хидрантских ормара са припадајућом опремом провера рада хидрантске мреже према важећим прописима обука за рад са хидрантском опремом и за основно одржавање опреме	Хидрантска мрежа око Постројења за прераду радиоактивног отпада је функционална и исправна.
Провера рада водовodne мреже	визуелни преглед и интерна функционална проба санитарнија	Нема недостака у функционисању санитарне водовodne мреже.
Провера рада канализационе мреже	визуелни преглед и интерна проба рада мреже фекалне и кишне канализације	Нема недостака у функционисању кишне и канализационе мреже.
Провера рада мреже потенцијално активне канализације	провера заптивености и функционалности мреже према важећим прописима обука за узорковање и анализу течног садржаја	Нема недостака у функционисању потенцијално активне канализације.

Назив активности у току пробног рада	Опис активности	Резиме испитивања
Провера рада вентилационог система	визуелна провера опреме система вентилације провера даљинског укључивања и искључивања вентилације употребом софтверских команди и надзорних сигнала провера ручног укључивања и искључивања вентилације обука за основно одржавање система вентилације	Систем вентилације у постројењу ППО у потпуности испуњава критеријуме за сигуран и безбедан рад нуклерног постројења. Систем задовољава захтеве противпожарне (ПП) заштите.
Провера рада система грејања	провера рада система радијаторског грејања, у ручном и аутоматском режиму провера опреме система радијаторског грејања провера рада климатизационих јединица обука за основно одржавање опреме провера рада бојлера санитарне воде	Систем грејања је у исправном стању али тренутно без топлотног напајања, што није ограничавајући фактор за тестирање II фазе пробног рада постројења са радиоактивним и нуклеарним материјалима, уз погонско ограничење, које подразумева да се активности у нуклеарном постројењу могу обављати само у условима када је спољашња температура изнад 16°C.
Провера процеса замене филтерских уложака на вентилационом систему и компакторима	визуелна провера филтерских уложака обука и замена филтерских уложака на вентилационом систему и оба компактора	Провером је утврђено да процес замене филтерских уложака у постројењу ППО у потпуности испуњава критеријуме за сигуран и безбедан рад нуклеарног постројења.
Провера електроенергетских инсталација	редовни периодични прегледи трафостанице, уземљења и громобрана, отпора изолације и отпора петље КС, осветљаја, и др.	Провером је утврђено да нема недостака у функционисању електроенергетских инсталација.
Провера рада система раног откривања и дојаве пожара	успостављање редовне недељне, двомесечне, шестомесечне и годишње контроле система обука лица за руковање системом провера искључивања система вентилације, затварања ПП клапни, при укључивању система дојаве пожара	Систем раног откривања и дојаве пожара је исправан. Мобилна опрема за гашење пожара је функционално исправна. Испуњене су законске и подзаконске обавезе у области заштите од пожара.
Провера рада телефонско-рачунарске мреже	провера рада телефонско-рачунарске мреже обука за основно одржавање	Марина Перић Небојша Билановић
Провера рада система видео надзора	визуелна провера камера провера рада система видео надзора обука за основно одржавање опреме	Нема недостака у функционисању телефонско - рачунарске мреже у постројењу ППО.

Назив активности у току пробног рада	Опис активности	Резиме испитивања
Провера рада система противпровалне сигнализације	визуелна провера детектора покрета и детектора лома стакала и остале против - провалне опреме провера рада система	Систем противпровалне сигнализације у постројењу ППО је у исправном и функционалном стању.
Провера рада система контроле приступа	визуелна контрола читача картица и биометијских читача провера рада читача картица и биометријских читача уознавање са процедурама и обука лица за спровођење процедура уласка и изласка за постројење ППО	Систем контроле приступа у постројењу ППО је у исправном и функционалном стању
Провера рада система у режиму резервног напајања УПС-ом и дизел агрегатом (пројектовани ванредни догађај)	провера рада резервног напајања у случају нестанка мрежног напајања провера рада безбедносних система који се напајају у режиму резервног напајања обука лица за одржавање система у режиму резервног напајања	Систем рада у режиму резервног напајања УПС-ом и дизел агрегатом је у исправном и функционалном стању
Провера рада опреме за спољашњи и унутрашњи транспорт паковања РАО и ЗИЈЗ	провера потребног простора за манипулацију виљушкара за унутрашњи и спољашњи транспорт паковања РАО провера рада опреме за транспорт паковања РАО функционална проба уношења паковања РАО у контејнере изван објекта (коришћењем виљушкара) обука лица за активност унутрашњег и спољашњег транспорта	Возила за транспорт паковања РАО и ЗИЈЗ испуњавају све критеријуме и могу се користити за редован рад постројења ППО
Провера рада опреме за карактеризацију РАО	провера начина рада описаног у Процедури за рад провера опреме за карактеризацију (еталонирање и калибрација) обука за рад са опремом (посебно са опремом за течни азот) обука за одржавање опреме и алата	Опрема за карактеризацију РАО која је тренутно на располагању у постројењу ППО, детектор HPGe IGC4020/TECH S.n. 5120, се може користити за предкарактеризацију РАО Неопходна је поправка детектора HPGe IGC4020/TECH S.n. 5121 пре почетка II фазе тестирања постројења ППО. У наредном периоду очекује се испорука трећег детектора HPGe IGC4020/TECH S.n. 5181 из Француске, који ће се тестирати по пријему у постројење ППО.

Назив активности у току пробног рада	Опис активности	Резиме испитивања
Провера начина рада у шатору	<p>провера начина рада описаног у Процедури за рад коришћењем неактивних материјала у амбалажи</p> <p>провера опреме за манипулацију буради и за карактеризацију РАО у шатору</p> <p>провера рада са хидрауличним маказама у шатору</p> <p>обука за основно одржавање опреме и алата</p>	<p>Током I фазе пробног рада постројења ППО констатовано је да дефинисана технологија рада у шатору не испуњава услове сигурног и безбедног рада запослених, те се очекује унапређење исте.</p> <p>Потребна је набавка заштитних екрана, новог превртача паковања РАО и замена места убацивања и извлачења ваздуха у шатору.</p> <p>Колица за увожење бурета РАО, у шатор, нису адекватно технолошко решење због велике носивости паковања РАО, немогућности увожења паковања РАО преко постојећег прага (праг је уједно део носеће конструкције шатора) као и времена током ког је потребно увести буре у шатор (време излагања).</p> <p>Очекује се надзорна посета од стране техничког експерта и техничких официра МААЕ, ради непосредног увида у технологију рада у постројењу. У току те посете биће анализирани поједини аспекти рада постројења ППО у сврху унапређења технолошког концепта прераде РАО.</p>
Провера рада преса за компактирање РАО	<p>провера начина рада описаног у Процедури за рад коришћењем неактивних материјала у амбалажи</p> <p>обука лица за активност компактирања</p> <p>провера потребног простора за манипулацију виљушкара за унутрашњи транспорт РАО</p> <p>обука за основно одржавање опреме и алата</p>	<p>Пресе за компактирање РАО су у исправном и функционалном стању.</p>
Провера начина рада у просторији за кондиционирање ЗИЈЗ	<p>провера начина рада описаног у Процедури за рад коришћењем празних оловних контејнера</p> <p>провера опреме за рад са ЗИЈЗ</p> <p>провера потребног простора за манипулацију виљушкара за унутрашњи транспорт ЗИЈЗ</p> <p>провера опреме за вертикални транспорт</p> <p>обука лица за активност руковања краном</p> <p>обука за основно одржавање опреме и алата</p>	<p>Током I фазе пробног рада постројења ППО констатовано је да постојећу технологију рада у просторији за кондиционирање ЗИЈЗ је потребно до краја дефинисати, те се очекује унапређење исте.</p> <p>Потребна је набавка неопходних помоћних алата и камере пре почетка II фазе тестирања постројења ППО. Очекује се обука запослених од стране техничког експерта Контрактора.</p> <p>Израђена је радионичка документација према којој су направљена специјализована колица за увожење ЗИЈЗ у просторију П11, чиме се осигурава сигурност при извођењу те активности.</p> <p>Очекује се надзорна посета од стране техничког експерта и техничких официра Међународне агенције за атомску енергију (МААЕ), ради непосредног увида у технологију рада у постројењу. У току те посете биће анализирани поједини аспекти рада постројења ППО у сврху унапређења технолошког концепта прераде РАО.</p>

Назив активности у току пробног рада	Опис активности	Резиме испитивања
Провера начина рада у просторији за кондиционирање јонизационих детектора дима (ЈДД)	<p>провера начина рада описаног у Процедури за рад</p> <p>провера опреме и алата за рад са ЈДД</p> <p>провера потребног простора за манипулацију/унутрашњи транспорт ЈДД и рад у боксу са рукавицама</p> <p>обука за основно одржавање опреме и алата</p>	Током I фазе пробног рада постројења ППО констатовано је да постојећа технологија рада у просторији за кондиционирање ЈДД у складу са процедуром и израђеним упутствима.
Провера рада система радијационог мониторинга	<p>визуелни преглед успостављање система радијационог мониторинга у објекту и околини (нулто стање)</p> <p>провера опреме за радијациони мониторинг и контролу контаминације лица при уласку и изласку из појединих зона и из постројења</p> <p>обука за основно одржавање опреме и алата</p>	Током I фазе пробног рада постројења ППО констатовано је да је систем радијационог мониторинга исправан и у функционалном стању.
Провера метода и техника одржавања (текуће, периодично)	<p>успостављање система одржавања опреме и система у складу са Процедуром одржавања нуклеарног постројења ППО, и прописаном динамиком периодичног одржавања</p> <p>обука лица за редовни преглед и редовно одржавање опреме и система у складу са Упутствима за рад и одржавање</p>	Током провере метода и техника одржавања, констатовано је да је успостављен систем одржавања опреме и система, у сагласности са Процедуром одржавања нуклеарног постројења за прераду радиоактивног отпада ППО. Установљено је да постоје и да се воде све неопходне контролне књиге. Извршена је обука лица за редовни преглед и одржавање система и опреме у сагласности са упутствима за рад и одржавање.
Успостављање система чишћења ППО	дефинисање дела објекта који подлеже редовном одржавању хигијене	Методe и технике одржавања постројења ППО су у сагласности са одговарајућом Процедуром за одржавање чистоће
Провера деловања у случају акцидента на ППО - вежба	<p>провера деловања у случају акцидента при сценарију пожара и контаминације радне средине</p> <p>провера начина комуникације</p> <p>провера брзине реаговања</p> <p>увежбавање поступака санације стање</p> <p>провера система извештавања о акциденту</p>	Показном вежбом потврђено је да је ЈП спремно на одговор у случају ванредног догађаја изазваног пожаром у објекту ППО.

Закључак

На основу резултата I фазе пробног рада може се закључити да је нуклеарно постројење ППО у погледу структура, компонената инсталираних инфраструктурних система, који су у функцији сигурности и безбедности нуклеарног постројења ППО, у потпуности у исправном и функционалном стању, те да се у том погледу постројење може пустити у другу фазу тестирања.

Са друге стране на основу резултата I фазе пробног рада нуклеарног постројења ППО, у погледу тестираних технолошких процеса у постројењу ППО, констатовано је:

- опрема за карактеризацију РАО која је тренутно на располагању у постројењу ППО, детектор HPGe IGC4020/ITECH S.n. 5120, се може користити само за предкарактеризацију РАО;
- дефинисана технологија рада у шатору не испуњава услове сигурног и безбедног рада запослених;
- да постојећу технологију рада у просторији за кондиционирање ЗИЈЗ је потребно до краја дефинисати.

Референце

- [1] Решење Лиценца за обављање нуклеарне активности: пробни рад нуклеарног Постројења за прераду радиоактивног отпада ППО, Решење број 532-01-386/2019-03/2 од 2022-02-01 године;
- [2] Коначни извештај о нуклеарној сигурности за Постројење за прераду радиоактивног отпада ППО IS.0543.1;
- [3] Програм пробног рада Постројења за прераду радиоактивног отпада ППО ZP.0543.1;
- [4] Извештај о пробном раду Постројења за прераду радиоактивног отпада без радиоактивних и нуклеарних материјала IZ.0543.1

TRIAL OPERATION OF THE RADIOACTIVE WASTE PROCESSING FACILITY WITHOUT RADIOACTIVE AND NUCLEAR MATERIALSBranislav RADOVANOVIĆ¹, Ivan GRUJANAC¹, Danijela SOLDATOVIĆ¹

- 1) *Public Company "Nuclear facilities of Serbia", Belgrade, Serbia, Mike Petrovića Alasa 12-14*

ABSTRACT

After the revitalization and adaptation, the Laboratory for Transuranic Elements (Latransa) was repurposed and legalized as a Radioactive Waste Processing Facility (WPF). The next step is obtaining a licence to carry out nuclear activity License: trial-run of a nuclear facility, which consists of testings without and with radioactive and nuclear materials. The goal of the first (cold) phase was to demonstrate the reliability of the operation of all infrastructure installations and safety/security systems, in order to proceed to trial operation with radioactive waste. In addition, the goal of this phase of trial operation was to verify the correctness of the procedures for planned activities. The first phase showed that, in terms of safety and security structures of the infrastructure systems, the WPF is fully in a correct and functional state, and that in this respect the second phase can be approached. On the other hand, the testing showed that technological processes need to be improved in order to proceed to the next phase.

UPRAVLJANJE RADIOAKTIVNIM OTPADOM INSTITUTA ZA ONKOLOGIJU I RADIOLOGIJU SRBIJE

Jelena MILOVIĆ¹, Snežana ŽIVANOV¹

1) *Institut za onkologiju i radiologiju Srbije, Pasterova 14, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Jelena MILOVIĆ, jelena.milovic@ncrc.ac.rs

SAŽETAK

Radioaktivni otpad generisan u zdravstvenoj ustanovi tercijarnog nivoa Instituta za onkologiju i radiologiju Srbije, Odeljenja nuklearne medicine predstavlja jednu od izazova današnjice, sa kojima se suočavaju i razvijene zemlje. Postavlja se pitanje kako na najbezbedniji način upravljati otpadom u cilju zaštite zaposlenih, stanovništva i životne sredine. Otpad se generiše u radijacionim delatnostima visokog rizika i to dijagnostika i terapija. Najčešće korišćeni radioizotopi čijom upotrebom se generiše različit radioaktivni otpad su Tc-99m, I-131, I-131 MIBG, I-123 MIBG, Lu-177. Predstavljen je model olovnog kontejnera za privremeno skladištenje uključujući i dva taložnika. Radioaktivni otpad razvrstava se prema tipu, količini i karakteristikama shodno zakonskoj regulativi i sa istim se upravlja na samom mestu nastanka. Kada otpad postane neaktivan, tada je dozvoljen njegov dalji tretman shodno drugim svojstvima. Taložnici se automatski naizmenično pune i prazne. Problematika logistike upravljanja radioaktivnim otpadom u zdravstvenim centrima u kojima je potrebno, podrazumeva izgradnju dodatnih objekata ili korišćenje postojećih prostorija uz adekvatnu zaštitu.

Uvod

Radioaktivni otpad (RAO) Instituta za onkologiju i radiologiju Srbije (IORS) generiše se u okviru radijacione delatnosti visokog rizika i to u sledećim organizacionim jedinicama: Odeljenje nuklearne medicine oblast dijagnostika i terapija, Služba radiološke dijagnostike i Klinika za onkološku hirurgiju - Odeljenje operacioni blok sa dnevnom hirurškom bolnicom. [1, 2, 4]

Plan upravljanja radioaktivnim otpadom generatora odnosi se na otpad koji je: generisan kao otpad kroz odobrenu delatnost kao i potencijalno generisan otpad u toku vanrednog događaja. Otpad se generiše kroz radijacionu delatnost visokog rizika. [1, 2, 3]

Radioaktivni izotopi

Institut za onkologiju i radiologiju Srbije u okviru pomenutih organizacionih jedinica, koristi sledeće radioaktivne izotope: Radionuklid Tehnecijum Tc-99m ($E = 140 \text{ KeV}$, $T_{\frac{1}{2}} = 6 \text{ h}$), I-131 ($E = 368 \text{ KeV}$, $T_{\frac{1}{2}} = 8,02 \text{ dana}$), I-131 MIBG ($E = 368 \text{ KeV}$, $T_{\frac{1}{2}} = 8,02 \text{ dana}$), I-123 MIBG ($E = 159 \text{ KeV}$, $T_{\frac{1}{2}} = 13 \text{ h}$) i Lu-177 PRRT (Peptid-Receptor Radionuklidna Terapija) ($E = 113 \text{ keV}$ i 208 keV). [2]

Kategorije radioaktivnog otpada

Prema količini i karakteristikama prisutnih radioaktivnih izotopa radioaktivni otpad Instituta za onkologiju i radiologiju Srbije se svrstava u sledeću kategoriju: **Izuzeti** (Exempted waste - EW) radioaktivni otpad koji ispunjava uslove za izuzimanje ili oslobađanje od regulatorne

kontrolе i *Veoma kratkoživeći* (Very short lived waste - VSLW) radioaktivni отпад који садржи радionuklide са временом полураспада једнаким или краћим од 100 дана. [2]

Vođenje evidencije i izveštavanje o radioaktivnom otpadu generatora

Potreba за beleženjem konkretnih informacija u vezi отпада који настаје i njegovo naknadno rukovanje i skladištenje као i obeležavanje pojedinačnih pakovanja отпада је neophodno. [2, 5] Zapisi треба да буду јасни, читљиви, трајни i да се одржавaju ажурираним u svakom trenutku, тако да су лако доступни на увид. [2, 5] Sistem dokumentacije треба да обезбеди интегрисану evidenciju од trenutka nastanka radioaktivnog отпада па све до skladištenja i konačnog odlaganja. [2, 5] Na IORS-u воде се evidencije о radioaktivnom отпаду који се генерише из терапијског блока Odeljenja Nuklearne medicine, о istrošenim generatorima, о sekundarnom radioaktivnom отпаду односно infektivnom, istrošenim bočicama tehnećijuma i upotrebljenim medicinskim iglama. [2, 5] Evidencije се попуњавају shodno datumu nastanka отпада, mestu i načinu čuvanja. [2, 5] Sledeće informacije треба да буду unete u sistem јasnih, трајних i читљивих zapisa: јединствена kodna oznaka pakovanja radioaktivnog отпада, UN broj, poreklo radioaktivnog отпада, kategorija i tip radioaktivnog отпада, datum, mesto i način nastanka, broj komada u slučaju zbirnih pakovanja radioaktivnog отпада, zapremina i masa, ukupna specifična aktivnost i/ili aktivnost i datum merenja ili procene, као i sadržaj radionuklida čija је aktivnost veća од 1% ukupne aktivnosti, jačina ambijentalne ekvivalentne doze на površini pakovanja radioaktivnog отпада, mesto i način čuvanja, datum predaje u centralno skladište ili oslobađanja radioaktivnog отпада од regulatorne kontrole. [2] Redovnim unosom podataka u odgovarajuću evidenciju са podacima, omogućava се kontinuitet i ažuriranost datih informacija u realnom vremenu. [2,5] Služba за заштиту од jonizujućih zračenja dužna је да svakodnevno prati i kontroliše rad internih zainteresovanih strana u svim organizacionim јединicama u kojima се генерише radioaktivni отпад. [1, 2, 4]

U Tabeli 1. prikazani су radionuklidi који се користе u oblasti dijagnostike Odeljenja nuklearne medicine, отпад који се генерише prilikom pripreme radiofarmaka као i отпад који се генерише prilikom aplikovanja radiofarmaka pacijentima. [2]

Tabela 1: Generisan RAO prilikom pripreme i aplikovanja radiofarmaka u oblasti dijagnostike

Radionuklidi – dijagnostika:	Naziv generisanog отпада:	Vrsta generisanog RAO:
Generatori 99Mo/99mTc I-131 I-131 MIBG I-123 MIBG	Istrošeni genratori	RAO
	Vakuum bočice од Tc-99m	Infektivni RAO
	Medicinske igle	Infektivni RAO
	Tuferi umrljani krvlju, zavojni materijal, špricevi, rukavice i dr	Infektivni RAO
	Sekundarni RAO (PVC rukavice, tuferi, PVC flaše, kapice igle, kartonske kutijice)	Komunalni RAO

U Tabeli 2. prikazani су radionuklidi који се користе u oblasti terapije Odeljenja nuklearne medicine i отпад који настаје tokom boravka pacijenta u terapijskom bloku. [2]

Tabela 2: Generisan RAO u terapijskom bloku

Radionuklidi – terapija:	Naziv generisanog otpada:	Vrsta generisanog RAO:
I-131, I-131 MIBG, 177 Lu	Kartonske kutije sa zaštitnim stiroporom u kojima se nalazi olovni kontejner u kome se nalazi kapsula sa I upakovana u plastičnu zaštitu, kartonska kutija napunjena suvim ledom u kojoj je smešten olovni kontejner i u njemu ampula – staklena bočica sa I-131-MIBG	RAO
	Medicinske igle	Infektivni RAO
	Tuferi umrljani krvlju, zavojni materijal, špricevi, rukavice i dr	Infektivni RAO
	Sekundarni RAO (PVC rukavice, tuferi, PVC flaše, kapice igli, kartonske kutijice)	Komunalni RAO
	Kateter, kesa sa urinom	Infektivni RAO
	Donji veš	Infektivni RAO
	Ostaci hrane i dr	Organski komunalni RAO

Spisak faza i opis procesa upravljanja radioaktivnim otpadom generatora

Proces se sastoji od tri faze:

Prva faza: Predstavlja aktivnost sistematskog sakupljanja i razvrstavanja otpada na samom mestu nastanka. [2, 5] U zavisnosti od porekla, tipa i kategorije radioaktivnog otpada, isti se privremeno skladišti u: *crne kесе* (označene brojem) u kojima se odlaže radioaktivno komunalni otpad poreklom od pacijenata iz terapijskog bloka), *žute kесе* (označene brojem) u kojima je smešten radioaktivno infektivni otpad koji potiče od radioizotopa (eluiranje generatora Tc-99m, priprema radiofarmaka I-123, I-131 i otpad iz terapijskog bloka), *žute kantice* (označene brojevima i slovima) u koje se odlažu samo oštri medicinski predmeti kontaminirani radioaktivnim I i Tc-99m. [2, 5]

Druga faza: Privremeno odlaganje vrši se u olovne kase Odeljenja nuklearne medicine i olovni kontejner sa tri komore 1/2/3 i vratima koja se zaključavaju kao što je prikazano na slici 1. [2, 5]

Treća faza: Ova faza podrazumeva dalji tretman upravljanja otpadom. Nakon isteka potrebnog vremena poluraspada, otpad se dalje po potrebi odlaže i tretira kao komunalni ili kao infektivni otpad. [2, 5]

Sav radioaktivni otpad kako komunalni tako i infektivni odlaže se u olovni kontejner sa tri komore 1/2/3 gde odstoji dok radioaktivnost ne opadne na zakonski dozvoljenu vrednost. [2] Vrše se periodična merenja aktivnosti na kontaktu i na udaljenosti 1 m od olovnog kontejnera. [2] Periodično izmerene vrednosti se unose u formular za evidenciju radioaktivnog otpada i ujedno čine deo Izveštaja o količini radioaktivnog otpada Instituta za onkologiju i radiologiju Srbije. [2] Prilikom odabira odgovarajućeg pakovanja za privremeno skladištenje radioaktivnog otpada treba ispuniti sledeće zahteve: pakovanje treba da bude otporno na bušenje i nepropusno, čak i ako se prevrne ili ispadne, mora biti prilagođeno za rukovanje i premeštanje unutar radnog područja dok je u njemu sadržaj, minimalna opasnost od izlivanja ili ispadanja sadržaja, kanta/kantica treba da ima otvor koji će pri normalnoj upotrebi blokirati ispadanje sadržaja, ali će obezbediti da je moguće staviti predmete u kanticu jednom rukom bez kontaminacije spoljašnjosti kante, nije puna više od tri četvrtine,

trebalo bi da bude adekvatno obeleženo „Opasnost, kontaminirano, samo oštri predmeti.“ [2, 5]

Septička jama – taložnik

Septička jama za neutralizaciju otpadne vode je ukopan armirano-betonski objekat sa dve odvojene komore u dnu jame, dubne 2,00 m i šahta za smeštaj hidroopreme potrebne za kontrolisano pražnjenje komora po završenoj neutralizaciji otpadne vode, otvaranjem zatvarača na ispustu i odvodom preko PVC cevi u šaht opšteg kanalizacionog Sistema grada Beograda. Predviđeno vreme punjenja jedne komore jame može biti samo duže od 30 dana, a ne kraće, što daje još veće pogodnosti zbog produženog broja fizičkih perioda poluraspada koji za I-131 iznosi 8 dana. Jedan taložnik ima zapreminu od 12 m³. Posle minimlnog perioda od 30 dana, taj taložnik bi se zatvarao i otvarao drugi, što podrazumeva da do ispuštanja u kanalizaciju neće doći najmanje za još 30 dana. Na osnovu svega dolazi se do podatka da će u trenutku otvaranja taložnika i ispuštanja sadržaja u kanalizaciju maksimalna specifična aktivnost biti manja od 0,1 kBq/g. Ovo podrazumeva da će radioaktivnost koja se ispušta iz taložnika biti tretirana ispod nivoa izuzeća, a sledi i dalje smanjenje specifične aktivnosti usled novih razblaženja pri ulivu u kanalizaciju.

Olovni kontejner sa tri komore

Olovni kontejner debljine olova 4 mm ima dimenzije 255x110x138 cm služi za odlaganje RAO i sastoji se od tri komore 1/2/3 u kojima se nalaze tri plastične kante zapremine 240 [L] u koje se odlaže RAO. [2]



Slika 1: Kontejner za odlaganje RAO

Upravljanje RAO nakon odležavanja

Radioaktivni otpad koji je generisan u dijagnostičkom delu Odeljenja nuklearne medicine i koji podleže predaji u centralno skladište i/ili oslobađanju od regulatorne kontrole jeste generator Mo⁹⁹-Tc^{99m}. [2] Generator biva dostavljen dva puta mesečno, a potom vraćen na reciklažu. [2] Nakon izvršenog konačnog eluiranja, odležava neophodno vreme u prostoriji za „Pripremu radifarmaka“ i nakon toga biva vraćen spoljno trgovinskom prometu Vinča. [2]

Ostali otpad nakon isteka od minimum 10 vremena poluraspada i merenja površinske radioaktivnosti dalje se odlaže kao komunalni otpad na gradsku deponiju. [2] Jedan deo infektivnog otpada biva dalje predat eksternoj kući ovlašćenoj za dalji tretman. [2]

Rezultati

Institut za onkologiju i radiologiju Srbije na mesečnom nivou generiše blizu 20 kg radioaktivnog otpada i privremeno skladišti četiri generatora na bazi Mo99-Tc-99m. [2]

U Tabeli 3. dat je prikaz načina implementacije podzakonske regulative koja se odnosi na vođenje evidencija o radioaktivnom otpadu koji se privremeno skladišti u kontejner sa tri komore 1/2/3. [2]

Tabela 3: Evidencija radioaktivnog otpada

1. Datum nastanka RAO	1.1 Januar	2. Jedinstvena kodna oznaka pakovanja RAO i Broj komada u slučaju zbirnih pakovanja RAO	3. Masa pakovanja[kg]	4. Ukupna specifična aktivnost i/ili aktivnost i datum merenja ili procene kao i sadržaj radionuklida čija je aktivnost veća od 1 % ukupne aktivnosti 1. $\leq 5,5$ GBq 2. $\leq 3,7$ GBq 3. $\leq 1,85$ GBq	5. Jačina ambijentalne ekvivalentne doze na površini pakovanja RAO [μ Sv/h]	6. Mesto i način čuvanja Olovni kontejner sa tri komore 1/2/3	7. Datum predaje u centralno skladište ili oslobađanja RAO od regulatorne kontrole	8. Izneto iz komore 1/2/3
11.01	1.1		0,3	2	1.2	3	19.05.2023.	3
11.01	1.2		0,5	2	27	3	19.05.2023.	3

Tabela 3.1: Evidencija radioaktivnog otpada, IORS (nastavak prehodne table)

1. Datum nastanka RAO	9. UN broj:	10. Poreklo RAO:	11. Kategorija RAO:	12. Tip RAO	13. Mesto i način nastanka	14. Zapremin [l]:
	/	IORS, Odeljenje nuklearne medicine	Veoma kratkoživeći	čvrsto, nestišljiv, neisparljiv, nerastvorljiv, nezapaljiv, nekorozivan	IORS, Odeljenje nuklearne medicine, Terapijski blok	≤ 20
	/	IORS, Odeljenje nuklearne medicine	Veoma kratkoživeći	čvrst, nestišljiv, neisparljiv, nerastvorljiv, nezapaljiv, nekorozivan	IORS, Odeljenje nuklearne medicine, Terapijski blok	≤ 20

U Tabeli 4. dat je prikaz vođenja evidencija o otpadu odnosno istrošenim generatorima Odeljenja nuklearne medicine, Instituta za onkologiju i radiologiju Srbije. [2]

Literatura

- [1] Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti, Sl. gl. RS 95/18, 10/19.
- [2] Pravilnik o upravljanju radioaktivnim otpadom i istrošenim nuklearnim gorivom, Sl. gl. RS, 127/21.
- [3] Pravilnik o prijavljivanju namere i izdavanju odobrenja za obavljanje radijacionih delatnosti, Sl. gl. RS, 30/22.
- [4] Pravilnik o uslovima za kategorizaciju radijacionih delatnosti, Sl. gl. RS, 94/19, 133/21, 30/22, 113/22.
- [5] Pravilnik o evidenciji o izvorima jonizujućih zračenja, profesionalno izloženim licima, o izloženosti pacijenata jonizujućim zračenjima i radioaktivnom otpadu, Sl. gl. RS, 97/11, 127/21.

RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT OF THE INSTITUTE FOR ONCOLOGY AND RADIOLOGY OF SERBIAJelena MILOVIĆ¹, Snežana ŽIVANOV¹1) *Institute for Oncology and Radiology of Serbia, Pasterova 14, Belgrade, Serbia***ABSTRACT**

Radioactive waste generated in the tertiary level healthcare facility of the Institute of Oncology and Radiology of Serbia, Department of Nuclear Medicine represents one of the challenges of today, which are also faced by developed countries. The question is how to manage waste in the safest way in order to protect employees, the population and the environment. Waste is generated in high-risk radiation activities, namely diagnostics and therapy. The most commonly used radioisotopes, the use of which generates various radioactive waste, are Tc-99m, I-131, I-123, Lu-177. A model of a lead container for temporary storage including two precipitators was presented. Radioactive waste is classified according to type, quantity and characteristics in accordance with legal regulations and is managed at the place of origin. When the waste becomes inactive, then its further treatment according to other properties is allowed. Precipitators are automatically alternately filled and emptied. The issue of the logistics of radioactive waste management in health centers, where it is necessary, involves the construction of additional facilities or the use of existing premises with adequate protection.

**РЕГУЛАТИВА, ЕДУКАЦИЈА
И ЈАВНО ИНФОРМИСАЊЕ**

**REGULATION, EDUCATION
AND PUBLIC INFORMATION**

PRIMENA KAZNENIH MERA U INSPEKCIJSKOM NADZORUVladimir JANJIĆ¹, Katarina ŽARKOVIĆ¹

1) *Direktorat za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost Srbije, Terazije 41a, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Vladimir JANJIĆ, janjic@srbatom.gov.rs

SAŽETAK

U ovom radu biće prikazan pravni osnov i način postupanja Inspekcije za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost, sa posebnim osvrtom na primenu i odabir kaznenih mera. Osnovni cilj inspeksijskog nadzora jeste obezbeđivanje zakonitosti obavljanja delatnosti sa izvorima zračenja, kao i sprečavanje štetnog uticaja jonizujućeg zračenja na pojedince, stanovništvo i životnu sredinu. Opisani cilj Inspekcija postiže kako primenom preventivnih, tako i primenom represivnih mera, među kojima i kaznenih mera propisanih Zakonom o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti i Zakonom o inspeksijskom nadzoru. Inspekcija kaznene mere primenjuje samo ako se drugim merama ne može postići cilj inspeksijskog nadzora, što se procenjuje u svakom konkretnom slučaju. Primena kaznenih mera zasniva se na načelu zakonitosti, nediskriminacije, primeni gradiranog pristupa i proceni uticaja sankcije na obavljanje delatnosti. Koristeći primere iz prakse, predstavljeni su kriterijumi za procenu izricanja kaznenih mera, sa posebnim osvrtom na koncept gradiranog pristupa, koji predstavlja osnov postupanja Inspekcije.

Uvod

Zakon o inspeksijskom nadzoru propisuje da je cilj inspeksijskog nadzora da se preventivnim delovanjem ili izricanjem mera ostvari zakonitost i bezbednost poslovanja i postupanja nadziranih subjekata i spreče ili otklone štetne posledice po zakonom i drugim propisom zaštićena dobra, prava i interese [1]. Ukoliko se tokom inspeksijskog nadzora utvrde nezakonitosti u poslovanju ili postupanju nadziranog subjekta, nadležna inspekcija predlaže mere za njihovo otklanjanje. Ukoliko su otkrivene nezakonitosti kažnjive zakonom, nadležna inspekcija podnosi krivičnu prijavu, prijavu za privredni prestup ili zahtev za pokretanje prekršajnog postupka, a sve u skladu sa propisanim kaznenim odredbama.

Kaznenim odredbama relevantnih zakona propisana su bića krivičnih dela, privrednih prestupa i prekršaja, kao i odgovarajuće sankcije. Propisane sankcije mogu biti raznovrsne: kazne (kazna zatvora, novčana kazna, rad u javnom interesu), zaštitne mere (oduzimanje predmeta, zabrana vršenja određenih delatnosti, zabrana pristupa oštećenom, objektima ili mestu izvršenja prekršaja, javno objavljivanje presude...), vaspitne mere.

Primarna svrha sankcija se ogleda u suzbijanju dela kojima se povređuju ili ugrožavaju zaštićene vrednosti. Osnovna ideja je da se kažnjavanjem spreči i utiče na učinioca, ali i na druge, da ubuduće ne čine kažnjiva dela, da se izrazi društvena osuda, ojača moral i učvrsti obaveza poštovanja zakona [2].

U skladu sa propisanom svrhom, kaznene odredbe u okviru inspeksijskog nadzora imaju za cilj podsticanje nadziranih subjekata na poštovanje propisa, održavanje visokih standarda rada i sprečavanje nedozvoljenih aktivnosti s ciljem zaštite interesa društva i pojedinaca.

Inspeksijski nadzor u oblasti radijacione i nuklearne sigurnosti i bezbednosti

U oblasti radijacione i nuklearne sigurnosti i bezbednosti regulatorni inspeksijski nadzor vrši Inspekcija za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost (u daljem tekstu: Inspekcija). Cilj regulatornog inspeksijskog nadzora je kontrola zakonitosti poslovanja, striktna primena mera radijacione i nuklearne sigurnosti i bezbednosti tokom obavljanja delatnosti, kao i sprečavanje štetnog uticaja jonizujućeg zračenja na pojedince, stanovništvo i životnu sredinu.

Delokrug rada, nadležnosti Inspekcije i postupak samog nadzora propisani su odredbama Zakona o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti i Zakona o inspeksijskom nadzoru. U vršenju inspeksijskog nadzora Inspekcija ima pravo i dužnost da utvrđuje: da li su ispunjeni propisani uslovi za obavljanje radijacione delatnosti i nuklearne aktivnosti, da li su ispunjeni propisani uslovi za vršenje poslova zaštite od jonizujućeg zračenja, da li se sprovode propisane mere zaštite od jonizujućeg zračenja za izložene radnike, stanovništvo i životnu sredinu, da li se sprovode propisane mere radijacione i nuklearne sigurnosti i bezbednosti, da li se na propisan način vodi evidencija nuklearnog materijala, kao i druge evidencije propisane zakonom i važećim međunarodnim sporazumima [3].

Ako se prilikom vršenja inspeksijskog nadzora utvrde nezakonitosti u radu nadziranog subjekta ili druge nepravilnosti koje se ne mogu zanemariti sa stanovišta zaštite od zračenja, postupajući inspektor nalaže mere i rokove za otklanjanje nedostataka, koje je nadzirani subjekat u obavezi da ispuni u zadatom vremenskom intervalu. Inspektor ima i mogućnost izricanja usmenog rešenja, u slučaju potrebe za hitnim postupanjem.

Inspekcija ima i ovlašćenje da uputi zahtev Direktoratu za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost Srbije za suspenziju odobrenja odnosno ovlašćenja, dok se ne otklone utvrđeni nedostaci, odnosno dok se ne ispune rešenjem propisane mere. Suspenzija može trajati najduže 12 meseci počev od dana dostavljanja rešenja o suspenziji. Takođe, Direktor, u skladu sa zakonskim ovlašćenjima, donosi rešenje o oduzimanju odobrenja odnosno ovlašćenja ukoliko se utvrde nezakonitosti u radu koje mogu imati značajne posledice sa stanovišta zaštite od jonizujućeg zračenja, kao što su neobaveštavanje o nastalom vanrednom događaju, predstavljanje netačnih podataka o merama sigurnosti i bezbednosti ili neispunjenje obaveza naloženih rešenjem o suspenziji [3].

Ukoliko su nezakonitosti utvrđene tokom inspeksijskog nadzora propisane kaznenim odredbama, Inspekcija je ovlašćena da podnese krivičnu prijavu, zahtev za pokretanje prekršajnog postupka ili prijavu za pokretanje postupka za privredni prestup.

Pravni osnov primene kaznenih odredaba

Zakonom o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti propisane su kaznene odredbe u oblasti primene izvora i zaštite od jonizujućeg zračenja. U zavisnosti od težine učinjenog protivzakonitog dela, tj. od težine štetnih posledica koje mogu da nastanu, kaznene odredbe su svrstane u dve kategorije: privredni prestupi i prekršaji.

Sankcija za privredne prestupe jeste novčana kazna (u iznosu od 1.500.000 do 3.000.000 dinara za pravno lice, odnosno od 200.000 do 500.000 dinara za odgovorno lice). Kao privredni prestupi propisane su sve radnje koje direktno mogu dovesti do ugrožavanja života i zdravlja ljudi ili životne sredine, kao i činjenica obavljanja delatnosti bez odobrenja. Prijava za pokretanje postupka za privredni prestup podnosi se stvarno i mesno nadležnom javnom tužilaštvu [3].

Prekršajno kažnjavanje (u iznosu od 500.000 do 1.000.000 dinara za pravno lice, odnosno od 50.000 do 100.000 dinara za odgovorno lice) predviđeno je za subjekte kod kojih su utvrđene nezakonitosti u radu koje se pretežno odnose na administrativne i proceduralne obaveze koje

nadzirani subjekat mora da sprovodi prilikom obavljanja delatnosti. Zahtev za pokretanje prekršajnog postupka podnosi se stvarno i mesno nadležnom prekršajnom sudu [3].

Osnov primene kaznenih odredaba jeste načelo zakonitosti, koje podrazumeva da svaki prekršaj i privredni prestup moraju biti propisani relevantnim zakonom, u konkretnom slučaju Zakonom o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti, Zakonom o inspeksijskom nadzoru i Krivičnim zakonikom RS.

Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti, kao *lex specialis*, propisuje prekršaje i privredne presteupe vezane za obavljanje delatnosti, aktivnosti i vršenje ovlašćenja. Iako je Inspekciji najčešći osnov za primenu kaznenih mera navedeni zakon, Inspekcija može pokrenuti prekršajni postupak i shodno Zakonu o inspeksijskom nadzoru, koji je *lex generalis*, ukoliko određeno pitanje nije rešeno matičnim zakonom (npr. ako nadzirani subjekat ne bude prisutan na mestu vršenja inspeksijskog nadzora ili mogućnost prekršajnog gonjenja trećeg lica).

Inspekcija je ovlašćena i na podnošenje krivične prijave stvarno i mesno nadležnom javnom tužilaštvu. Imajući u vidu nadležnost Inspekcije, posebno je značajna Glava 24 Krivičnog zakonika - Krivična dela protiv životne sredine (Unošenje opasnih materija u Srbiju i nedozvoljeno prerađivanje, odlaganje i skladištenje opasnih materija, Nedoizvoljena izgradnja nuklearnih postrojenja), ali i krivična dela Izazivanje opšte opasnosti, Uništenje i oštećenje nuklearnog objekta, kao i Terorizam (razvoj, proizvodnja, nabavka i upotreba oružja zasnovanog na radioaktivnim i nuklearnim materijalima) [4].

Primena kaznenih odredaba u inspeksijskom postupku

Prilikom primene kaznenih mera Inspekcija se prvenstveno vodi principima zakonitosti, jednakosti postupanja, gradiranog pristupa i opravdanosti sankcionisanja nadziranih subjekata. Inspekcija ima ujednačene i unapred definisane kriterijume za primenu kaznenih mera, kako bi se osiguralo da se svi nadzirani subjekti tretiraju na isti način bez obzira na njihovu veličinu, vrstu delatnosti, položaj, uticaj ili druge karakteristike i da se kaznene mere primenjuju na osnovu objektivnih zaključaka inspeksijskog nadzora. Inspekcija ima pravo da u skladu sa procenom rizika, statističkim analizama prethodnih inspeksijskih nadzora kao i drugim relevantnim faktorima, menja (ublažava ili pooštrava) uspostavljeni kriterijum za primenu kaznenih mera, ali i u takvim situacijama neophodna je dosledna primena trenutno važećeg kriterijuma. Ukoliko se u određenoj oblasti primene (npr. dijagnostika u stomatologiji, industrijska radiografija, itd.) ustanovi trend nepravilnosti u radu, Inspekcija može da odluči da se pooštri kriterijum primene kaznenih odredbi za navedenu oblast, kako bi se represivnim merama uticalo na doslednu primenu zakonskih odredbi i mera radijacione sigurnosti i bezbednosti u okviru čitave oblasti primene. Jednakost u primeni kaznenih odredbi ima za cilj održavanje objektivnosti u postupanju Inspekcije i integriteta čitavog sistema inspeksijskog nadzora [5].

Opravdanost inspeksijskog postupanja se ogleda u sagledavanju svih relevantnih faktora koji mogu da utiču na konačnu odluku o kažnjavanju nadziranog subjekta. Kako je glavni cilj inspeksijske kontrole, kao i čitavog regulatornog sistema, obezbeđivanje uslova da se delatnosti obavljaju na siguran i bezbedan način, neophodno je izvršiti procenu na koji način i u kojoj meri će primena sankcija uticati na krajnji cilj [5]. U svim situacijama, kada to okolnosti omogućavaju, Inspekcija treba da deluje preventivno i korektivno prema nadziranim subjektima, uzimajući u obzir procenu rizika za nastanak štetnih posledica, kao i druge faktore i činjenice koji ukazuju na prirodu i razloge nastanka utvrđene nezakonitosti, uz poseban akcenat na procenu uticaja kaznene mere na nadziranog subjekta kao i na delatnost koju isti obavlja. Zakonom propisana samostalnost postupanja u okviru datih ovlašćenja daje

pravo inspektorima da prilikom donošenja odluke o primeni kaznenih mera, uzimaju u obzir i druge informacije i činjenice od značaja koje mogu imati uticaja na potencijalne sankcije prema nadziranom subjektu [3].

Potrebno je istaći da Inspekcija u krivičnoj prijavi, zahtevu za pokretanje prekršajnog postupka ili prijavi za pokretanje postupka za privredni prestup ne predlaže sankciju koja treba da bude izrečena nadziranom subjektu, već je za izricanje sankcije nadležan isključivo postupajući sud.

Kriterijumi za primenu kaznenih mera

Prilikom donošenja odluke o kažnjavanju nadziranog subjekta Inspekcija se vodi unapred određenim kriterijumima koji su uspostavljeni za najčešće nepravilnosti u radu koje se sreću tokom vršenja inspeksijskog nadzora. Kriterijumi su formirani na osnovu statističke analize rezultata i ishoda prethodnog inspeksijskog rada, identifikacije i procene rizika za nastanak štetnih posledica usled kršenja zakonskih odredbi kao i procene efikasnosti i delotvornosti sankcionisanja. Prioritet u primeni kaznenih odredbi imaju nepravilnosti koje mogu imati direktan uticaj na ugrožavanje života i zdravlja, kako izloženih radnika, tako i stanovništva uopšte, kao što su kršenje sigurnosnih procedura rada, rad sa neispravnom opremom, nepropisno postupanje sa radioaktivnim otpadom i isluženim izvorima zračenja, angažovanje lica za rad koja nisu kvalifikovana kao izloženi radnici, itd.

Zakonom o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti zabranjeno je obavljanje delatnosti bez prethodnog odobrenja koje izdaje Direktorat [3]. Inspeksijsko postupanje prema neregistrovanim subjektima predstavlja prioritet iz razloga što u njihovom radu postoji najviše nepoznanica usled nedostatka regulatorne kontrole, te takve aktivnosti nose najveći stepen rizika za nastanak štetnih posledica [6]. S obzirom da je postupanje prema neregistrovanim subjektima striktno propisano matičnim Zakonom, kao i Zakonom o inspeksijskom nadzoru, obavljanje delatnosti bez prethodno izdatog odobrenja će bez izuzetka rezultovati izrečenom merom zabrane rada i podnošenjem prijave za privredni prestup.

Redovne periodične obaveze koje je nadzirani subjekat u obavezi da ispunjava tokom čitavog perioda trajanja odobrenja ili ovlašćenja (dozimetrijska kontrola izvora, lekarski pregledi izloženih radnika, lična dozimetrija izloženih radnika, obuke zaposlenih lica) se sankcionišu u skladu sa utvrđenim gradiranim pristupom. Tokom nadzora Inspekcija kontroliše i procenjuje da li nadzirani subjekat revnosno ispunjava svoje obaveze, ne samo u trenutku vršenja nadzora, već i u prethodnom periodu. Na nadziranog subjekta će se primeniti odgovarajuća kaznena odredba ako se utvrdi propuštanje izvršenja obaveze u dužem vremenskom intervalu (najmanje dva vremenska perioda). Na primer, ukoliko nadzirani subjekat nije upućivao izložene radnike na redovne godišnje lekarske preglede duže od dve godine, Inspekcija izriče meru zabrane rada izloženim radnicima dok se ne dostavi dokaz o izvršenju obaveze i podnosi zahtev za pokretanje prekršajnog postupka protiv nadziranog subjekta kao i lica odgovornog za zaštitu od jonizujućeg zračenja. U slučaju da je propušten redovan lekarski pregled u poslednjih godinu dana, ali na osnovu uvida u dokumentaciju se utvrdi da je subjekat u prošlosti redovno izvršavao zakonske obaveze, Inspekcija takođe izriče zabranu rada izloženim radnicima, ali ne podnosi zahtev za pokretanje prekršajnog postupka.

Kada su u pitanju druge nepravilnosti u radu otkrivene tokom inspeksijskog nadzora, a za koje je procenjeno da ne predstavljaju veliki i direktan rizik za nastanak štetnih posledica, Inspekcija će se odlučiti za primenu preventivnog pristupa, nalaganjem mera za otklanjanje nepravilnosti, bez dodatnog sankcionisanja. Nadziranom subjektu se rešenjem nalaže da

otkloni одређене неправилности у задатом временском року и да докаже о извршеној мери и отклонjenim неправилностима достави на увид Инспекцији. Са друге стране Инспекција може, вршењем контролног инспекцијског надзора, да изврши контролу надзираног субјекта ради утврђивања извршења мера које су наредене у оквиру редовног или ванредног инспекцијског надзора. Уколико надзирани субјекат није поступио по решењу у задатом временском року, Инспекција има право да поднесе захтев за pokretanje прекршajног поступка. Такође понављање одређених неправилности у раду које су већ биле утврђене у претходним надзорима и на основу којих су већ биле изрећене мере за отклањање неправилности, резултоваће применом казnenih мера против надзираног субјекта, с обзиром да корективне мере нису дале жељени резултат, тј. нису подстакле надзираног субјекта да усклади свој рад са законским одредбама.

У свим другим ситуацијама када се установе неправилности у раду надзираног субјекта, које не могу да се предвиде или је учесталост њихове појаве мала, Инспекција ће проценјивати примену казnenih одређби у сваком појединачном случају и на основу тежине штетних последица које су настале или су могле настати. Посебан нагласак ће се стављати на неправилности које за последицу имају потенцијално излагање штетном дејству јонизујућег зрачења, као што су несигурно или небезбедно руковање изворима зрачења, значајна кршења радних и сигурносних процедура, итд. Примена казnenih мера у конкретним случајевима, послужиће за стварање праксе за даље поступање Инспекције у сличним ситуацијама, како би се осигурала конзистентност и објективност у инспекцијском раду.

Према статистицима подацима Инспекције из претходне две године, број покренутих казnenih поступака у просеку износи око 10% од укупног броја извршених инспекцијских надзора. Укупно извршених 196 инспекцијских надзора (редовних, ванредних и контролних) у току 2022. и 2021. године резултовало је захтевима за pokretanjem 15 прекршajних поступака и 6 пријава за привредни преступ. У току редовних инспекцијских надзора поднет је захтев за pokretanje 9 поступака (8 прекршajа и 1 привредни преступ). На основу извршених ванредних инспекцијских надзора поднет је захтев за pokretanje 12 поступака, од тога 7 прекршajа и 5 привредних преступа. Све пријаве за pokretanje привредних преступа су поднете на основу утврђеног стања да надзирани субјекат обавља делатност без претходно издатог одобрења од стране регулаторног тела (рад са изворима зрачења или транспорт извора зрачења). Основ подношења захтева за pokretanje прекршajног поступка jeste рад са изворима зрачења без претходно издатог решења о коришћењу svakog појединачног извора, као и случајеви континуалног неспровођења мера радијационе сигурности у складу са законским одредбама (лекарски прегледи, лична дозиметрија, обуке изложених радника, дозиметрија извора зрачења, итд.).

Највећи број захтева за pokretanje поступака односи се на области примене извора зрачења у медицини (5 прекршajа и 1 привредни преступ), стоматологiji (5 прекршajа и 1 привредни преступ) и у области индустријске радиографије (2 прекршajа и 3 привредна преступа). Наведени резултати су очекивани имајући у виду да је медицинска примена извора зрачења (укључујући стоматологију и ветеринарску медицину) најзаступљенија у Републици Србији (око 60% од укупно издатог броја одобрења је у области медицинских делатности). Такође, индустријска радиографија је, као радијациона делатност високог ризика која укључује и транспорт извора зрачења, као и обављање делатности на терену, изван за то предвиђених постројења, под појачаним надзором Инспекције како би се осигурао висок степен контроле и доследна примена мера радијационе сигурности и безбедности, из чега произлази већи број применjenih казnenih мера.

Zaključak

Инспекцијски надзор у области радијационе и нуклеарне сигурности и безбедности има кључну улогу у обезбеђивању сигурног и безбедног рада са изворима зрачења. У циљу постизања

zakonitosti obavljanja delatnosti, Inspekcija sprovodi preventivne i korektivne mere i primenjuje kaznene odredbe u skladu sa zakonskim propisima. Primarni cilj inspeksijskog nadzora nikada nije sankcionisanje nadziranih subjekata, što proizlazi i iz statističkih podata o ukupnom broju krivičnih prijava, zahteva za pokretanje prekršajnih postupaka i prijava za pokretanje postupaka za privredni prestup. Inspekcija primenjuje kaznene odredbe samo kao krajnje sredstvo kako bi se osigurala zakonitost obavljanja određene delatnosti kao i zakonom propisanih mera sigurnosti i bezbednosti.

Prilikom primene kaznenih odredbi, Inspekcija se vodi principima zakonitosti, jednakosti postupanja i opravdanosti sankcionisanja. Inspekcija treba da uspostavi ujednačene kriterijume za primenu kaznenih mera, koji su zasnovani na objektivnim i nepristrasnim zaključcima, gradiranom pristupu, proceni rizika, potencijalnim štetnim posledicama i opštim ciljevima regulatornog okvira. Prioritet u primeni kaznenih odredbi imaju nepravilnosti koje mogu imati direktan uticaj na ugrožavanje života, zdravlja i životne sredine usled štetnog delovanja jonizujućeg zračenja.

Kaznene mere takođe mogu da imaju snažan preventivan učinak. Svest o mogućnosti primene određenih sankcija za nepoštovanje propisa, može dodatno da motiviše subjekte da se striktno pridržavaju zakona i propisanih zakonskih odredbi. Suočavanjem sa mogućnošću novčanih kazni, gubitka odobrenja za rad ili drugih sankcija, povećava se verovatnoća da će biti uloženi dodatni naponi u cilju implementacije i sprovođenja zakonskih obaveza. Odvratajući karakter kaznenih odredaba podstiče stvaranje okruženja u kojem se striktno pridržavanje propisa i primena mera radijacione i nuklearne sigurnosti i bezbednosti smatra prioritetom.

Literatura

- [1] Zakon o inspeksijskom nadzoru, Sl. gl. RS 36/15, 44/18 - dr. zakon, 95/18.
- [2] D. Jovašević, Z. Stevanović, Kazne kao oblik društvene reakcije na kriminal, Izdavač: Institut za kriminološka i sociološka istraživanja, Beograd, 2011.
- [3] Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti, Sl. gl. RS 95/18, 10/19.
- [4] Krivični zakonik Sl. gl. RS 85/05, 88/05 - ispr., 107/05 - ispr., 72/09, 111/09, 121/12, 104/13, 108/14, 94/16, 35/19.
- [5] Technical Reports Series No. 1002, Notification, Authorization, Inspection and Enforcement for the Safety and Security of Radiation Sources, IAEA, Vienna, 2022.
- [6] M. Stefanović, D. Milovanović, J. Stefanović, I. Dragošan; Vodič za primenu zakona o inspeksijskom nadzoru, Izdavač: Cardno Emerging Markets USA Ltd, Beograd, 2015

APPLICATION OF PENALTIES IN INSPECTION OVERSIGHTVladimir JANJIĆ¹, Katarina ŽARKOVIĆ¹

- 1) *Serbian Radiation and Nuclear Safety and Security Directorate, Terazije 41a, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

In this paper will be presented legal basis and working procedures of Radiation and Nuclear Safety and Security Inspection, with emphasis on application and selection of punitive measures. The main goal of inspection oversight is to ensure the legality of activities with radiation sources, as well as prevention of harmful effects of ionizing radiation on individuals, general population and environment. Inspection achieves the described goal by applying both preventive and repressive measures, including penalties prescribed by the Law on Radiation and Nuclear Safety and Security and the Law on Inspection. Penalties are applied by Inspection only if the main goal of inspection oversight cannot be achieved by other measures, which is assessed in each specific case. Implementation of penalties is based on the principles of legality, non-discrimination, application of a graded approach and assessment of the impact of applied sanction on conducting practices. Using examples from inspection practice, the criteria for assessing the imposition of penalties are presented, with special reference to the concept of graded approach, which is the basis of the Inspection's activities.

TERMINOLOGIJA U OBLASTI RADIJACIONE I NUKLEARNE SIGURNOSTI I BEZBEDNOSTI – IZAZOVI

Ivana AVRAMOVIĆ¹, Ivana VUKANAC², Snežana PAVLOVIĆ³

- 1) *Direktorat za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost Srbije, Beograd*
- 2) *Institut za nuklearne nauke „VINČA“, Beograd*
- 3) *JP „Nuklearni objekti Srbije“, Beograd*

Autor za korespondenciju: *Ivana AVRAMOVIĆ, avramovic@srbatom.gov.rs*

SAŽETAK

Problem u korišćenju stručne terminologije je u poslednje vreme sve izraženiji. Jedan od uzroka za takvo stanje leži u činjenici da je engleski jezik ušao u svakodnevnu upotrebu. Pored toga, činjenica da se srpski standardi objavljuju na engleskom jeziku preuzimanjem međunarodnog ili evropskog standarda još više doprinosi produbljivanju ovog problema. Korišćenje različitih termina za isti pojam može se razrešiti uvođenjem Rečnika stručnih termina. U radu su diskutovane opcije za nekoliko često korišćenih termina.

Uvod

U Leksikonu mjernih jedinica autora Zvonimira Jakobovića koji je izdala Školska knjiga Zagreb davne 1981. godine [1] povodom doslednog usvajanja Međunarodnog sistema mernih jedinica (SI) napisano je sledeće: „*Procjenjuje se da se u razvijenim zemljama obavlja nekoliko desetaka znanstvenih, tehničkih i svakodnevnih mjerenja po stanovniku. Nadalje, pretpostavlja se da se u raznim strukama upotrebljava oko dvije tisuće fizikalnih veličina, a to znači i toliko izvedenih jedinica.*“ U tekstu se dalje kaže: „*Treba, na dalje, računati i na poteškoće s različitim nazivima istih fizikalnih veličina, a da se i ne govori o upotrebi različitih jedinica...Zato je za pouzdano i jednoznačno navođenje mjernih podataka jedini put dogovaranje jednoznačnih naziva, tvorbe naziva i znakova fizikalnih veličina i njihovih jedinica, pisanja i svakog drugog prikazivanja tih podataka... Naziv fizikalne veličine, kao i svaka druga riječ u jeziku, nastaje dogovorom.*“ (podvukao Z.J.)

U nedostatku domaće stručne literature najčešće se poseže za izvorima na engleskom jeziku što dovodi do novog problema vezanog za adekvatne prevode kao i upotrebu tuđica, pre svega anglicizama. Ovome posebno doprinosi ustaljena praksa objavljivanja srpskih standarda na engleskom jeziku preuzimanjem evropskog ili međunarodnog standarda (SRPS ISO, SRPS EN, SRPS IEC...).

U postupku prevođenja zakonodavstva Evropske Unije u oblasti radijacione i nuklearne sigurnosti i bezbednosti, što je obaveza Republike Srbije u procesu priključivanja, stručni redaktori su se suočili sa brojnim nedoumicama. Pored toga, letimičnim pregledom zbornika radova sa simpozijuma DZZSCG u poslednje dve decenije mogu se uočiti različiti termini koji se odnose na istu pojavu ili veličinu.

U ovom radu dat je pregled primera termina koji se koriste u stručnoj literaturi i o čijoj se primeni često otvara diskusija. U radu nisu razmatrane česte greške koje se mogu sresti u široj javnosti kao što su na primer izrazi „radionukleid“, „Silvert“ i slično.

Primeri upotrebe različitih termina

Radijaciona i nuklearna sigurnost i bezbednost je veoma široka oblast koja obuhvata različite vrste aktivnosti u velikom broju delatnosti, počev od naučno-istraživačkog rada do širokog spektra primene izvora jonizujućih zračenja (medicina, industrija, energetika i dr.). U svim ovim oblastima, u aktivnostima pri kojima se mora voditi računa o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti, učesnici mogu biti različitih primarnih profesionalnih orijentacija, različitog nivoa obrazovanja i sa različitim mogućnostima za kontinuirano praćenje aktuelnih trendova u ovoj oblasti uključujući tu i problematiku terminologije.

Od presudnog značaja je i terminologija usvojena u procesu obrazovanja, bilo da su u pitanju klasične akademske studije ili posebno kreirane namenske obuke. U nastavku će biti navedeni samo neki od primera korišćenja različitih termina za istu fizičku veličinu, a koji se mogu naći u literaturi dostupnoj u ovoj oblasti na srpskom jeziku.

Operativna dozimetrijska veličina čiji naziv u originalu glasi *ambient dose equivalent*, $H^*(d)$ i definiše se kao ekvivalent doze koju bi proizvelo usmereno i prošireno polje u ICRU sferi na dubini d na radijus-vektoru koji je suprotan od smera usmerenog polja, u literaturi na srpskom jeziku se pojavljuje u dva oblika: „ambijentalni ekvivalent doze” i „ambijentalni dozni ekvivalent“. Imajući u vidu da se ovde reč *equivalent* (ekvivalent) odnosi na fizičku veličinu *dose* (doza) i da izraz *dose equivalent* predstavlja skraćeni oblik izraza *equivalent of the dose* ispravno preveden termin na srpski jezik bi bio ambijentalni ekvivalent doze. Na isti način treba tretirati i veličinu *personal dose equivalent*, $H_p(d)$ pa bi ovaj termin na srpskom glasio lični ekvivalent doze. Kao dodatna podrška za ovakvu preporuku može poslužiti i činjenica da u svojoj knjizi „Nuklearna energetika” [2], koja je ujedno i jedini udžbenik nuklearne energetike u Srbiji, prof. Dragoslav Popović na str. 381, takođe koristi izraz ekvivalent doze.

Termin *containment* u Rečniku sigurnosti [3] Međunarodne agencije za atomsku energiju (MAAE) se definiše na dva načina u zavisnosti od oblasti primene. U zaštiti od zračenja i nuklearnoj energetici on označava metode ili fizičke strukture dizajnirane da spreče ili kontrolišu oslobađanje i disperziju radioaktivnih supstanci. Kod nuklearnih reaktora *containment* predstavlja jedinstveni omotač pod kojim je smeštena celokupna oprema nuklearnog sistema za proizvodnju pare. Prof. Dragoslav Popović u već pomenutoj knjizi [2] na str. 379 ovaj omotač naziva „sigurnosni plašt”. Među, sada već malobrojnima, nuklearnim inženjerima u Srbiji odomaćio se anglicizam „kontejment“. Isti termin se u oblasti primene garantija u vezi sa Ugovorom o neširenju nuklearnog oružja odnosi na konstruktivne elemente (posude, odeljci sa rukavicama, ormani za skladištenje, sobe, trezori, itd.) koji se koriste za uspostavljanje fizičkog integriteta područja ili predmeta i za održavanje kontinuiteta znanja o nuklearnim materijalima. Koji od ova dva termina treba koristiti (ili oba – u zavisnosti od oblasti primene) stvar je dogovora.

Izraz *spent (nuclear) fuel* se u Rečniku sigurnosti [3] definiše na dva načina. U prvoj definiciji se navodi da je to nuklearno gorivo uklonjeno iz reaktora nakon ozračivanja koje više nije upotrebljivo u svojoj prvobitnoj formi zbog osiromašenja fisionog materijala, zatrovanja ili radijacionog oštećenja. Druga definicija, koja je usvojena u Zakonu o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti [4] preneti iz Zajedničke konvencije o sigurnosti upravljanja istrošenim gorivom i sigurnosti upravljanja radioaktivnim otpadom [5], kaže da je to nuklearno gorivo koje je ozračeno u, i trajno uklonjeno iz jezgra nuklearnog reaktora. Ova definicija u praksi označava gorivo koje je korišćeno kao gorivo ali se više neće upotrebljavati bez obzira na to da li je upotrebljivo ili ne. U našoj praksi je odomaćen izraz „isluženo nuklearno gorivo“. U Zakonu o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti [4] i Zakonu o potvrđivanju Zajedničke konvencije o sigurnosti upravljanja

istrošenim gorivom i sigurnosti upravljanja radioaktivnim otpadom [6] usvojen je izraz „istrošeno gorivo“. Prof. Dragoslav Popović u već više puta navodenoj knjizi [2] na str. 271 ovo gorivo naziva „iskorišćeno“ što više odgovara drugoj definiciji iz Rečnika sigurnosti [3]. Da li ćemo morati da menjamo navike ili zakone ili i jedno i drugo, predmet je dogovora.

Jedan od primera upotrebe termina čija su definicije usvojene dogovorom su sigurnost (*safety*) i bezbednost (*security*). Oba termina na srpskom jeziku se koriste praktično ravnopravno u širokom spektru različitih delatnosti. Međutim, u oblasti primene nuklearnih tehnologija i zaštiti od zračenja njihove definicije su različite, a kod nas utvrđene zakonom [4] u članu 5, i to: radijaciona odnosno nuklearna sigurnost definicijama broj 105 odnosno 70, a radijaciona i nuklearna bezbednost definicijom broj 103. Uprošćena, ilustrativna razlika u primeni ova dva termina, kako u МААЕ vole da naglase, sastoji se u tome što je „sigurnost – zaštita ljudi od izvora jonizujućih zračenja“, a „bezbednost – zaštita izvora od ljudskih (zlonamernih) aktivnosti“. Da li bi trebalo pokrenuti aktivnost za harmonizaciju upotrebe ovih termina na srpskom jeziku u drugim oblastima, odnosno bar u onima koje se graniče ili ukrštaju sa nuklearnim tehnologijama, ostaje za diskusiju.

Dva termina koja se u stručnoj komunikaciji često koriste kao anglicizmi su i bildap (*build up* - nagomilavanje kao i sintagma *build up factor* - faktor nagomilavanja) i šild (*shield* – ekran, zaštita, biološka zaštita, zaštitna barijera i sl.) odnosno šilding (*shileding* – ekran, ekraniranje, proračun zaštite).

U spektrometriji jonizujućeg zračenja, termin **photo-peak** se odnosi na oblast spektra u kojoj je u aktivnoj zapremini detektora apsorbovana sva energija emitovanog fotona – pik totalne apsorpcije. Anglicizam koji se koristi na našem govornom području je „(foto)pik“ dok je izraz „fotovrh“ doslovni prevod sa engleskog jezika. U stručnim krugovima će se naći pristalice i jednog i drugog termina.

Još jedan termin koji se često koristi u zaštiti od jonizujućeg zračenja je **background radiation**. Ovaj pojam označava nivo jonizujućeg zračenja u životnoj sredini na određenoj lokaciji koji potiče od prirodnih izvora. Međutim, u spektrometriji **background** predstavlja odziv detektora (spektar) bez prisustva izvora zračenja/uzorka. U literaturi na srpskom jeziku mogu se naći termini „fon“, „pozadinsko zračenje“, „osnovno zračenje“ i sl. Iako je u tekstu uglavnom jasno na šta se odnosi korišćeni termin, bilo bi dobro da se izvrši harmonizacija u cilju boljeg razumevanja.

U oblasti spektrometrije radionuklida mogu se pomenuti i termini kao što su „specifična aktivnost“, „koncentracija radionuklida“, „masena aktivnost“ i drugi, koji svi označavaju aktivnost pojedinog radionuklida u jedinici mase ili zapremine. U Rečniku sigurnosti [3] termin **specific activity** odnosi se na aktivnost po jedinici mase ili zapremine materijala. U istom izvoru napomenuto je da razlika u korišćenju ovog i termina **activity concentration** predstavlja kontroverzu. U dokumentu se dalje navodi:

“...Neki smatraju da su termini sinonimi i mogu favorizovati jedan ili drugi. ISO 921:1997 (koji je u međuvremenu povučen - prim. autora) pravi razliku između **specifične aktivnosti** kao aktivnosti po jedinici mase i **koncentracije aktivnosti** kao aktivnosti po jedinici zapremine.

Još jedna uobičajena razlika je da se **specifična aktivnost** koristi (obično kao aktivnost po jedinici mase) u odnosu na čisti uzorak radionuklida ili, manje striktno, na slučajeve gde je radionuklid suštinski prisutan u materijalu (npr. ^{14}C u organskim materijalima, ^{235}U u prirodnom uranijumu), čak i ako se veštački promeni količina radionuklida. U ovoj upotrebi, **koncentracija aktivnosti** (koja može biti aktivnost po jedinici mase ili po jedinici zapremine)

se koristi za bilo koju drugu situaciju (npr. kada je aktivnost u obliku kontaminacije u ili na materijalu).

Uopšteno govoreći, termin **koncentracija aktivnosti** je šire primenjiv, očigledniji je po značenju i manje je verovatno od **specifične aktivnosti** da će se mešati sa nepovezanim terminima (kao što su „određene aktivnosti“ - engl. „specified activities“ - prim. autora). **Koncentracija aktivnosti** je stoga poželjnija od **specifične aktivnosti** za opštu upotrebu u publikacijama МААЕ koje se odnose na sigurnost“.

Opet, u cilju harmonizacije terminologije, bilo bi poželjno da profesionalci koji se bave ovom problematikom postignu dogovor i predlože adekvatne termine sa objašnjenjima.

U praksi ima još mnogo termina o kojima bi vredelo diskutovati kao na primer:

- jačina doze vs brzina doze - eng. *dose rate*;

- prirodni radionuklidi vs radionuklidi iz prirode - eng. *natural or naturally occurring radionuclides*;

- veštački radionuklidi vs proizvedeni radionuklidi – eng. *artificial or man-made radionuclides*.

Zaključak

U Zakonima o standardizaciji iz 1977. godine [7] i 1996. sa izmenama iz 1998, 2001. i 2003. godine [8] bilo je propisano „Jugoslovenskim standardima utvrđuju se:...termini, definicije,...“ U važećem Zakonu o standardizaciji [9] ova obaveza se ne navodi.

Prema podacima sa internet stranice www.iso.org, Međunarodna organizacija za standardizaciju (ISO) u periodu od 2015 do 2022. godine je izdala seriju od šest standarda ISO 12749 – *Nuclear energy, nuclear technologies, and radiological protection – Vocabulary*. Insistiranjem da se ovi standardi objave na srpskom jeziku uz doslednu primenu usvojenih termina može dovesti do uređenja ove oblasti.

Imajući sve navedeno u vidu, uloga profesionalnih udruženja mora biti ključna u postizanju dogovora u vezi sa terminima u upotrebi. Društvo za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore kao organizacija koja okuplja članove iz svih oblasti zaštite od zračenja treba da bude koordinator aktivnosti. U ovom radu navedeni su samo neki primeri termina čija upotreba može biti predmet usaglašavanja, ali je sigurno da takvih termina ima još i da rad na toj problematici tek predstoji.

Literatura

- [1] Leksikon mjernih jedinica, Zvonimir Jakobović, Školska knjiga Zagreb, 1981
- [2] Nuklearna energetika, Dragoslav Popović, Naučna knjiga, Beograd, 1984
- [3] IAEA Nuclear Safety and Security Glossary, 2022 (Interim) Edition, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2022
- [4] Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti, Sl. gl. RS 95/18 i 10/19, 2019
- [5] Joint Convention on the Safety of Spent Fuel Management and on the Safety of Radioactive Waste Management, INFCIRC/546, IAEA, Vienna, 1997
- [6] Zakon o potvrđivanju Zajedničke konvencije o sigurnosti upravljanja istrošenim gorivom i sigurnosti upravljanja radioaktivnim otpadom, Sl. gl. RS – Međunarodni ugovori 10/17, 2017

- [7] *Zakon o standardizaciji*, Sl. list SFRJ 38/77, 1977
- [8] *Zakon o standardizaciji*, Sl. list SRJ 30/96, 59/98, 70/01 i 8/03, 2003
- [9] *Zakon o standardizaciji*, Sl. gl. RS 36/09 i 46/15, 2015

TERMINOLOGY IN THE FIELD OF RADIATION AND NUCLEAR SAFETY AND SECURITY – CHALLENGES

Ivana AVRAMOVIĆ¹, Ivana VUKANAC², Snežana PAVLOVIĆ³

- 1) *Serbian Radiation and Nuclear Safety and Security Directorate, Belgrade*
- 2) *Vinca Institute of Nuclear Sciences, Belgrade*
- 3) *Public Company Nuclear Facilities of Serbia, Belgrade*

ABSTRACT

The issue of using professional terminology has been more apparent in recent times. One of the reasons for such occurrence is the fact that English language has been widely used on regular basis. In addition, the fact that the Serbian standards have been adopted in English language additionally contributes to deepening this issue. The use of varying terms for the same notion can be overcome by introducing the Dictionary of Professional Terminology. This paper looks into the options for several frequently used terms.

BEZBEDNOSNI IZAZOVI USLED POJAVE FALSIFIKOVANIH, LAŽNIH I SUMNJIVIH PREDMETA U LANCU NUKLEARNOG SNABDEVANJA

Mirjana ČUJIĆ¹, Mirjana RADENKOVIĆ¹, Ljiljana JANKOVIĆ MANDIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke "Vinča", Institut od nacionalnog značaja za republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd, Srbija*

Autor za korespondenciju: Mirjana ČUJIĆ, cujicm@vinca.rs

SAŽETAK

Poslednjih godina, usled ekonomske i političke nestabilnosti širom sveta, raste zabrinutost zbog moguće infiltracije falsifikovanih, lažnih i sumnjivih predmeta (FLSPa) u lanac nuklearnog snabdevanja. FLSPi ne prolaze kroz rigorozne procedure kontrole kvaliteta, koje su obavezne za legitimne artikle, tako da mogu odstupati od propisanih specifikacija. Unutar lanca nuklearnog snabdevanja, FLSP mogu umanjiti integritet opreme, sistema, struktura, komponenti ili uređaja koji doprinose nuklearnoj sigurnosti i/ili nuklearnoj bezbednosti. Nenamerno uvođenje ili zlonamerno umetanje FLSPa u nuklearni lanac snabdevanja može dovesti do pojave nuklearnog bezbednosnog događaja. Prevencija i procena rizika su od suštinskog značaja za obuzdavanje sigurnosnih posledica nezakonite trgovine, a tehnologija bi mogla da igra centralnu ulogu u praćenju, u cilju smanjenja resursa dostupnih politički motivisanim i terorističkim akterima. Zbog toga, neophodno je razviti mere za ublažavanje implikacija na nuklearnu bezbednost od FLSP koji su se infiltrirali u lanac nuklearnog snabdevanja, ili u potpunosti sprečiti njihovo uvođenje. Zahtevi za obezbeđenje kontrole kvaliteta za svaku kategoriju dobavljača i klasifikacija kvaliteta nabavljenog artikla ili usluge treba da budu deo FLSP programa i sastavni deo Integrisanog sistema menadžmenta kontrole kvaliteta. Od velike je važnosti izvršiti sveobuhvatan pregled postojećeg međunarodnog zakonodavstva i propisa koji se odnose na FLSP i sagledati proces nabavke u svetlu implikacija FLSP na nuklearnu bezbednost.

Uvod

Globalizacija i savremene tehnologije dovele su do toga da lanci snabdevanja za potrebe industrije postaju svakodnevno složeniji sve više, otvarajući pitanje sledivosti i vidljivosti proizvoda i usluga koje se razmenjuju. Falsifikovani, lažni i sumnjivi predmeti (FLSPi) izazivaju sve veću zabrinutost u nuklearnoj industriji, ali i generalno u industrijskim i komercijalnim lancima snabdevanja. Iskustvo je pokazalo da nedostatak kontrole procesa uključenih u nabavku, prijem, upotrebu i/ili odlaganje predmeta može dovesti do unošenja falsifikovanih i/ili lažnih i/ili sumnjivih predmeta u nuklearno postrojenje. Velika afera dogodila se 2012. godine u Južnoj Koreji kada su nuklearni regulatori otkrili na hiljade delova isporučenih nuklearnim elektranama sa lažnim sertifikatima kvaliteta, što je dovelo da zatvaranja tri reaktora, i milijonske novčane gubitke [1]. Međunarodna agencija za atomsku energiju ističe važnost ljudskog faktora u svetlu nuklearne bezbednosti. Efikasna kultura nuklearne bezbednosti zavisi od pravilnog planiranja, obuke, svesti, rada i održavanja, kao i od misljenja i akcija ljudi koji planiraju, upravljaju i održavaju sisteme nuklearne bezbednosti. Organizacija može biti tehnički kompetentna, a da ostane ranjiva ako zanemari ulogu ljudskog faktora. Dakle, ljudski faktor (uključujući viši nivo menadžera i lidera) je važan za efikasnu nuklearnu bezbednost [2]. Od velike je važnosti sprečavanje, rano otkrivanje i infiltracije FLSP u lanac snabdevanja u nuklearnoj industriji. S toga, u celom lancu snabdevanja u nuklearnoj industriji trebalo bi koristiti samo one proizvode i usluge koji

pokazuju najviši kvalitet koji poseduju међународно признате стандарде propisane od strane regulatornih nacionalnih i међународних agencija. Prodavci, dobavljači i nuklearna industrija moraju verifikovati kvalitet artikala u cilju obezbeđenja bezbednosti. Verifikacija uključuje opsežnu inspekciju kritičnih fizičkih karakteristika predmeta, u kombinaciji sa rigoroznim testiranjem performansi, kako bi se pružila razumna bezbednost da će delovi obavljati svoje predviđene funkcije kada se to od njih zahteva. Iako je nuklearna industrija napravila značajan napredak u obezbeđivanju objekata od sajber napada, lanac snabdevanja je i dalje ranjiv. Dobavljači koji su uključeni u nuklearnom lancu snabdevanja neophodno je da zapošljavaju odgovarajuće kvalifikovano, iskusno osoblje, koje ima ovlašćenje da isključi bilo koji FLSP u lancu snabdevanja. U ovom radu biće razmatrani proces nabavke, pretnje i ranjivost lanca snabdevanja u svetlu implikacija FLSP na nuklearnu bezbednost.

Osnovni pojmovi i међународне preporuke

Nuklearna bezbednost predstavlja sprečavanje i otkrivanje svake krađe, sabotaže, neovlašćeni pristup, nezakonit prenos (ili bilo koje drugo krivično delo) koje uključuje nuklearne, nuklearne ili radioaktivnih materijala kao i povezana postrojenja i delatnosti. Falsifikovani predmeti, su predmeti namerno proizvedeni ili prepravljani da bi imitirali legitiman proizvod bez zakonskog prava na to. Lažni predmeti, su predmeti za koje se namerno lažno predstavlja da su nešto što nisu, koji obično imaju netačnu identifikaciju ili falsifikovan/netačan sertifikat. Lažni predmeti uključuju takođe predmete koje prodaju subjekti koji su stekli zakonsko pravo da proizvedu određenu količinu predmeta, ali proizvode veću količinu od dozvoljene i prodaju višak legitimano. Sumnjivi predmeti, su oni za koje postoji indikacija vizuelnom inspekcijom, testiranjem ili drugim informacijama da možda nisu u skladu sa utvrđenim legitimnim ili industrijskim prihvaćenim specifikacijama ili nacionalnim konsenzusnim standardima. B2B je skraćenica za pojam „*business to business*“ koja se odnosi na elektronsko poslovanje, a doprinosi olakšanoj saradnji između različitih kompanija. B2B predstavlja udruženu trgovinu dve ili više kompanija, koje pomoću web-tehnologija i internet, proces kupovine i prodaje ostvaruju na jeftiniji, brži i jednostavniji način.

Proces nabavke ima ključnu ulogu „čuvara“ u cilju sprečavanju inkorporacije FSLPa u lanac snabdevanja. Nabavka je obično najčešće ulazna tačka FLSPa, pošto je odeljenje nabavke odgovorno za odabir i procenu dobavljača u upravljanju lancem snabdevanja. Dobavljači koji su u direktnoj vezi sa nuklearnom industrijom, moraju da se pridržavaju dobro utvrđenih zahteva i da imaju održiv sistem kupovine za izbor svojih dobavljača. Poslednjih godina na izgradnju i rad nuklearnih elektrana uticali su značajni problemi vezani za lanac snabdevanja. Povećana je upotreba artikala komercijalnog kvaliteta, a došlo je i do privremenih isključivanja nuklearnih elektrana zbog ugradnje falsifikovanih, lažnih ili podstandardnih artikala. U Tabeli 1. dat je prikaz relevantnih међународnih dokumenata u kojima su date preporuke i smernice u vezi FSLPa u nuklearnom lancu snabdevanja.

Tabela 5: Relevantni међународни документи за FLSP

Organizacija	Naziv dokumenta
Међународна агенција за атомску енергију (<i>Nuclear Energy Series</i>)	<i>Procurement Engineering and Supply Chain Guidelines in Support of Operation and Maintenance of Nuclear Facilities</i> (NP-T-3.21) [3]
	<i>Managing Counterfeit and Fraudulent Items in the Nuclear Industry</i> (NP-T-3.26) [4]
	<i>Industrial Involvement to Support a National Nuclear Power Programme</i> (NG-T-3.4) [5]
Међународна агенција за атомску енергију (<i>TECDOC</i>)	<i>Quality Assurance and Quality Control in Nuclear Facilities and Activities</i> (No. 1910) [6]
	<i>Use of a Graded Approach in the Application of the Management System Requirements for Facilities and Activities</i> (No. 1740) [7]
Електроенергетски истраживачки институт	<i>Plant Engineering: Guideline for the Acceptance of Commercial-Grade Items in Nuclear Safety-Related Applications</i> (NP-5652 and TR-102260) [8]
	<i>Plant Support Engineering: Counterfeit and Fraudulent Items—Mitigating the Increasing Risk</i> [9]
	<i>Plant Support Engineering: Counterfeit and Fraudulent Items—A Self Assessment Checklist</i> [10]
Агенција за нуклеарну енергију	<i>Common Position on Counterfeit, Fraudulent, and Suspect Items Procedures and Policies</i> (CP-VICWG-04) [11]
Канцеларија за нуклеарне прописе	<i>Supply Chain Management Arrangements for the Procurement of Nuclear Safety Related Items or Services</i> [12]

Методe борбе против FLSP

Да би се утврдила аутентичност производа у нуклеарном ланцу снабдевања најчешће коришћене методе су: флуоресценција X-зрака, скенирајућа електронска микроскопија, скенирајућа акустична микроскопија. Фалсификована електроника постала је водећи проблем када су у питању безбедоносни догађаји. Једна од главних пракса фалсификовања је употреба „рециклираних“ интегрисаних кола (ИК) Такви делови су првобитно били „аутентични“, али су уклоњени и продати као ново ИК и потенцијално могу да личе на аутентично ИК [13]. Како фалсификатори постају sofisticiraniji у својим процесима и методима, процес откривања постаје све изазовнији. Са циљем елиминисања FLSP потребно је да у процесу набавке буду дефинисани захтеви за обезбеђење квалитета за сваку категорију добavljaча и класификовани квалитет набављене ставке или услуге, према међународно признатим сертификатима. Америчко друштво мађинских инжењера од седамдесетих година прошлог века, у оквиру Програма сертификације организација за нуклеарни материјал, издаје сертификате организацијама које обезбеђују материјал и услуге у нуклеарној индустрији. ISO/IEC 17025 омогућава лабораторијама да покажу да раде компетентно и да генеришу валидне резултате, чиме се промовише поверење у свој рад како у земљи тако и широм света. Сврха AS6171 је да стандардизује праксе за откривање сумњивих фалсификованих електричних, електронских и електромеханичких делова и да обезбеди доследност техника испитивања и захтева у целом ланцу снабдевања. Standard AS6081 успоставља захтеве и праксе за ублажавање ризика од куповине, примања и продаје лађних/фалсификованих делова, чиме се клијентима даје поверење у сопствени ланец снабдевања. Прихватљивост електронских компоненти дистрибуираних на отвореном тржишту IDEA-STD-1010 је први и водећи стандард квалитета за визуелну инспекцију електронских компоненти и дизајниран је као технички ресурс који служи индустрији електронских компоненти у погледу откривања подstandardних и фалсификованих компоненти.

Тежња ка међународној сарадњи између регулатора, организација за техничку подршку, власника/operatora и добavljaча у ланцу снабдевања нуклеарне индустрије у циљу нуклеарне

bezbednosti preko je potrebna. U cilju suzbijanja infiltracije FSLP mogu učestvovati svi od tehničkog osoblja do vodećih menadžera i rukovodstva. Uže sagledano ciljna grupa u lancu snabdevanja su: menadžeri koji su zaduženi i učestvuju u razvoju, implementaciji i poboljšanju upravljanja lancem snabdevanja; menadžeri koji nadgledaju dobavljače; dobavljači i poddoblavljači koji su odgovorni za upravljanje lancem snabdevanja; stručnjaci iz regulatornih tela koji nadgledaju reviziju procene operatera ili upravljanja lancem snabdevanja dobavljača.

Trgovinski sporazum i sprovođenje prava intelektualne svojine sprovodi se preko različitih međunarodnih organizacija: Svetske zdravstvene organizacije, Svetske trgovinske organizacije, Svetska organizacija za intelektualnu svojinu, Međunarodna organizacija kriminalne policije, Međunarodna koalicija za borbu protiv falsifikata, i drugih. Neke od mera koje mogu dovesti do smanjenja FLSP su: promovisanje svesti o falsifikatima; stvaranje uslova za dovođenje inostrane privrede i tehnologija u borbu protiv falsifikovanja; olakšan i brz način licenciranja proizvoda i usluga; unapređenje pravosudnog sistema za borbu protiv falsifikovanja.

Ovlašćeni institut za nabavku i snabdevanje najčešće strategije koje koriste stručnjaci za nabavku u borbi protiv falsifikata podelio je u 12 kategorija [14]:

- Menadžment za odnose dobavljača i upravljanje i razvoj ugovora sa dobavljačima
- Pregled izvršenja ugovora i kontinuirano poboljšanje
- Logistika skladišta i prijem
- Dodela ugovora
- Procena tendera/ponude dobavljača
- Izdavanje ITT (Invitation to Tender) i RFP (Requests for Proposal) pregovora
- Odabir dobavljača za učešće u ITT i RFP pregovorima
- Razvoj dokumentacije, upitnik za pretkvalifikaciju i specifikaciju
- Testiranje i angažovanje tržišta pre nabavke
- Izrada strategije i plana nabavke
- Procena tržišnih i robnih opcija – uključujući procenu proizvodnje ili kupovine
- Specifikacija visokog nivoa

Zaključak

U ovom radu istaknut je značaj koje falsifikovani, lažni i sumnjivi predmeti mogu imati na nuklearnu bezbednost ukoliko se nađu unutar nuklearnog lanca snabdevanja. Prikazan je i pregled relevantnih međunarodnih preporuka i smernica u ovoj oblasti. U nastavak istraživanja fokus treba usmeriti na razumevanje izvora, učestalost i uticaj FLSP, i razviti nacrt strategije za njihovo ublažavanje.

Zahvalnica

Istraživanja u ovom radu podržano je od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju (CRP No. 26875) i Ministarstvo prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] P. Andrews-Speed. South Korea's nuclear power industry: recovering from scandal. *Journal of World Energy Law and Business*, 13, 2020, 47–57.
- [2] Nuclear Security Culture, IAEA Nuclear Security Series No. 7, Vienna, 2008.
- [3] Procurement Engineering and Supply Chain Guidelines in Support of Operation and Maintenance of Nuclear Facilities, IAEA Nuclear Energy Series NP-T-3.21, Vienna, 2016.
- [4] Managing Counterfeit and Fraudulent Items in the Nuclear Industry, IAEA Nuclear Energy Series NP-T-3.26, Vienna, 2019.
- [5] Industrial Involvement to Support a National Nuclear Power Programme, IAEA Nuclear Energy Series NG-T-3.4, Vienna, 2016.
- [6] Quality Assurance and Quality Control in Nuclear Facilities and Activities, IAEA TECDOC No. 1910, Vienna, 2020.
- [7] Use of a Graded Approach in the Application of the Management System Requirements for Facilities and Activities, IAEA TECDOC No. 1740, Vienna, 2014.
- [8] Plant Engineering: Guideline for the Acceptance of Commercial-Grade Items in Nuclear Safety-Related Applications, ERPI Technical Report NP-5652, TR-102260, CA USA, 2012.
- [9] Plant Support Engineering: Counterfeit and Fraudulent Items - Mitigating the Increasing Risk, ERPI Technical Report, NC USA, 2014.
- [10] Plant Support Engineering: Counterfeit and Fraudulent Items—A Self Assessment Checklist, ERPI Technical Report, NC USA, 2010.
- [11] Common Position on Counterfeit, Fraudulent, and Suspect Items Procedures and Policies, Vendor Inspection Cooperation Working Group (CP-VICWG-04), 2018.
- [12] Supply Chain Management Arrangements for the Procurement of Nuclear Safety Related Items or Services, ONR Technical Assessment Guide NS-TAST-GD-077, 2023.
- [13] M. Pecht. The counterfeit electronics problem. *Open Journal of Social Sciences*, 01, 2013, 12–16.
- [14] A. Ghadge, A. Duck, M. Er, N. Caldwell. Deceptive counterfeit risk in global supply chains. *Supply Chain Forum: An International Journal*, 22:2, 2021, 87-99.

SECURITY CHALLENGES DUE TO THE APPEARANCE OF COUNTERFEIT, FAKE AND SUSPICIOUS ITEMS IN THE NUCLEAR SUPPLY CHAIN

Mirjana ČUJIĆ¹, Mirjana RADENKOVIĆ¹, Ljiljana JANKOVIĆ MANDIĆ¹

- 1) *"Vinča" Institute of Nuclear Sciences, Institute of National Importance for the Republic of Serbia, University of Belgrade, Mike Petrovića Alasa 12-14, Belgrade, Serbia*

ABSTRACT

In recent years, due to economic and political instability around the world, there has been growing concern over the possible infiltration of counterfeit, fraudulent and suspect items (CFSIs) into the nuclear supply chain. CFSIs do not undergo the same rigorous quality assurance procedures as legitimate items, and deviate from prescribed specifications. Within the nuclear supply chain, CFSIs can diminish the integrity of equipment, systems, structures, components or devices that contribute to nuclear safety and/or nuclear security. The inadvertent introduction or malicious insertion of CFSIs within the nuclear supply chain could lead to the occurrence of a nuclear security event. Prevention and risk assessment are essential in containing the security consequences of illicit trade, and technology could play a central role in monitoring – with the aim of reducing the resources available to politically motivated and terrorist actors. Therefore, it is necessary to develop measures to mitigate the nuclear security implications of CFSIs that have infiltrated the nuclear supply chain, or prevent their introduction altogether. Quality Assurance requirements for each supplier category and the quality classification of the procured item or service should be part of CFSI Program as an integral part of the Integrated Management System and Quality Assurance Program. It is of great importance to make comprehensive review of existing international legislations and regulations which refers to CFSIs and to look into procurement process in the light of nuclear security implications of CFSIs.

UNAPREĐENJE REGULATORNOG OKVIRA U OBLASTI PRIMENE IZVORA ZRAČENJA U MEDICINI

Snežana ALEMPIJEVIĆ¹, Milica VUKADINOVIĆ¹, Ana STUPAR¹, Nikola ĆIRIĆ¹,
Milan VUJOVIĆ¹

1) *Direktorat za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost Srbije, Terazije 41a/IV, Beograd*

Autor za korespondenciju: Snežana ALEMPIJEVIĆ, alempijevic@srbatom.gov.rs

SAŽETAK

Važećim Zakonom i Pravilnikom o primeni izvora zračenja u medicini bliže su propisani uslovi za obavljanje radijacionih delatnosti u medicini. Pravilnik propisuje način zaštite pacijenata, vrste i načine merenja za procenu nivoa medicinskog izlaganja, parametre ispitivanja i dozvoljene granice odstupanja.

U radu su diskutovani predlozi za unapređenje regulatornog okvira u skladu sa međunarodnim standardima i preporukama međunarodnih organizacija i regulativom Evropske komisije u ovoj oblasti.

Razmatranje se odnosi na primenu izvora zračenja u medicini, uslove zaštite od zračenja pacijenata, pratilaca i negovatelja, dobrovoljaca u biomedicinskim istraživanjima, asimptomatskih pojedinaca u okviru rane detekcije bolesti i stanovništva. Analiziran je i način utvrđivanja nacionalnih dijagnostičkih referentnih nivoa i ograničenja doze, kao i utvrđivanja doza za populaciju usled medicinskog izlaganja u planiranim, neplaniranim i akcidentalnim izlaganjima u medicinskoj praksi, uzimajući u obzir godine i pol.

Uvod

Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti („Službeni glasnik RS“, br. 95/18 i 10/19, u daljem tekstu: Zakon) uspostavlja pravni okvir za regulisanje sigurnog i bezbednog korišćenja izvora jonizujućeg zračenja za obavljanje radijacione delatnosti u medicini.

Radijaciona sigurnost i bezbednost u oblasti primene izvora zračenja u medicini regulisana je podzakonskim aktima koji bliže određuju korišćenje izvora zračenja u medicini. Za korišćenje izvora zračenja potrebno je od Direktorata za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost Srbije (u daljem tekstu: Direktorat) dobiti odgovarajuće odobrenje za obavljanje radijacione delatnosti, što je u skladu sa Pravilnikom o uslovima za dobijanje licence za obavljanje radijacione delatnosti („Službeni glasnik RS“, br. 61/11, 101/16 i 50/18) i Pravilnikom o prijavljivanju namere i izdavanju odobrenja za obavljanje radijacionih delatnosti („Službeni glasnik RS“, broj 30/22). Pravilnik o primeni izvora zračenja u medicini („Službeni glasnik RS“, broj 1/12) propisuje uslove za obavljanje radijacione delatnosti, način zaštite pacijenata prilikom medicinskog izlaganja, kao i vrstu i način merenja za procenu nivoa medicinskog izlaganja jonizujućem zračenju.

Program tehničke saradnje sa Međunarodnom agencijom za atomsku energiju (u daljem tekstu: MAAE) omogućava jačanje tehničkih i kadrovskih kapaciteta svih strana u oblasti radijacione i nuklearne sigurnosti i bezbednosti. Ovaj vid saradnje ostvaruje se kroz obuke, radionice, stipendije, studijske posete, ekspertske misije i nacionalne projekte koje MAAE organizuje.

МААЕ је такође објавила бројне сигурносне захтеве и стандарде, техничке документе и друге публикације на тему регулативе, обављања делатности и савремених технологија из области радијационе и нукlearне сигурности и безбедности, које су јавно доступне.

Važeća regulativa

Osnova za uspostavljanje i održavanje radijacione sigurnosti i bezbednosti u Republici Srbiji je postojanje i implementacija regulative koja će adekvatno postaviti i obuhvatiti različite aspekte zaštite od štetnog dejstva jonizujućih zračenja.

Važeći Zakon je u značajnoj meri usklađen sa zahtevima relevantnih Direktiva Evropske unije od kojih je, u oblasti medicinskih primena izvora zračenja, bitno pomenuti Direktivu 2013/59/EURATOM, kojom se utvrđuju osnovni sigurnosni standardi za zaštitu od jonizujućeg zračenja. Stupanjem na snagu ovog Zakona, uvode se novine u polju radijacione i nuklearne sigurnosti i bezbednosti koje su doprinele uspostavljanju osnova za unapređenje postojećih i donošenje novih propisa koji će bliže propisati obaveze i odgovornosti nosilaca odobrenja u ovoj oblasti i uslove koji moraju biti ispunjeni za sigurno i bezbedno obavljanje radijacione delatnosti.

Pravilnik o uslovima za kategorizaciju radijacionih delatnosti („Službeni glasnik RS“, br. 94/19, 133/21, 30/22 i 113/22) kategorizuje radijacione delatnosti prema radijacionom riziku. U zavisnosti od radijacionog rizika, Direktorat, kao regulatorno telo, izdaje odobrenja sa različitim rokom važenja i na osnovu podnete dokumentacije različitog obima, a u skladu sa gradiranim pristupom. U slučaju radijacionih delatnosti visokog rizika – licenca za obavljanje radijacione delatnosti je sa rokom važenja od 5 godina, za radijacione delatnosti umerenog rizika – licenca za obavljanje radijacione delatnosti je sa rokom važenja od 10 godina, dok je u slučaju radijacionih delatnosti niskog rizika – rešenje o registraciji radijacionih delatnosti sa neograničenim rokom važenja. Ove novine značajno su važne sa aspekta zaštite od zračenja, kako uključuju gradirani pristup i doprinose postavljanju radijacionih delatnosti na različite nivoe u odnosu na izvor zračenja koji se koristi, izloženosti radnika, stanovništva i životne sredine, složenosti radijacione delatnosti, proceni izlaganja u normalnim uslovima i u slučaju vanrednog događaja i samog iskustva u obavljanju radijacionih delatnosti. U Tabeli 1. prikazane su kategorizovane radijacione delatnosti u medicini, stomatologiji i veterini.

Tabela 1. Kategorizacija radijacionih delatnosti

Oblast primene	Radijaciona delatnost		Kategorija
			Rizik
Medicina			
1. Dijagnostika u medicini	Korišćenje rendgen aparata	za snimanje i/ili prosvetljavanje	Umeren
		za mamografiju	Umeren
		za kompjuterizovanu tomografiju	Visok
		za osteodenzitometriju	Nizak
	Korišćenje rendgen aparata za ispitivanje <i>in vitro</i> uzoraka tkiva		Nizak
	Korišćenje otvorenih izvora u radioimunološkoj laboratoriji		Nizak
Korišćenje otvorenih izvora u nuklearnoj medicini		Visok	
2. Terapija u medicini	Korišćenje rendgen aparata	ortovoltadni rendgen aparati	Visok
	Korišćenje linearnih akceleratora		Visok
	Korišćenje zatvorenih izvora	Co-60	Visok
		Srednjedozna brahiterapija (<i>MDR</i>)	Visok
		Visokodozna brahiterapija (<i>HDR</i>)	Visok
Korišćenje otvorenih izvora u nuklearnoj medicini		Visok	
3. Interventne procedure u medicini	Korišćenje rendgen aparata		Visok
4. Ozračivanje krvnih uzoraka	Korišćenje zatvorenih izvora		Visok
Stomatologija			
5. Dijagnostika u stomatologiji	Korišćenje rendgen aparata	za intraoralno snimanje	Nizak
		za ortopantomografska snimanja	Nizak
		za ortopantomografska i <i>CBCT</i> snimanja	Umeren
Veterinarska medicina			
6. Dijagnostika u veterinarskoj medicini	Korišćenje rendgen aparata	- za snimanje i prosvetljavanje	Nizak
		- za kompjuterizovanu tomografiju	Umeren

Pravilnikom o prijavljivanju namere i izdavanju odobrenja za obavljanje radijacione delatnosti („Službeni glasnik RS“, broj 30/22) bliže se propisuju uslovi koje je korisnik dužan da ispuni za dobijanje odobrenja za obavljanje radijacione delatnosti. Ovim pravilnikom definisani su obim i sadržaj Izveštaja o sigurnosti, Programa zaštite od jonizujućih zračenja, Preliminarnog izveštaja o sigurnosti, Opisa mera radijacione sigurnosti i Plana za delovanje u slučaju vanrednog događaja. Takođe, navedene su radijacione delatnosti za koje je potrebno uspostavljanje službe zaštite od zračenja i koji su uslovi za njeno formiranje. Opisane su obaveze izloženih radnika i lica odgovornih za zaštitu od jonizujućeg zračenja u pogledu nivoa i vrste kvalifikacije, kao i obučenosti i osposobljenosti za sprovođenje mera radijacione sigurnosti.

Pravilnik o primeni izvora zračenja u medicini („Službeni glasnik RS“, broj 1/12) propisuje uslove koji moraju biti ispunjeni kako bi se radijaciona delatnost u medicini obavljala sigurno i bezbedno, uz praćenje svih preporuka i ograničenja prilikom medicinskog izlaganja radi sprovođenja dijagnostičkog ili terapijskog postupka. U pomenutom pravilniku govori se o osnovnim principima radijacione sigurnosti, opravdanosti izlaganja i optimizaciji postupka. Ograničenje doze kod pacijenata u humanoj medicini nije primenljivo, zato je bitno uspostavljanje dijagnostičkih referentnih nivoa (*Diagnostic Reference Levels*, u daljem

tekstu: *DRL*), što je osnova za donošenje novog pravilnika kojim će biti propisani *DRL* - ovi. Kako bi se adekvatno prikupile i obradile informacije neophodne za uspostavljanje nacionalnih *DRL* – ova, u planu je sprovođenje nacionalne kampanje u kojoj bi učestvovalе sve relevantne ustanove u kojima se obavlja radijaciona delatnost korišćenja izvora zračenja u medicini.

Unapređenje regulatornog okvira

U cilju unapređenja regulatornog okvira u oblasti primene izvora zračenja u medicini koriste se relevantni međunarodni standardi i preporuke, kao i direktive evropske komisije, čime se postiže bolja usaglašenost na međunarodnom nivou.

Relevantne publikacije МААЕ i internacionalni standardi u oblasti radijacione i nuklearne i sigurnosti i oblasti primene izvora zračenja u medicini koji su, između ostalog, poslužili kao odgovarajuće smernice uključuju:

- General Safety Requirements Part 3 No. GSR Part 3 „Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards”;
- Council directive 2013/59/EURATOM of laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation;
- IAEA Safety Standards Series No. SSG-46 Specific Safety Guides „Radiation Protection and Safety in Medical Uses of Ionizing Radiation”;
- IAEA Safety Reports Series No. 47 „Radiation Protection in the Design of Radiotherapy Facilities”;
- EC Radiation Protection Publication No. 154 „European Guidance on Estimating Population Doses from Medical X-Ray Procedures”;
- EC Radiation Protection Publication No. 162 „Criteria for Acceptability of Medical Radiological Equipment used in Diagnostic Radiology, Nuclear Medicine and Radiotherapy”;
- EC Radiation Protection Publication No. 174 „European Guidelines on Medical Physics Expert”;
- EC Radiation Protection Publication No. 175 „Guidelines on Radiation Protection Education and Training of Medical Professionals in the European Union”;
- EC Radiation Protection Publication No. 185 „European Guidelines on Diagnostic Reference Levels for Pediatric Imaging”;
- EC Radiation Protection Publication No. 195 „European Study on Clinical Diagnostic Reference Levels for X-ray Medical Imaging”;
- International Commission on Radiological Protection The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection;
- International Commission on Radiological Protection Diagnostic Reference Levels in Medical Imaging.

Unapređenje regulatornog okvira izradom novih, odnosno revizijom postojećih pravilnika, koji bliže određuju uslove definisane Zakonom, predstavlja proces koji mora da uključi sve zainteresovane strane. Od obrazovnih ustanova čijim se planom i programom formira odgovarajući kadar, preko relevantnih ministarstava, zatim stručnih lica iz ustanova koje vrše analize, udruženja profesija relevantnih za aktuelnu temu koja se obrađuje u predmetnom podzakonskom aktu, a zaključno sa organima nadležnim za donošenje propisa iz oblasti zdravstva.

Direktorat je nadležan za izradu i implementaciju pravilnika i nadzor nad njegovom primenom. Ovlašćena lica iz oblasti zaštite od zračenja u skladu sa svojim ovlašćenjem neposredno učestvuju u implementaciji eventualnih promena, zajedno sa nosiocima licence

koji se bave samom delatnošću. Neophodno je usmerenje na sve tri izložene kategorije, i to, pre svega medicinskog izlaganja pacijenata, zatim pratilaca i negovatelja, kao i dobrovoljaca u medicinskim istraživanjima. Neophodno je razmotriti opšte i specifične uslove za unapređenje regulatornog okvira u ovoj oblasti.

Opšti uslovi koji zahtevaju dalje razmatranje i utvrđivanje podrazumevaju primarnu odgovornost pri sprovođenju delatnosti, uz diskusiju o takozvanoj kliničkoj odgovornosti svakog pojedinačnog medicinskog izlaganja sa stanovišta opravdanosti i optimizacije konkretne radiološke prakse. Pod opštim uslovima podrazumevaju se i vrste obuka i treninga koje su neophodne. Obuke su podeljene na teorijski i praktičan deo, uz periodične obnove znanja koje, pored neophodnih uslova zaštite od zračenja podrazumevaju i kliničku upotrebu novih tehnika, opreme ili procedura u okviru predmetne radijacione delatnosti.

Specifični uslovi koje je neophodno detaljnije razmotriti su opravdanost pojedinačnog izlaganja, gde se mora uzeti u obzir konsultacija lekara specijalista, relevantni nacionalni i međunarodni standardi i uputstva, opravdanost radioloških procedura koje su deo nekog programa skrininga, opravdanost izlaganja asimptomatskih pojedinaca u cilju rane detekcije bolesti, kao i izlaganja dobrovoljaca u okviru programa biomedicinskog istraživanja. Neka od navedenih izlaganja moraju biti odobrena od strane etičkih komiteta u skladu sa specifičnom regulativom nadležnog ministarstva.

Pod specifičnim uslovima koji detaljnije moraju biti definisani podrazumevaju se optimizacija zaštite od zračenja i dozimetrija pacijenata (*dosimetry of patients*). Optimizacija zaštite treba da se osloni na pisane protokole implementacije mera zaštite, sa navedenim kriterijumima prihvatljivosti i konkretnim vrednostima ograničenja doza (u slučajevima gde je primenljivo). Dozimetrija pacijenata izvedena i dokumentovana pod adekvatnim nadzorom mora biti sprovedena u skladu sa međunarodno prihvaćenim protokolima. Dozimetrijom pacijenata neophodno je utvrditi tipične apsorbovane doze u zavisnosti od vrste delatnosti u medicini. Tipične doze utvrđene kod pacijenata u okviru dijagnostičkih radioloških procedura i interventnih procedura poredile bi se sa odgovarajućim utvrđenim dijagnostičkim referentnim nivoima relevantnim za datu proceduru. Ukoliko bi došlo do neusaglašenosti sa DRL - ovima, a da izlaganjem nije dobijena neophodna dijagnostička informacija, bila bi potrebna revizija pravilne primene principa optimizacije i primena neophodnih korektivnih mera.

Zaključak

U cilju utvrđivanja DRL - ova potrebno je napraviti akcioni plan, u smislu plana organizacije, posebnu pažnju usmeriti kreiranju upitnika i kvalitetnom sprovođenju anketa, formirati radne grupe, organizovati sastanke svih zainteresovanih strana. Neophodno je da DRL - ovi budu na nacionalnom nivou zbog regionalnih socio-ekonomskih faktora, imajući u vidu da je primena DRL - ova u korelaciji sa svim faktorima života na nekom podneblju.

Uloga i značaj utvrđivanja DRL – ova, osigurava kontinuiranu reviziju radioloških procedura i usavršavanje sistema menadžmenta medicinske prakse. Uključivanjem periodične revizije praktične primene principa opravdanosti i optimizacije, omogućeno je uspostavljanje programa kontrole kvaliteta, dizajniranog u skladu sa gradiranim pristupom na način koji osigurava uspešnu optimizaciju zaštite od zračenja i smanjuje nastajanje izlaganja u slučaju vanrednih događaja.

Literatura

- [1] Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti („Službeni glasnik RS“, br. 95/18 i 10/19).
- [2] Pravilnikom o uslovima za dobijanje licence za obavljanje radijacione delatnosti („Službeni glasnik RS“, br. 61/11, 101/16 i 50/18).
- [3] Pravilnikom o prijavljivanju namere i izdavanju odobrenja za obavljanje radijacionih delatnosti („Službeni glasnik RS“, broj 30/22).
- [4] Pravilnik o uslovima za kategorizaciju radijacionih delatnosti („Službeni glasnik RS“, br. 94/19, 133/21, 30/22 i 113/22).
- [5] Pravilnik o primeni izvora zračenja u medicini („Službeni glasnik RS“, broj 1/12).
- [6] Council directive 2013/59/EURATOM of laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation.
- [7] General Safety Requirements Part 3 No. GSR Part 3 „Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards”.
- [8] IAEA Safety Standards Series No. SSG-46 Specific Safety Guides „Radiation Protection and Safety in Medical Uses of Ionizing Radiation”.

IMPROVEMENT OF THE REGULATORY FRAMEWORK IN THE FIELD OF APPLICATION OF RADIATION SOURCES IN MEDICINE

Snežana ALEMPIJEVIĆ¹, Milica VUKADINOVIĆ¹, Ana STUPAR¹, Nikola ĆIRIĆ¹,
Milan VUJOVIĆ¹

1) *Radiation and Nuclear Safety and Security Directorate, Terazije 41a/IV, Belgrade*

ABSTRACT

The applicable Law and Rulebook on Application of Ionizing Radiation Sources in Medicine in detail prescribe the conditions for performing radiation activities in this field. The Rulebook prescribes the method of the protection of patients, types and methods of measurements for assessment of medical exposure to ionizing radiation, test parameters and limits of exposure examination parameters, allowed tolerance limits and examination intervals.

The paper discusses the proposals for improving the regulatory framework in accordance with the international standards and recommendations of the international organizations and European Commission regulations in this field.

The discussion refers to the application of radiation sources in medicine, establishing the requirements for ensuring radiation protection of patients, carers and comforters, volunteers in biomedical research, asymptomatic individuals in the early detection of disease as well as the public. This paper also includes the importance of determining national diagnostic reference levels and dose limits, as well as determining doses for the public due to medical exposure during intended, unintended and accidental exposures in medical practice, taking into account age and gender.

GENERALNA PREVENCIJA ILEGALNE TRGOVINE RADIOAKTIVNIH MATERIJALA

Slavko DIMOVIĆ¹, Milica ĆURČIĆ², Marija JANKOVIĆ¹

- 1) *Institut za nuklearne nauke Vinča – Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*
- 2) *Institut za nuklearne nauke Vinča – Institut od nacionalnog značaja za Republiku Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Laboratorija za fizičku hemiju, Mike Petrovića Alasa 12-14, Beograd*

Autor za korespondenciju: Milica ĆURČIĆ, milica.curcic@vin.bg.ac.rs

SAŽETAK

Broj pretnji od kriminalnih ili neovlašćenih radnji koje uključuju nuklearne i druge radioaktivne materijale značajno je porastao u poslednjih 30 godina. Različiti nedržavni akteri poput terorističkih organizacija i organizovanih kriminalnih grupa pokušavaju da dođu do ovog materijala u okviru permenentnih pokušaja da proizvedu oružje za masovno uništenje. Nezakonita trgovina radioaktivnim materijalima podrazumeva namerno, ilegalno kretanje radioaktivnih materijala, uključujući nuklearni materijal, radi terorističkog, političkog ili nezakonitog profita. S tim u vezi, fokus bezbednosnih napora je na sprečavanju nedozvoljene trgovine nuklearnim i drugim radioaktivnim materijalima. Borba protiv ilegalne trgovine radioaktivnim materijalima putem opšte prevencije je odgovornost svake države. Države realizuju čitav spektar bezbednosnih mera kao odgovor na pokušaje ilegalne trgovine i nenamernih kretanja radioaktivnih materijala kao deo nacionalnih aranžmana države. Otkrivanje radioaktivnih materijala na granicama predstavlja ključnu komponentu ukupne strategije kako bi se osiguralo da takvi materijali ne dođu u ruke terorističkih grupa i drugih kriminalnih organizacija.

Uvod

Ubrzani tehnološki razvoj koji prati 21. vek indukovao je brojne zloupotrebe modernih tehnologija, te u ovom procesu upotreba radioaktivnog materijala ne predstavljaju izuzetak. Različiti nedržavni akteri poput terorističkih organizacija i organizovanih kriminalnih grupa imaju intenciju da dođu u posed radioaktivnih materijala kako bi ga upotreбили u zlonamerne svrhe. Neovlašćena upotreba ovih materijala može prouzrokovati ozbiljne posledice po živote i zdravlje ljudi i dugotrajno ugroziti životnu sredinu, pa države i međunarodna zajednica ulažu velike napore u prevenciju ispoljavanja ove pretnje. Nuklearna bezbednost ima da cilj da obezbedi da nuklearni i drugi radioaktivni materijali budu zaštićeni od neovlašćenog pristupa i krađe, kao i da nuklearni objekti budu zaštićeni od pokušaja izvršenja sabotaža i terorističkih napada. Razlikuju se tri osnovne komponente nuklearne bezbednosti: fizička bezbednost (sistemi fizičke zaštite detektuju svaki neovlašćeni prodor kroz barijere, prepreke, portale i druge bezbednosne mere oko materijala i izazivaju trenutnu reakciju na takve prodore, uključujući i fizičku silu), operativna bezbednost (sistemi kontrole sprečavaju neovlašćeno kretanje materijala i obezbeđuju brzo otkrivanje krađe ili preusmeravanja materijala) i kontrola i analiza (sistem kontrole i analize materijala obezbeđuje otkrivanje neovlašćenih događaja kao što je krađa nuklearnog materijala i pruža pravovremene i tačne informacije neophodne za pronalaženje počinitelaca) [1]. Ove tri grupe aktivnosti su međuzavisne i kompatibilne i njihova realizacija treba da obezbedi generalnu prevenciju od

brojnih nedozvoljenih radnji koje mogu da ugroze nuklearnu bezbednost i time posledično bezbednost same države.

Države su odgovorne za uspostavljanje sveobuhvatnog režima fizičke zaštite, koji je suštinska komponenta nuklearnog bezbednosnog režima države, kako bi sprečile neovlašćeno uklanjanje nuklearnih materijala u vidu zaštite od krađe i drugog protivpravnog otuđivanja [2]. Međunarodna Agencija za Atomsku Energiju (eng. International Atomic Energy Agency - IAEA) identifikovala je potencijalne bezbednosne pretnje koje mogu da se ispolje u vezi sa radioaktivnim materijalima (RM): 1) proizvodnja nuklearnog oružja; 2) upotreba nuklearnog materijala za izradu improvizovane nuklearne eksplozivne naprave; 3) upotreba radioaktivnog materijala za konstruisanje radiološkog uređaja za disperziju RM i/ili 4) širenje radioaktivnosti putem sabotaze postrojenja u kojima se mogu naći nuklearni i drugi RM ili sabotaza prilikom transporta RM [3]. Reč je o prenjama čije štetne posledice su izuzetno velike, pa se izuzetno veliki naponi ulažu u pravo u prevenciju.

Kao jedno od krivičnih dela i nedozvoljenih aktivnosti koja može da ugrozi nuklearnu bezbednost izdvaja se nezakonita trgovina radioaktivnim materijalima. Pojam radioaktivni materijali (RM) koristi se kao zajednički imenitelj za čitav spektar nuklearnih i drugih radioaktivnih materijala uključujući i radioaktivne izvore i radioaktivni otpad, iako je jasno da su u ovoj grupi nuklearni materijali od primarnog interesa sa stanovišta ilegalne trgovine. Nezakonita trgovina RM se prema rečniku IAEA definiše kao „primanje, posedovanje, korišćenje, prenos ili odlaganje radioaktivnog materijala bez ovlašćenja“ [4]. Ovako formulisana definicija šira je od shvatanja koje imaju policija, carina i drugi izvršni organi. Iz tog razloga, bitno je razgraničiti upotrebu pojma, pa ilegalnu trgovinu ne treba tumačiti tako da obuhvata sve nedozvoljene događaje koji uključuju RM, jer većina njih predstavlja upravne i administrativne prekršaje koje kontrolišu i sankcionišu regulatorni organi države. Kriminalne aktivnosti koje su predmet ove definicije uključuju analizu: 1) subverzivnih aktivnosti, kao što su kršenja kontrole širenja RM; 2) druge stvarne ili potencijalne zlonamerne radnje koje imaju za cilj da nanese štetu ljudima ili ugroze životnu sredinu; 3) pribavljanje protivpravne dobiti, kao što je dobit od prodaje radioaktivnog materijala; 4) izbegavanje propisanih troškova odlaganja, odnosno relevantnih poreza; 5) kršenje transportnih propisa [4]. Na taj način, istraživanje se fokusira samo na događaje gde postoji kriminalna motivacija i namera, a isključuje se nenamerna kretanja RM preko nacionalnih granica. Jasno, kako se najčešće prava motivacija utvrđuje tek nakon što se u potpunosti istraži situacija u kojoj je pronađen RM, ova razlika je najčešće teorijska konstrukcija.

Bezbednost radioaktivnih materijala

Nuklearna bezbednost predstavlja oblast bezbednosti koja je detaljno uređena različitim kovencijama, ugovorima i standardima na međunarodnom i nacionalnom nivou, kao i vodičima za dobru praksu. Kao jedan od preduslova ispunjavanja zahteva nuklearne bezbednosti nameće se potreba izgradnje sistema obaveštavanja, razmene informacija i dobijanja ovlašćenja. S tim u vezi, Međunarodni osnovi bezbednosnih standarda [5] preciziraju obavezu obaveštavanja državnog regulatornog tela o svim aktivnostima koje uključuju RM. Kako bi se ostvarila preventivna funkcija koju ovaj standard propisuje u vezi sa sprečavanjem nenamernog kretanja i ilegalne trgovine, neophodno je uspostavljanje propisa koji jasno preciziraju da su posedovanje, skladištenje, prenos i odlaganje radioaktivnih materijala legalni samo ako je regulatorno telo obavešteno i ako je dobijeno svako potrebno odobrenje u skladu sa zakonskom regulativom koje uključuje i dobijanje licence za obavljanje radijacione i/ili nuklearne delatnosti. Regulatorni organ razvija politiku sprovođenja putem koje daje uputstva za ispravljanje neusaglašenosti sa regulatornim zahtevima. Prilikom dobijanja licenci ili ovlašćenja, regulatorno telo analizira ispunjenost

bezbednosnih i sigurnosnih standarda u skladu sa jasno definisanim procedurama, a koje su usaglašene sa potencijalnom veličinom pretnje i posledicama. Zahtev za dobijanje licence obično uključuje informacije koje su relevantne za sprečavanje i reagovanje na nenamerno kretanje i nedozvoljenu trgovinu, i to: informacije o vrstama radioaktivnih materijala i količinama koje će biti uključen tehnički opis opreme u kojoj se koriste radioaktivni materijali; informacije o vrsti delatnosti, mestu korišćenja, prirodi i lokaciji skladišta; identitete osoba odgovornih za bezbednost i sigurnost radioaktivnog materijala [4].

Kako bi se ispunili bezbednosni zahtevi u vezi sa RM, potrebno je, dakle, osigurati njihovu zaštitu od neovlašćenog pristupa, krađe ili oštećenja. Države koje slede standarde i smernice propisane od strane IAEA razvijaju infrastrukturne sisteme koje sprečavaju nenamerno kretanje i ilegalnu trgovinu RM putem realizacije čitavog spektra preventivnih aktivnosti. Mere bezbednosti podrazumevaju implementaciju pet međusobno povezanih aktivnosti: 1) nivo bezbednosti; 2) periodični inventar, 3) obaveštenje o gubitku kontrole ili krađi i zapleni, 4) praćenje usklađenosti i 5) fizička zaštita. Regulatorno telo putem propisa određuje vrstu i nivo bezbednosti koji je neophodan za upravljanje RM. Preporučljivo je da ovaj nivo bezbednosti bude usaglašen sa Kategorizacijom radijacionih izvora određenom od strane IAEA [6]. Periodični inventar podrazumeva da pravno lice vrši periodične provere RM kako bi potvrdilo da se materijali nalaze na zadatim lokacijama u tačnim količinama i da su implementirane mere bezbednosti. Ukoliko dođe do gubitka kontrole nad RM, regulatorno telo mora da bude odmah obavešteno. Ovo obaveštenje treba da uključuje informacije o RM i pratećoj opremi, opis vrste i količine, poslednju poznatu lokaciju i sve okolnosti u vezi sa gubitkom ili krađom. Praćenje usaglašenosti u kontekstu nedozvoljene trgovine RM podrazumeva tri skupa aktivnosti: inspeksijski nadzor radi provere evidencija da se RM održavaju kako je propisano, verifikacija da su gubici, potencijalni gubici kontrole ili krađa prijavljeni i periodične povratne informacije od korisnika o statusu RM. Fizička kontrola podrazumeva ispunjenost čitavog spektra mera uključujući: jasno određeno mesto za rukovanje i skladištenje; obaveštenja ili druga sredstva upozorenja koja ukazuju na prisustvo RM; indikaciju referentnih nivoa doze zračenja i kontaminacije na odgovarajući način na lokaciji i fizičke barijere, odnosno fizičko-tehnički sistem zaštite [4]. Uspešna realizacija mera prevencije ilegalne trgovine RM podrazumeva, dakle, sveobuhvatni pristup koji uključuje regulatorne i administrativne aranžmane, pa je pored proaktivne uloge regulatornog tela države značajan angažman i drugih službi. Ostvarivanje mera bezbednosti RM zahteva odgovoran pristup države i svih uključenih organa, uz apostrofiranje značaja ostvarivanja međunarodne saradnje, posebno prilikom razmene informacija.

Uloga službi bezbednosti u sprečavanju ilegalne trgovine radioaktivnih materijala

U kontekstu bezbednosti RM, prevencija podrazumeva sve mere koje regulatorno telo mora da preduzme da bi se izbegao gubitak radioaktivne materije iz ovlašćene kontrole, kao i sve odgovarajuće mere koje preduzimaju carina, policija i drugi organi za sprovođenje zakona, u cilju suzbijanja nenamernog kretanja i nedozvoljene trgovine RM [4]. Borba protiv ilegalne trgovine RM upravo otpočinje implementiranjem sveobuhvatnih mera prevencije koje obuhvataju više elemenata: 1) poštovanje međunarodnih ugovora, konvencija i sporazuma; 2) izgradnju i implementaciju nacionalnog zakonodavstva i propisa; i 3) razvoj operativnih sistema za evidenciju RM, obaveštavanje i autorizaciju izvora zračenja; fizičku zaštitu nuklearnih materijala i objekata; kontrolu izvoza/uvoza, i sprovođenje zakona i granične kontrole (7). Drugim rečima, kako bi preventivne mere bezbednosti u sprečavanju ilegalne trgovine RM bile ispunjene, neophodno je primeniti kooperativan pristup bezbednosti oslikan u saradnji i koordinaciji između nacionalnih tela i adekvatnih međunarodnih organizacija. Na nacionalnom nivou potrebno je uskladiti rad između regulatornog tela i službi bezbednosti,

uključujući policiju, carinu, sektor za vanredne situacija, HBRN timove i druge organe uključene u poslove uvoza, izvoza, transporta, komercijalne distribucije, skladištenja i odlaganja RM. Na međunarodnom nivou neophodno je razviti uspešnu saradnju i razmenu informacija između države, sa jedne strane i IAEA, Svetske carinske organizacije (SCO), Međunarodne organizacije kriminalne policije (INTERPOL) i Evropske komisije [3].

Preduslov za izgradnju uspešnog preventivnog delovanja na nacionalnom nivou oslikan je u potrebi izrade i implementacije nacionalnog programa o prevenciji nenamernog kretanja RM, a koji uključuje sve nadležne nacionalne agencije sa srodnim odgovornostima. IAEA je pružila preporuke koje za cilj imaju pospešivanje efikasne saradnje i komunikacije i koje preporučuju realizaciju niza mera: 1) uspostavljanje mreže kontaktnih tačaka; 2) podsticanje napora carinskih i policijskih službenika u sprečavanju ilegalne trgovine RM; 3) razmenu informacija između agencija, organa i službi u vezi sa ilegalnom trgovinom i gubitkom kontrole nad RM; 4) uspostavljanje pouzdane, opsežne i kontinuirano ažurirane baze podataka o slučajevima nenamernog kretanja ili ilegalne trgovine, potrebom zajedničkog protokola za prijavu i 5) usvajanje zajedničkog formata obaveštenja i izveštavanja [4].

Državama su na raspolaganju brojni modaliteti dobijanja pomoći od međunarodnih organizacija u uspostavljanju kontaktnih tačaka za razmenu informacija i stručnosti, za organizovanje i učešće na tehničkim sastancima i za podršku nacionalnim programima. Zauzvrat, države imaju obavezu obaveštavanja međunarodnih organizacija o slučajevima nenamernog kretanja, ilegalne trgovine ili zaplene RM, kako bi se ovi slučajevi evidentirali u njihovim bazama podataka o štetnim događajima u vezi sa nuklearnim i drugim RM. Baza podataka IAEA o incidentima i trgovini (IDTB) predstavlja integralnu komponentu Informacionog menadžment sistema IAEA i predstavlja primarni izvor informacija za međunarodnu zajednicu o ilegalnoj trgovini RM. IDTB sadrži verodostojne informacije dobrovoljno prijavljene od strane država učesnica preko zvanično imenovanih tačaka za kontakt i dostupne su drugim državama članicama IAEA i relevantnim međunarodnim organizacijama. Baza je podeljena na tri grupe gde Grupa I obuhvata incidente koji su ili će verovatno biti povezani sa trgovinom ili zlonamernom upotrebom; Grupu II čine incidenti neutvrđene namere; i Grupa III sadrži incidente koji nisu, ili je malo verovatno da su povezani sa ilegalnom trgovinom ili zlonamernom upotrebom [8]. Pored IDTB podatke o ilegalnoj trgovini moguće je pronaći još u dve relevantne baze: Bazi podataka o nuklearnom krijumčarenju, krađi i izvorima radijacije bez starateljstva (DSTO Database) [9] i Globalnoj bazi podataka o incidentima i ilegalnoj trgovini (CNS) [10]. Bez obzira na bogatstvo podataka koji proističu iz ovih i drugih baza, prilikom analize podataka o ilegalnoj trgovini RM mora se uzeti u obzir postojanje tzv. tamne brojke kriminaliteta, obzirom da se ne prijavljuju svi slučajevi, niti se za njih zna. Samim tim, nije moguće razmatrati podatke akumulirane tokom godina kao potpune uporedive sa realnom situacijom. U mnogim slučajevima u kojima je RM zaplenjen, nema potvrđenih odstupanja pronađenih materijala jer materijali koji su oduzeti od učinioca krivičnih dela nisu prijavljeni kao nestali u relevantnim objektima. Neke procene sugerišu da do 65 % RM koji su izgubljeni ili ukradeni nikada nisu vraćeni [11].

Kada je reč o prirodi ovog krivičnog dela, IDTB u svom rezimeu ukazuje da brojni zabeleženi incidenti ilegalne trgovine RM mogu da se okarakterišu kao „amaterski“, a pokazatelj toga jesu ad hoc planiranje i nedostatak resursa i tehničke stručnosti kod izvršilaca ovog nedozvoljenog dela. Međutim, ne treba zanemariti više identifikovanih slučajeva koji ukazuju na postojanje organizovanih, osposobljenih i obučanih počinioca sa iskustvom u ilegalnoj trgovini RM. Kako bi se olakšala generalna prevencija ilegalne trgovine RM, analizom izvršenih i otkrivenih dela izvršen je pokušaj karakterizacije izvršilaca na:

- трговци RM са злонамерном сврхом, који су такође „крајњи корисници“ материјала;
- namenski organizovane grupe, koje nastoje da dođu do takvog materijala ilegalno, privučene vrednošću prodaje RM i koje su neselektivne u pogledu toga kome će dalje prodati RM;
- oportunističke poluorganizovane grupe, koje ilegalno trguju različitim robom i koje privlači vrednost trgovine RM;
- „mule“ odnosno pojedinci koji prenose određeni paket ali nisu upoznati sa njegovim sadržajem [12].

Od karakteristika samog aktera, njegove svesti i znanja o karakteristikama RM i načinima njihove detekcije, namera koje ima po pitanju daljeg prometa RM, zavisi i modalitet izvršenja ovog krivičnog dela; dok od znanja, stručnosti i opreme zaposlenih na poslovima detekcije zavisi uspešnost otkrivanja i sprečavanja izvršenja ovog dela. U okviru mera prevencije ilegalne trgovine RM, pored izgradnje čitave infrastrukture koja za cilj ima kontrolu nad RM, veliku ulogu imaju službe bezbednosti koje primenjuju klasične mere prevencije izvršenja krivičnog dela. Ove mere se ogledaju u realizaciji četiri osnovna elementa prevencije kriminaliteta: 1) uklanjanje ili uskraćivanje mogućnosti i prilike za izvršenje zločina; 2) uklanjanje mogućnosti ili podsticaja za izvršenje zločina; 3) povećanje verovatnoće za otkrivanje dela i privođenje počinioca; 4) primena adekvatne kazne za počinioca krivičnog dela. Ovi opšti principi prevencije izvršenja krivičnog dela primenljivi su na prevenciju kriminalnih i nedozvoljenih radnji u vezi sa RM, uključujući ilegalnu trgovinu RM. Specifičnost ilegalne trgovine RM ogleda se u činjenici da se ovo delo izvodi kumulativno sa drugim nedozvoljenim delima koja mu prethode ili se odvijaju paralelno. S tim u vezi, u državama u kojima je ilegalna trgovina prepoznata kao zasebno krivično delo, generalna prevencija je jednostavnija od one koja se realizuje u državama u kojima ova nedozvoljena radnja nije kodifikovana kao krivično delo. U tom slučaju generalna prevencija mora da obuhvati i druga krivična dela i nedozvoljene radnje u vezi sa RM poput: zavera za izvršenje krivičnih dela; krivična dela mita i korupcije; provala u skladišne objekte; krađa RM; krivični nemar odgovornih za bezbedno skladištenje i sigurnost RM; napad koji izaziva telesne povrede ili bezobzirno ugrožavanje života ljudi u situacijama kada su pojedinci bili izloženi prekomernom nivou zračenja; krivična šteta nastala kontaminacijom imovine; kršenje izvoznih ili uvoznih kontrola [3].

Važan deo napora na nacionalnom nivou u prevenciji ilegalne trgovine RM predstavlja podizanje javne svesti u koju su uključene različite državne institucije poput regulatornog tela, policije, carine i tužilaštva. Način i forma podizanja svesti građana varira u skladu sa nacionalnim zakonodavstvima, s jedne strane, i nivoom bezbednosne kulture građana, sa druge strane. Objave ili izveštaji mogu da uključuju informacije o promenama u zakonodavstvu i pozivi za uzimanje učešća u javnim raspravama, informacije o sprovedenim merama prevencije i sl. Obzirom na značaj koji mediji imaju u izveštavanju i uticaj koji mogu da ostvare na formiranje diskursa u vezi sa RM, odnosno na javno mnjenje, država mora proaktivno da razvije različite medijske strategije. U slučaju bilo kog incidenta u vezi sa RM, uključujući i ilegalnu trgovinu RM, mediji će biti jedan od prvih aktera na licu mesta i tada je neophodno da uključeni državni akter primeni unapred definisanu strategiju komunikacije sa medijima. Preporuka je da medijska izjava obuhvati kratak opis okolnosti koje su se dogodile i da li su RM uključeni, kao i mere i radnje koje se preduzimaju kako bi se ta situacija rešila [13].

Veoma značajan aspekt prevencije ilegalne trgovine RM predstavlja realizacija kurseva i obuka koje obuhvataju širok spektar predavanja, praktičnih demonstracija i složenih scenarija vežbi. Svi pripadnici službi koji bi mogli da dođu u kontakt sa RM moraju da poseduju i teorijska i praktična znanja o karakteristikama RM, upotrebi lične zaštitne opreme, primeni

bezbednih mera i protokola o lancu čuvanja, pravilnim metodama identifikacije RM i dekontaminacije, hitnoj medicinskoj pomoći kao i važećem zakonodavstvu u vezi sa RM [14]. Preporuka je da države prilikom obuka koriste materijal za obuku koji su proizveli IAEA, VCO, Europol i Interpol, kako bi eventualni odgovor na pretnju ilegalne trgovine RM ili pretnji povezanih sa njima od strane više država bio kordiniran i usklađen.

Tehničke mere detekcije radioaktivnih materijala

Mere prevencije ilegalne trgovine RM zahtevaju upotrebu različite opreme za detekciju. Kako bi RM bio detektovan, neophodno je da zračenje koje emituje prvo proдре kroz kontejner, paket, vozilo ili kroz odeću osobe koja prenosi RM. Ukoliko RM emituje samo alfa zračenje ili beta zračenje niske energije, zračenje možda neće biti detektovano. S tim u vezi, može se ispoljiti modalitet izvršenja krivičnog dela ilegalne trgovine RM koji podrazumeva da izvršilac dela oblaže RM tako da nivoi zračenja izvan kontejnera budu ispod nivoa koji se može detektovati. Iz tog razloga može se ukazati potreba za dobijanjem dodatnih informacija, do kojih se dolazi upotrebom drugih metoda poput skrininga, pribavljanja obaveštajnih podataka ili putem posmatranja. Kako ne detektuju svi instrumenti sve vrste i energije zračenja, veoma je značajna procena koji RM mogu da se očekuju tokom provere, kako bi se donela odluka o vrsti detektora koji će biti korišćeni. Na primer, izvori neutrona se ne javljaju kao prirodni RM i ne koriste se radiofarmaceutskim preparatima. S tim u vezi, detekcija neutronske zračenja može se koristiti kao indikacija prisustva nuklearnih materijala, pa se neutronske detektori koriste gde postoji sumnja za otkrivanjem ilegalne trgovine nuklearnim materijalima. Prilikom korišćenja detektora postoje određeni tehnički i praktični razlozi usled kojih može da se dogodi da RM ne budu otkriveni: u slučaju kada je limit detekcije instrumenta (tj. detektora) nedovoljno nizak, tako da instrument nije u mogućnosti da detektuje izvore niske radioaktivnosti; kada je RM obložen ili na prevelikoj udaljenosti od uređaja; vreme odziva detektora može biti presporo i neusklađeno sa brzinom kojom detektor i RM prolaze jedan pored drugog; detektoru je potrebna ponovna kalibracija kako bi se osiguralo da ima adekvatan odgovor; detektor možda nije u funkciji u datom trenutku [15]. Kako bi se detektovao RM, neophodno je da pojedinci koji koriste detektore budu obučeni da ih pravilno koriste, da poseduju znanje i iskustvo o svim okolnostima u vezi sa RM koje potencijalni izvršilac ilegalne trgovine RM može da zloupotrebi i da detektor bude funkcionalan. Iako je detekcija ključna, preporučljivo je kombinovanje više metoda otkrivanja ilegalne trgovine RM, poput posmatranja, razgovora i sl. obzirom da u izvršenje ovog nedozvoljenog dela može biti uključeno stručno lice koje poznaje način rada detektora i karakteristike RM.

Postoje više vrsta opreme za detekciju zračenja. U praksi se često klasifikuju u tri grupe: dzepni instrumenti, merni instrumenti i fiksni, instalirani automatski instrumenti [15, 16]. IAEA je definisala da postoje četiri osnovna tipa opreme za detekciju radijacije: 1) stacionirani portali za detekciju radioaktivnosti (detektori gama zračenja i obično detektori neutrona); 2) lični elektronski dozimetri; 3) ručni detektori gama i neutrona (detektori zračenja koji se koriste za identifikaciju lokacije radioaktivnog materijala) i 4) ručni detektori radionuklida (detektori zračenja koji se koriste za identifikaciju jer mogu analizirati energetske spektar koji emitira radionuklid) [3].

Svi pomenuti instrumenti za detekciju zračenja treba da ispune određenu funkciju, pa data funkcija takođe predstavlja faktor prilikom izbora određenog instrumenta. IAEA je kroz svoja uputstva ove funkcije detektora sumirala na sledeći način:

- detekcija - funkcija instrumenta ogleda se isključivo u alarmiranju ukoliko je određeni nivo zračenja premašen. Na mestima gde je moguće usmeriti saobraćaj robe, vozila ili

Ljudi u uske granice poznate kao čvorne tačke, stacionarni portali su poželjna opcija. Lični i ručni detektori koriste se u široko rasprostranjenim područjima kao što su aerodromi ili morske luke. Ručni instrumenti su obično i skuplji, pa se uglavnom koriste za detekciju u ciljanim situacijama poput one kada već postoji osnovana sumnja da je u toku ilegalna trgovina RM, od strane obaveštajnih izvora;

- verifikacija - svaka detekcija mora biti verifikovana da bi se isključila mogućnost ispoljavanja lažnih alarma. Verifikacija podrazumeva ponavljanje procesa merenja za potvrdu početne indikacije polja zračenja;
- procena i lokalizacija – nakon što je detekcija RM verifikovana, potrebno je lokalizovati poreklo signala zračenja. U ovom trenutku biće potrebna procena radijacione sigurnosti kako bi se obezbedila sigurnost službenika i javnosti. Pored toga, radijaciona procena će odrediti da li odgovor treba da bude operativni, taktički ili strateški;
- identifikacija – putem određivanja vrste zračenja i energije omogućava se identifikacija radionuklida. Identifikacija radionuklida pomaže da se priroda događaja kategoriše kao nenamerno kretanje, nezakonita trgovina ili lažni alarm. Takođe, može pružiti neke informacije o prethodnoj upotrebi i vlasništvu RM, iako je ovu vrstu analize najbolje uraditi kasnije u laboratoriji za zaplenjeni materijal [15].

Modalitete izvršenja ilegalne trgovine RM uslovno možemo da podelimo u tri situacije: pokušaj da pojedinac prenese RM, pokušaj da se RM preveze i pokušaj da se RM pošalje poštom. Kada je reč o prve dve situacije, zajedničko je fizičko prisustvo osobe koja pokušava ilegalnu trgovinu RM, međutim procedura verifikacije alarma na portalu razlikuje se u zavisnosti da li je alarm uzrokovan od strane pojedinca ili vozila. Dakle, monitori za pešake dizajnirani su da detektuju prisustvo RM koji pešaci nose dok prolaze između ili blizu detektora zračenja. Monitori za pešake mogu biti dizajnirani kao sistemi stubova sa jednim ili dva detektora. Shodno okruženju u kojem se postavljaju zavise i određene tehničke okolnosti, pa je potrebno postaviti barijere koje ograničavaju kretanje pešaka na način da svaki pojedinac prođe u krugu od najmanje 1,5 m od stuba. U slučaju da je razdaljina veća, neophodno je instalirati dvostruke stubove. Takođe, važno je postaviti portal detektor dalje od teških vrata, (zaštitnih vrata), koja mogu izazvati nastanak lažnih alarma, odnosno lažnih signala. U ovom slučaju, ukoliko detektor nije na adekvatnoj udaljenosti od zaštitnih vrata može doći do povećane fluktuacije pozadinskog zračenja i time se mogu proizvesti lažni signali. Pored navedenog, i neophodno je sprečiti kretanje drugih ljudi u blizini portala koji bi mogli da izazovu alarm [17].

IAEA je propisala generalnu proceduru u postupanju prilikom verifikacije alarma u slučaju kretanja i pešaka i vozila. U slučaju da se alarm oglasio usled prolaska pojedinca/pešaka kroz portal, od pojedinca se zahteva da prođe kroz portal još jednom kako bi se eliminisao lažni alarm. Međutim, ako se alarm ponovi, od lica koje je izazvalo alarm potrebno je odvojiti predmete koje nosi. Detekcija se nastavlja upotrebom ručnog detektora za pretragu gama i neutronskog zračenja kako bi se utvrdio nivo zračenja. Ukoliko je nivo zračenja veći od 0,1 mSv/h na udaljenosti od 1 m, onda se izvor ovog zračenja mora odmah ukloniti sa osobe i izolovati. Ako je nivo zračenja ispod 0,1 mSv/h, potrebno je izvršiti skeniranje površine pojedinca i predmeta pomoću ručnog detektora zračenja. U situaciji u kojoj se utvrdi da je izvor zračenja u nekom od predmeta koji se prenose, treba voditi računa da osoba ne nosi eksplozivnu napravu ili je skriva u svojim stvarima. Kada je lociran izvor zračenja, neophodno je izvršiti njegovu identifikaciju korišćenjem ručnog uređaja za identifikaciju radionuklida. Ukoliko se u bilo kom trenutku istrage potvrdi neutronski alarm bilo kojim od instrumenata za zračenje, što može biti zasnovano na prisustvu nuklearnog materijala, treba zatražiti stručnu pomoć. Najčešći alarmi na monitorima su oni izazvani ambulantskim

pacijentima koji su bili na izloženi radionuklidima koji se primenjuju u nuklearnoj medicini (I-131, Tl-201 i Tc-99m) [3]. Treba imati u vidu mogućnost da je pešak pokušao da obloži RM u svom prtljagu, pa je detekcija najefikasnija kada se detektori zračenja koriste u kombinaciji sa sistemima za detekciju metala ili rengen uređajima, koji će da detektuju prisustvo zaštitnog materijala.

Portali koji se koriste za detekciju RM u vozilima treba da se sastoje iz dva simetrično pozicionirana stuba koja je nalaze na maksimalnom rastojanju od 6 m. Osetljivost portala uslovljena je udaljenošću RM od detektora i brzine prolaska vozila. Važno je da barijere koje se postavljaju u svrhu zaštite monitora od slučajnog oštećenja od strane vozila ne blokiraju ili ometaju njihov rad [17]. Ukoliko prolazak vozila kroz portal za zračenje rezultira pojavom alarma, vozilo mora biti uklonjeno iz daljeg saobraćaja, odnosno zaustavljen njegov ulazak ili izlazak iz štice zone. Ukoliko je moguće, vozilo bi trebalo ponovo da prođe kroz isti portal kako bi se utvrdilo da li je alarm ispravan. Ako se potvrdi alarm, vozač i putnici moraju da napuste vozilo kako bi bili skenirani odvojeno i tada se vrši radijacioni pregled putnika i vozila. Nadalje je procedura identična kao u slučaju pregleda pojedinaca koji je pešak. Kada je reč o kamionskom prevozu i teretnim kontejnerima, najčešći alarmi su uzrokovani velikim količinama prirodnog radioaktivnog materijala. Na primer, poznato je da velike pošiljke đubriva, poljoprivrednih proizvoda, duvanskih proizvoda, nekih rudarskih ruda, porcelana i drveta izazivaju lažne alarme. Međutim, ovi signali zračenja su uglavnom ravnomerno raspoređeni kroz teret i tako se ova situacija razlikuje od pokušaja krijumčarenja RM, gde je signal izolovan [3].

Obzirom da svega nekoliko poštanskih operatera dozvoljava slanje malih količina RM za medicinsku upotrebu, pojava RM u sistemu javne pošte bi trebalo da je retka pojava. Međutim, IAEA ne isključuje u potpunosti mogućnost ilegalne trgovine RM (posebno uranijuma i plutonijuma) korišćenjem sistema javne pošte. Scenariji koji uključuju nedozvoljenu trgovinu RM javnom poštom mogu da se sumiraju na sledeći način: 1) slanje pošiljke koja nije etiketirana; 2) netačna transportna dokumentacija; 3) ilegalna trgovina RM; 4) zlonamerne radnje tokom kojih se koristi RM u javnoj pošti. Mere prevencije ilegalne trgovine RM putem sistema pošte uključuju slične sisteme i procedure koji se koriste u okviru graničnih kontrola ljudi, vozila i robe, a koji su modifikovani za nadzor pošte i pošiljki. Kako bi se suzbila ilegalna trgovina RM putem pošte, potrebno je koristiti neki, a često i više metoda monitoringa: 1) monitoring vozila (kamion, kolica ili kontejner); 2) monitoring pojedinačnih poštanskih pošiljki (pismo, paket i poštanska torba); 3) kombinovano nadgledanje vozila i pojedinačnih pošiljki; 4) monitoring od strane poštanskih radnika koji koriste ručne detektore [18]. Iako je preporučljiva primena više pomenutih metoda monitoringa, kao i što je u slučaju javljanja alarma preporučljiva primena više detektora sa različitim funkcijama, odluka koja metoda ili kombinacija metoda monitoringa će biti primenjena, najčešće se bazira na balansu između osetljivosti na detekciju RM, troškova opreme za detekciju i operativnih procedura potrebnih za reagovanje na alarm. Značajan faktor u odabiru detektora i metoda za detekciju nalazi se u činjenici da je oprema za nadzor skuplja kod sistema koji koriste veće detektore sa većom osetljivošću.

Strategija detekcije radioaktivnih materijala na graničnim prelazima

Svaka država definiše strategiju sprečavanja širenja oružija za masovno uništenje (OMU) i politiku neproliferacije OMU. S tim u vezi, države projektuju mere nuklearne bezbednosti zasnovane na procenjenoj opasnosti od kriminalnih ili neovlašćenih radnji ili nenamernog kretanja RM. Na osnovu procenjene verovatnoće ispoljavanja pretnje ilegalne trgovine RM, definišu se strategije detekcije koje variraju od situacije gde se detekcija zračenja vrši samo u slučaju konkretnog događaja zasnovanom na podacima koji potiču najčešće od službi

bezbednosti do situacija gde je prisutan visok nivo procenjene pretnje, pa se svi granični prelazi, pomorske luke i aerodromi proveravaju primenom fiksnih portala. Zapravo, bezbednosna procena verovatnoće ispoljavanja ove pretnje određuje broj i vrstu opreme i lokacije na kojima će se nalaziti, kao i broj obučених profesionalaca koji će opremu koristiti. Pored opreme za detekciju koja se nalazi na ulazima/izlazima nuklearnih postrojenja, ona se često nalazi i na ulazima u objekte kritične infrastrukture, kako bi se pravovremeno sprečilo njihovo unošenje u ove objekte. U kontekstu sprečavanja ilegalne trgovine RM, posebno je značajno sprečavanje prekograničnog kretanja ovih materijala, pa se posebna pažnja posvećuje razvoju strategija prevencije na graničnim prelazima. IAEA je odredila neke od faktora koji se mogu koristiti kao parametri prilikom formulisanja strategija u detekciji:

- vrsta i količina RM koji se otkriva;
- broj graničnih prelaza, pomorskih luka i aerodroma;
- obučеност službi bezbednosti za primenu mera detekcije i korišćenje opreme za detekciju;
- frekvencija i vrsta saobraćaja na graničnim prelazima;
- frekvencija domaćег saobraćaja između objekata koji koriste i skladište RM;
- broj otkrivenih i procesuiranih slučajeva ilegalne trgovine RM u datoj državi, kao i u zemljama u neposrednom okruženju;
- finansijske implikacije različitih opcija politike [3].

U kombinaciji sa obaveštajnim podacim koji se dobijaju od službi bezbednosti, navedeni faktori mogu da se označe kao najznačajniji u definisanju strategija granične kontrole ilegalnog kretanja RM. Svakako, u daljoj implementaciji strategije potrebno je obratiti pažnju na brojne druge faktore koji mogu uticati na detekciju poput faktora okoline, gde određene radiofrekvencije ili ekstremni vremenski uslovi mogu uzrokovati da oprema za detekciju bude privremeno ili trajno neupotrebljiva. Specifičnost detekcije RM ogleda se i u procedurama postupanja koje nastupaju nakon oglašavanja alarma, odnosno preduzimanja svih potrebnih mera detekcije i dobijanja potvrde da je reč o nedozvoljenom kretanju RM. Ukoliko se oglasi alarm, potrebno je pristupiti verifikaciji da li je reč o lažnom alarmu (alarmu koji nastupa usled električnog ili drugog kvara opreme, smetnjama u radio frekvencijama u blizini i sl.), nevinom alarmu (potvrđeno povećanje radijacije koje je uzrokovano legalnim okolnostima, poput potvrđenog prisustvu radionukleotida kod lica koja su bila na lečenju) ili potvrđenom alarmu (alarm uzrokovan nelegalnim aktivnostima) [3]. Najvažniji ciljevi pružanja odgovora na postojanje sumnje da je reč o ilegalnoj trgovini RM ogledaju se u tome da se svede na minimum potencijalna opasnost po zdravlje ljudi i životnu sredinu, da se RM stave pod odgovarajuću kontrolu i da se prikupe svi relevantni dokazi za dalje krivično gonjenje prestupnika [13]. Eventualno, kao četvrti korak može se javiti potreba primene neke od medijskih strategija. IAEA razlikuje dve vrste pružanja odgovora na pretnju nedozvoljenog kretanja RM materijala - proaktivan i reaktivan odgovor. Proaktivan odgovor razlikuje se od reaktivnog prema tome što otpočinje informacijama koje zahtevaju dalju procenu. U zavisnosti od autentičnosti obaveštajnih podataka ili procenjene verodostojnosti drugih izvora informacija, zaposleni na poslovima detekcije mogu i ne moraju da budu uključeni u odgovor [13]. Najčešće situacije koje zahtevaju proaktivan odgovor uključuju situacije kada se uoči neslaganje u inventaru RM; dobijanje informacije koje ukazuju na ilegalnu trgovinu RM, indicije o postojanju radijacione bolesti i druge indikacije postojanja radijacije neutvrđenog porekla [3].

Reaktivan odgovor podrazumeva detekciju ilegalne trgovine RM i potrebu za pružanjem trenutnog odgovora. S tim u vezi, realizuje se niz jasno definisanih koraka: 1) strateška procena potrebe za nadzorom nad graničnim prelazima; 2) izbor instrumenata; 3) određivanje

nivoa istrage i podešavanja alarma instrumenta; 4) procena alarma i odgovarajući odgovor, verifikovanje i lokalizacija RM; i 5) procena svih pronađenih RM [15]. Zapravo, pružanje odgovora uključuje niz aktivnosti koje je potrebno realizovati: detekciju, potvrđivanje, identifikaciju, procenu situacije i preduzimanje odgovarajućih koraka za zaštitu zdravlja stanovništva i obezbeđivanje materijala. Kada se aktivira alarm, kao rezultat detekcije RM, zaposleni koji je detektovao prisustvo RM treba da prijavi nadređenom pružajući sledeće informacije:

- merenja radijacije;
- prisustvo paketa sa simbolima upozorenja o zračenju;
- vrsta pakovanja nuklearnog ili drugog RM;
- stanje pakovanja (da li izgleda oštećeno ili razbijeno);
- svaku oznaku ili informaciju koja može da ukaže na prirodu suspektnog nuklearnog ili drugog RM;
- činjenica da ne postoji lako uočljiv razlog za uzbunu [3].

U slučaju da se utvrdi prisustvo RM na graničnom prelazu, često je zaposlenima u graničnoj policiji potrebna stručna pomoć u daljem postupanju, kako bi se izbegle potencijalne greške, poput pogrešne karakterizacije RM ili drugih pogrešno izvedenih zaključaka. Kako bi se predupredila uspešna ilegalna trgovina RM kao posledica neznanja zaposlenih na graničnim prelazima, procedurama se jasno definiše koga granična policija u tom slučaju kontaktira od eksperata iz oblasti radijacione sigurnosti i bezbednosti. IAEA takođe daje preporuku da svaka država uspostavi jedan ili više mobilnih timova za podršku (eng. mobile expert support team – MEST). MEST bi trebalo da čine profesionalci opremljeni i obučeni za korišćenje instrumenata za detekciju zračenja i obavljanje jednostavnijih zadataka proene. Takođe, u članove ovog tima bi trebalo da budu forenzičari koji su obučeni za izvršavanje zadatake upravljanja mestom zločina i klasične forenzičke nauke. Glavna uloga MEST-a prilikom otkrivanja RM jeste da pruži blagovremenu stručnu pomoć, poput situacija gde je kod pojedinca detektovana doza medicinskog radionuklida iznad nacionalno dozvoljene granice, ili lice poseduje neispravnu dokumentaciju; kada se otkriju i potvrde neutroni; prirodni izvori radioaktivnosti (eng. Naturally Occurring Radioactive Material - NORM) u pošiljci sa dozom/aktivnošću koja prelazi nacionalno dozvoljene granice; transport RM bez otpremnih dokumenata ili netačno označeni RM, detektovana doza $> 0,1$ mSv/h na udaljenosti od 1 m [3]. Ukoliko ozbiljnost situacije prevazilazi kapacitete države u pružanju odgovora, države mogu da zatraže međunarodnu podršku putem kontaktiranja IAEA.

Zaključak

Ilegalna trgovina RM predstavlja kompleksan bezbednosni problem oslikan prevashodno u postojanju velike opasnosti od posledica zlonamerne upotrebe, niza nedozvoljenih radnji koje su uključene u njegovo ispoljavanje, specifične motivacije većeg broja aktera za izvršenje ovog dela i metoda otkrivanja i dokazivanja ovog dela. Veličina i obim potencijalne opasnosti od zlonamerne upotrebe RM ukazuju da je generalna prevencija ilegalne trgovine RM fokalna tačka ka kojoj su usmereni naponi nacionalnih tela i međunarodnih organizacija. Na osnovu procenjenjene verovatnoće ispoljavanja ilegalne trgovine RM, države formulišu i implementiraju strategije detekcije koje su usmerene ka izgradnji i jačanju nacionalne infrastrukture u sferi detekcije RM i adekvatnoj obuci i osposobljavanju zaposlenih na poslovima detekcije. Neophodna je i dodatna edukacija granične policije. Početnu tačku u uspostavljanju strategije detekcije, ali i učinkovitih i realnih mera prevencije predstavlja izgradnja i unapređenje nacionalnog zakonskog okvira koje mora da bude usklađeno sa međunarodnom regulativom. Takođe, međunarodna saradnja između relevantnih institucija mora kontinuirano da se unapređuje, kako tokom redovnih aktivnosti poput razmene

informacija, obuke i osposobljavanja, izrade zakonskih akata, tako i u vanrednim situacijama kada država može da zatraži međunarodnu pomoć. Podizanje svesti i unapređenje bezbednosne i sigurnosne kulture kontinuirano prati i prožima sve mere generalne prevencije ilegalne trgovine RM, ali stvara i dobru osnovu za implementaciju srodnih mera prevencije i pospešivanje kapaciteta za reagovanje u kontekstu drugih opasnosti i prednji koje uključuju RM. Značajnu ulogu u generalnoj prevenciji imaju i rezultati multidisciplinarnih naučnih istraživanja, pa buduća istraživanja iz ove oblasti treba da se fokusiraju na analizu zakonskog okvira država iz ove oblasti, pojedinačnih kapaciteta za reagovanje i postojeće infrastrukture, kao i modela međuinstitucionalne i međudržavne saradnje. Ovakva istraživanja posebno će biti značajna i za Republiku Srbiju, kao državu koja se nalazi u specifičnoj geopolitičkoj poziciji i koja je izložena različitim bezbednosnim pretnjama povezanim sa radioaktivnim materijalima.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo nauke tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev. br. 451-03-47/2023-01/200017).

Literatura

- [1] National Research Council. Strengthening Long-Term Nuclear Security: Protecting Weapon-Usable Material in Russia. Washington, DC: The National Academies Press. 2006. <https://doi.org/10.17226/11377>.
- [2] Nuclear Security Recommendations on Physical Protection of Nuclear Material and Nuclear Facilities, IAEA, Vienna, 2011.
- [3] Combating Illicit Trafficking in Nuclear and other Radioactive Material. IAEA Nuclear Security Series No. 6, IAEA, Vienna, 2007
- [4] Prevention of the Inadvertent Movement and Illicit Trafficking of Radioactive Materials, IAEA, Vienna, 2002.
- [5] Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards, General Safety Requirements, IAEA, Vienna, 2014.
- [6] Categorization of Radioactive Sources Revision of IAEA-TECDOC-1191, IAEA, Vienna, 2003.
- [7] N. Zarimpas. The Illicit Traffic in Nuclear and Radioactive materials. In: SIPRI Yearbook 2001: Armaments, Disarmament and International Security, 2001.
- [8] IAEA Incident and Trafficking Database (ITDB), IAEA, Internet: <https://www.iaea.org/sites/default/files/22/01/itdb-factsheet.pdf>
- [9] DSTO Database: Database on Nuclear Smuggling, Theft, and Orphan Radiation Sources. Internet: <https://uni-salzburg.elsevierpure.com/en/activities/dsto-database-database-on-nuclear-smuggling-theft-and-orphan-radi>
- [10] The CNS Global Incidents and Trafficking Database. Internet: <https://www.nti.org/analysis/resource-collections/the-cns-global-incidents-and-trafficking-database/>
- [11] G. I Balatsky, W. R. Severe, Illicit Trafficking of Radioactive and Nuclear Materials. Nuclear Safeguards, Security, and Nonproliferation, 357–387, 2019

- [12] Illicit Trafficking of Nuclear and other Radioactive Material The Legislative Response. Arms Control and Disarmament/National Implementation Measures Programmes. Verification Research, Training and Information Centre – VERTiC, 2012.
- [13] Response to Events Involving the Inadvertent Movement or Illicit Trafficking of Radioactive Materials. IAEA, Vienna, 2002.
- [14] Tasić, G., Ćurčić, M., Lazović, I., The role of CBRN live agent training in education of first responders. Kesić, T. (Ed.) XI International scientific conference "Archibald Reiss Days", Thematic conference proceedings of international significance. (pp. 379-390). Belgrade: University of Criminal Investigation and Police Studies, 2021.
- [15] Detection of Radioactive Materials at Borders. IAEA, Vienna, 2002.
- [16] R. Benderać, Z. Vejnović, A. Žigić. Aktivnosti na polju borbe protiv ilegalne trgovine radioaktivnim materijalima u Republici Srbiji, Zbornik radova XXIII Simpozijuma DZZSCG Donji Milanovac 26 – 28. septembar, 2005.
- [17] Technical and Functional Specifications for Border Monitoring Equipment. IAEA, Vienna, 2006.
- [18] Monitoring for Radioactive Material in International Mail Transported by Public Postal Operators. IAEA, Vienna, 2006.

GENERAL PREVENTION OF RADIOACTIVE MATERIALS ILLICIT TRAFFICKING

Slavko DIMOVIĆ¹, Milica ĆURČIĆ², Marija JANKOVIĆ¹

- 1) *Vinca Institute of Nuclear Sciences - National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Radiation and Environmental Protection, Mike Petrović Alasa 12-14, Belgrade*
- 2) *Vinca Institute of Nuclear Sciences - National Institute of the Republic of Serbia, University of Belgrade, Department of Physical Chemistry, Mike Petrović Alasa 12-14, Belgrade*

ABSTRACT

Studies have shown that threats of criminal or unauthorized acts involving nuclear and other radioactive materials have increased significantly in the last 30 years. Numerous non-state actors as terrorist groups have permanently tried to acquire this material as a part of their attempts to produce a weapon of mass destruction. Deliberate, illegal movements of radioactive materials, including nuclear material, for terrorist, political, or illegal profit is generally understood to be illicit trafficking. In this regard, the focus of security efforts is on the prevention of illicit trafficking of nuclear and other radioactive materials. Combating illicit trafficking of radioactive materials through general prevention is the responsibility of each State. There are a number of response measures to the illicit trafficking and inadvertent movements as part of a State's national arrangements. Detection of radioactive materials at borders is an essential component of an overall strategy to ensure that such materials do not fall into the hands of terrorist groups and other criminal organizations that could supply them.

НЕЈОНИЗУЈУЋА ЗРАЧЕЊА
NON-IONIZING RADIATION

UTICAJ EVOLUCIJE MOBILNIH TEHNOLOGIJA NA IZLAGANJE LJUDI EM POLJIMA

Nebojša KRSTIĆ¹, Zoltan NAĐ¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹,
Sofija FORKAPIĆ¹

1) *Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Departman za fiziku, Trg
Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*

Autor za korespondenciju: Nebojša KRSTIĆ, nebojsa.krstic@df.uns.ac.rs

SAŽETAK

U ovom radu bavimo se evolucijom mobilnih komunikacija, od njihove prve generacije 1G do najnovije 5G i uticajem evolucije mobilnih tehnologija na izlaganje ljudi elektromagnetnim (EM) poljima. Rastući zahtevi korisnika za visokokvalitetnim telekomunikacionim servisima doveli su do intenzivnog razvoja sistema za bežične komunikacije. Kako je uvođenje pete generacije (5G) mobilnih telekomunikacija uveliko u toku, potrebne su standardizovane metode za procenu izloženosti ljudi radiofrekventnim elektromagnetnim poljima sa radio baznih stanica 5G. Uvođenje novih izvora emisije, koji rade paralelno sa već postojećim 2G/3G/4G mobilnim tehnologijama, izaziva zabrinutost oko prekoračenja dozvoljenih granica izloženosti EM polja. Ovaj rad analizira pitanja i izazove u vezi sa merenjem EM polja, koji su ključni za procenu usklađenosti EM polja sa regulatornim ograničenjima. Prikazani su i diskutovani rezultati verifikacije i implementacije nove verzije standardne metode SRPS EN IEC 62232:2022 za određivanje jačine RF polja, gustine snage i SAR u blizini radiokomunikacionih baznih stanica radi procene izloženosti ljudi.

Uvod

Od svog razvoja tehnologija mobilne komunikacije je doživela pet generacija promena od 1G (~ 1980), 2G (~ 1990), 3G (~ 2000), 4G (~ 2010) do 5G (~ 2020). Razvoj svake nove generacije doneo je masovniju primenu mobilnih uređaja, poboljšanu i veću prisutnost komunikacijama, nove usluge, kao i efikasno povezivanje digitalnog i fizičkog sveta. Posledica naglog razvoja komunikacione tehnologije je veći broj baznih stanica mobilne telefonije u životnoj sredini. Potreba korisnika za sve većim brzinama prenosa podataka i kvalitetom servisa uslovljava mobilne operatore da i dalje unapređuju postojeće mreže. Jedan od glavnih ciljeva kod dizajna mobilnih komunikacionih tehnologija je da se ponude veće brzine, niže kašnjenje i/ili masivna povezanost većeg broja korisnika/uređaja uz smanjenja potrošnje energije. Nove bežične tehnologije postaju sve energetski efikasnije, tako da se mnogo više snage troši u starijim generacijama mobilnih mreža u poređenju sa novijim, za prenos iste količine podataka. S obzirom da nejonizujuće zračenje ima kumulativni karakter ono mora biti svedeno na najmanju moguću meru. Zabrinutost zbog zračenja koje uzrokuju bežični komunikacioni sistemi ne dolazi samo od baznih stanica, nego i od korisničkih mobilnih uređaja. Odgovor na pitanje kako se zaštititi od prekomernih izlaganja ovom zračenju će vremenom sve više dobijati na značaju. Prema podacima Republičkog zavoda za statistiku 95,5% (2021. godina) stanovništva u Srbiji koristi mobilni telefon. Što se tiče internet konekcije oko 71% korisnika internetu pristupa putem mobilnih uređaja (telefon ili tablet) i to je najzastupljeniji tip konekcije koji svake godine beleži porast. Rezultati istraživanja UNICEF-a pokazuju da učenici provode na internetu, u proseku, više od 3 sata dnevno, najstariji i do 4 i po sata, dok dve trećine njih vikendom provodi između 4 i 7 sati. Internet se, primarno koristi za zabavu i komuniciranje sa drugim ljudima. Izlaganje nejonizujućem

зрачењу koje stvaraju bazne stanice mobilnih komunikacija se utvrđuje merenjem EM polja, koji su ključni za procenu usklađenosti EM polja sa regulatornim ograničenjima. Međutim, izlaganje nejonizujućem zračenju koje stvaraju mobilni uređaji je teže proceniti jer će varirati u zavisnosti od lokacije korisnika koji komuniciraju i od njihove upotrebe, tipa mobilnog uređaja, kvaliteta veze itd. U nastavku rada se govori o evoluciji mobilnih tehnologija i njihovim karakteristikama. Takođe, na primeru su predstavljeni rezultati merenja kontrolnih i referentnih signala i procena maksimalnog EM polja na mernom mestu za svaku tehnologiju posebno. Prikazan je odnos minimalnog i maksimalnog EM polja u zavisnosti od posmatrane tehnologije. Minimalno EM polje se podrazumeva kada nema nikakvog saobraćaja na baznoj stanici, npr. u noćnim satima, dok maksimalno EM polje podrazumeva maksimalan saobraćaj tokom dnevnih aktivnosti.

Metode ispitivanja EM polja u okolini baznih stanica

Da bi se proverila ograničenja izlaganju elektromagnetnim poljima, definisana Pravilnikom o granicama izlaganja nejonizujućim zračenjima, u okolini baznih stanica sprovode se merenja EM polja u zoni dalekog polja tako da je dovoljno meriti samo intenzitet električnog polja E ili samo intenzitet magnetnog polja H . Zahtev međunarodnog standarda [3] je da se merenja sprovode kada bazna stanica radi sa maksimalnom predajnom snagom. S obzirom da je predajna snaga promenljiva u vremenu i zavisi od opterećenja bazne stanice saobraćajem korisnika, procena maksimalnog polja se vrši ekstrapolacijom izmerenih signala koji se emituju konstantnom predajnom snagom.

Kod GSM sistema signal koji se emituje konstantnom predajnom snagom naziva se kontrolni kanal (BCCH - Broadcast Control Channel), dok se ostali saobraćajni kanali (TCH - Traffic Channel) aktiviraju samo kada postoji potreba. Prilikom merenja intenziteta električnog polja GSM sistema potrebno je izmeriti intenzitet električnog polja kontrolnih kanala EBCCH za svaki sektor bazne stanice. Za slučaj maksimalnog saobraćaja, maksimalni intenzitet električnog polja E_{MAX} određuje se pomoću formule:

$$(1) \quad E_{MAX} = \sqrt{n_{TRX}} * E_{BCCH}$$

gde je n_{TRX} ukupan broj predajnika u sektoru.

Kod UMTS sistema, na svakom radio-kanalu bazne stanice postoji jedan stalno aktivan kontrolni kanal (CPICH - Common Pilot Channel), koji se emituje sa konstantnom snagom. Potrebno je izmeriti intenzitet električnog polja ECPICH za svaki detektovani CPICH pomoću mernog instrumenta koji ima mogućnost dekodovanja UMTS signala. Za slučaj maksimalnog saobraćaja, maksimalni intenzitet električnog polja E_{MAX} određuje se pomoću formule:

$$(2) \quad E_{MAX} = \sqrt{n_{CPICH}} * E_{CPICH}$$

gde je n_{CPICH} odnos između maksimalne snage i snage dodeljene CPICH kanalu. Tipična vrednost za n_{CPICH} je 10 (tj. 10% ukupne snage dodeljene CPICH kanalu).

Kod LTE sistema potrebno je izmeriti inenzitete električnog polja koji potiču od referentnog signala (RS - Reference Signal) koji se emituje sa konstantnom snagom. Za slučaj maksimalnog saobraćaja, maksimalni intenzitet električnog polja E_{MAX} određuje se pomoću formule:

$$(3) \quad E_{MAX} = \sqrt{n_{PBCH}} * E_{PBCH}$$

gde je n_{PBCH} odnos između maksimalne snage i snage dodeljene PBCH kanalu bazne stanice. U ovom slučaju usvojićemo da je Power Boosting Factor isključen. Pri čemu je:

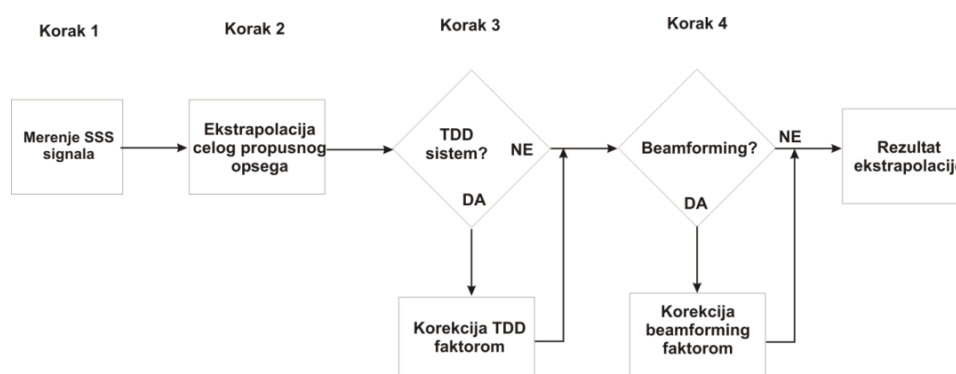
$$(4) \quad E_{PBCH} = \sqrt{E_{RS0}^2 + E_{RS1}^2 + E_{RS2}^2 + E_{RS3}^2}$$

gde je E_{RS0} , E_{RS1} , E_{RS2} i E_{RS3} intenzitet električnog polja koji potiču od referentnog signala sa antenskih portova kod baznih stanica sa MIMO (Multiple-Input and Multiple-Output) 2x2 ili 4x4 sistemima.

Tabela 1. Teorijski faktor ekstrapolacije n_{PBCH} zasnovan na broju podnosilaca

Širina propusnog opsega kanala (MHz)	Broj podnosilaca	Faktor ekstrapolacije n_{PBCH}
1,4	6	72
3	15	180
5	25	300
10	50	600
15	75	900
20	100	1200

Kod 5G NR bazne stanice, PSS (primary synchronization signal), SSS (secondary synchronization signal), PBCH (physical broadcast channel) i CSI-RS (channel state information reference signal) mogu se koristiti kao stabilni referentni signali, nezavisni od količine saobraćaja, u metodi procene maksimalnog EM polja zasnovanoj na ekstrapolaciji. Proizvođač merne opreme Narda ističe da je očigledno najbolje merenje SSS (Secondary Synchronization Signal) signala. Međutim, ekstrapolacija nije tako jednostavna kao kod 3G ili 4G sistema. Dok je kod starijih tehnologija bio samo jedan ekstrapolacioni faktor koji je obično bio isti za sve situacije merenja sa istim propusnim opsegom, kod 5G sistema mogu postojati tri različita faktora za 5G NR sa beamforming (tehnika usmerenog snopa) i TDD (Time Division Duplex). Konkretno, tehnika usmerenog snopa zavisi od lokacije merenja. Nakon što je izmeren SSS signal, pristupa se ekstrapolaciji. 5G često koristi TDD sisteme, ako je to slučaj rezultat se mora korigovati TDD faktorom. Procedura ekstrapolacije je prikazana u četiri koraka sledećim algoritmom:



Slika 1: Algoritam za ekstrapolaciju signala

Maksimalni intenzitet električnog polja E_{MAX} određuje se pomoću formule:

$$(5) \quad E_{MAX} = \sqrt{F_{BW} \cdot F_{PR} \cdot F_{TDC}} \cdot E_{SSS}$$

gde je, F_{BW} odnos ukupne širine propusnog opsega nosioca i podnosioca za svaku kombinaciju SCS (subcarrier spacing) za frekvencije do 6 GHz dat u tabeli:

Tabela 2: F_{BW} odnos ukupne širine propusnog opsega nosioca i podnosioca za svaku kombinaciju SCS

SCS kHz	Bandwidth (MHz)												
	5	10	15	20	25	30	40	50	60	70	80	90	100
15	300	624	948	1272	1596	1920	2592	3240	-	-	-	-	-
30	132	288	456	612	780	936	1272	1596	1944	2268	2604	2940	3276
60	-	132	216	288	372	456	612	780	948	1116	1284	1452	1620

F_{PR} je redukциони faktor koji se koristi kod beamforming, u suprotnom se postavlja na 1. F_{TDC} je 1 ako se koristi FDD, ako se koristi TDD, potrebno je smanjenje snage između uplink i downlink. Usvojicemo da je Power Boosting Factor isključen.

Ekstrapolacija rezultata na maksimalno opterećenje bazne stanice nam daje uvek pouzdan rezultat bez ikakvih intervencija u kontroli sistema ili direktnog učešća operatora u procesu merenja. To su vrednosti koje mnoga nacionalna tela za zaštitu od nejonizujućih zračenja navode kao jednu od mera zaštite opšte populacije. Merenja zasnovana na dekodovanju signala pomoću frekvencijski selektivnih mernih instrumenata imaju brojne prednosti. Najznačajnije prednosti su: merenja su nezavisna od količine mobilnog saobraćaja, mogu se razlikovati različite ćelije i signali koje emituju mobilni telefoni ne utiču na merenja (posebno važno kod TDD sistema, a 5G NR će uglavnom raditi u TDD režimu).

Mobilna telefonija prve generacije (1G)

Komercijalna primena mobilne telefonije prve generacije (1G) počinje 1981. god. U nordijskim zemljama pojavljuje se standard NMT (Nordic Mobile Telephone) koji se kasnije koristi u mnogim evropskim i azijskim zemljama, takođe i u Srbiji. TACS (Total Access Communications System) koristi se u Velikoj Britaniji, Italiji i Irskoj sistem sličan AMPS-u, dok je AMPS (Advanced Mobile Phone System) u Americi. U Nemačkoj se 1985. godine pojavljuje C-Netz (C-450) koji radi na 450 MHz i ima kanal širine 20 kHz. 1986. godine u Švedskoj, Mobitex (OSI standard) za paketski prenos itd. Standardi ove prve generacije mobilnih celularnih sistema su bili analogni, jer je korišćena analogna tehnologija.

Mobilna telefonija druge generacije (2G)

Drugu generaciju mobilne telefonije predstavljaju digitalni ćelijski sistemi. Početak razvoja Globalnog sistema za mobilne komunikacije (GSM - Global System for Mobile communications), kao primarnog standarda druge generacije međunarodno je prihvaćen od 1991. godine. Digitalna komunikacija je omogućila značajna poboljšanja u kvalitetu prenosa govora i veći mrežni kapacitet, kao i dopunske usluge poput kratkih poruka (SMS - Short Message Service). Za slučaj maksimalnog saobraćaja, maksimalni intenzitet električnog polja E_{MAX} određuje se pomoću formule (1). Najčešći broj predajnika u sektoru je 4 kod GSM sistema, jedan kontrolni i tri saobraćajna kanala. Ako se na mernom mestu izmeri intenzitet električnog polja $E_{BCCH} = 1$ V/m onda se maksimalni intenzitet električnog polja određuje:

$$(6) \quad E_{MAX} = \sqrt{n_{TRX}} * E_{BCCH} = \sqrt{4} * 1 \text{ V/m} = 2 \text{ V/m}$$

Maksimalni intenzitet električnog polja, kada su svi predajnici aktivni i emituju maksimalnu snagu, na posmatranom mestu je 2 puta veći od minimalnog intenziteta električnog polja, kada je aktivan samo kontrolni kanal dok su saobraćajni kanali neaktivni.

Mobilna telefonija treće generacije (3G)

Međunarodna unija za telekomunikacije (ITU – Internacional Telecommunication Union) 2000. godine usvojila je svetski standard za sve mobilne telekomunikacije pod nazivom IMT-2000 (Internacional Mobile Telecommunications). Navedeni standard postaje obavezujući i za treću generaciju (3G) mobilne telefonije. U Evropi se primena ovog standarda usvaja 1997. godine, kroz UMTS sistem (Universal Mobile Telecommunications System). Za razliku od GSM tehnologije UMTS tehnologija ima nove mogućnosti za realizaciju novih servisa. Sistemi treće generacije mobilne telefonije omogućavaju mobilnim korisnicima znatno veće protoke podataka u odnosu na 2G i 2.5G sisteme (GSM, GPRS, EDGE). Nastao je kao odgovor na sve veće potrebe mobilnih i internet aplikacija za kapacitetom. Ovaj sistem povećava brzinu prenosa na 2 Mb/s po korisniku i uspostavlja standard za globalni roming.

Da bi odredili maksimalni intenzitet električnog polja E_{MAX} , na mernom mestu, koristimo formulu (2). Ako se na mernom mestu izmeri intenzitet električnog polja $E_{CPICH} = 0.63$ V/m onda se maksimalni intenzitet električnog polja određuje:

$$(7) \quad E_{MAX} = \sqrt{n_{CPICH}} * E_{CPICH} = \sqrt{10} * 0.63 \text{ V/m} = 2 \text{ V/m}$$

Maksimalni intenzitet električnog polja, kada 3G bazna stanice emituju maksimalnu snagu, na posmatranom mestu je 3 puta veći od minimalnog intenziteta električnog polja, kada je aktivan samo kontrolni kanal dok su saobraćajni kanali neaktivni.

Mobilna telefonija četvrte generacije (4G)

4G tehnologija LTE (Long Term Evolution) kao naslednica 3G tehnologije ima zadatak da obezbedi veće brzine protoka podataka i omogući da se preko mobilnih mreža mogu realizovati usluge poput IP telefonije, video konferencija, mobilne televizije u HD kvalitetu, cloud computing-a i mnogo toga drugog.

Da bi odredili maksimalni intenzitet električnog polja E_{MAX} , na mernom mestu, koristimo formulu (3). Ako se na mernom mestu izmeri intenzitet električnog polja $E_{PBCH} = 0.058$ V/m i ako je širina propusnog opsega kanala jednaka 20 MHz onda se maksimalni intenzitet električnog polja određuje:

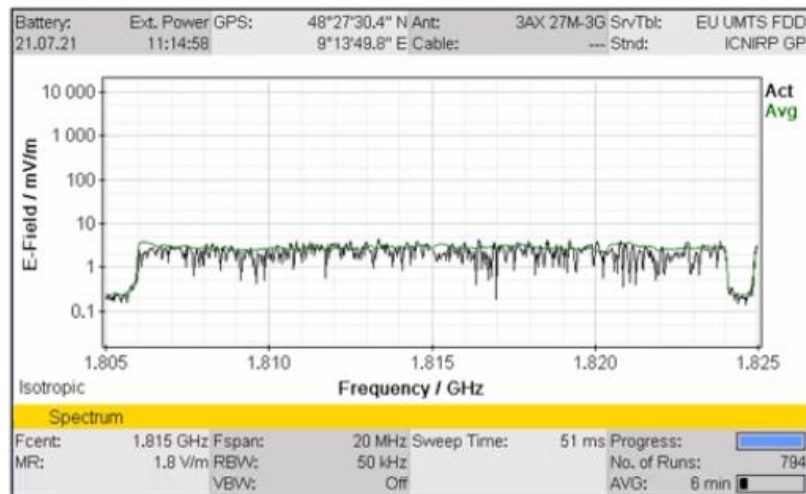
$$(8) \quad E_{MAX} = \sqrt{n_{PBCH}} * E_{PBCH} = \sqrt{1200} * 0.058 \text{ V/m} = 2 \text{ V/m}$$

Maksimalni intenzitet električnog polja, kada 4G bazna stanice emituju maksimalnu snagu, na posmatranom mestu je oko 34.5 puta veći od minimalnog intenziteta električnog polja, kada je aktivan samo referentni signal dok su saobraćajni kanali neaktivni.

Mobilna telefonija pete generacije (5G)

Kao razlozi za razvoj 5G tehnologije posebno se ističu drastični porast mobilnog saobraćaja, implementacija IoT (Internet of Things) rešenja u različitim granama industrije, implementacija novih servisa poput proširene realnosti ili mobilni Cloud itd. 5G sistemi bi trebalo da budu energetske efikasniji od LTE sistema. Da bi odredili maksimalni intenzitet električnog polja E_{MAX} , na mernom mestu, koristimo formulu (5). Ukoliko posmatramo sistem čiji je BW približno 50 MHz i gde SCS iznosi 15 kHz procenjujemo da je ekstrapolacioni faktor ukupne širine propusnog opsega F_{BW} jednak 3240.

BW se može utvrditi pomoću spektralnog analizatora npr:



Slika 2: Primer spektralnog merenja 5G signala

Ako se koristi TDD, potrebno je smanjenje snage između uplink-a i downlink-a. Na primer: Downlink je 80% vremena, uplink je 15% vremena i zaštitni interval je 5% vremena, tada je TDD ekstrapolacioni faktor F_{TDC} jednak 0.8. Kod tehnika usmerenog snopa, pojačanje antene za signalizaciju može se razlikovati od pojačanja antene za mobilni saobraćaj. Za određivanje ekstrapolacionog faktora kod tehnika usmerenog snopa F_{PR} potrebne su sledeće informacije: 3D patern antena za oba režima rada i azimut i elevacija između tačke merenja i lokacije antenskog sistema. Ukoliko je tehnika usmerenog snopa u upotrebi, prilikom merenja SSS signala No.of SSS biće veći od 1. Na sledećoj slici je primer kada je No.of SSS jednak 1 što znači da se ne koristi tehnika usmerenog snopa.

Battery:		Ext. Power		GPS:	
21.07.21		11:14:58		48°27'30.4" N Ant: 3AX 27M-3G Srv/Tbl: EU UMTS FDD 9°13'49.8" E Cable: --- Strnd: ICNIRP GP	
Table View					
Index	Cell ID	No. SSSs	Act (SSS)		
1	511	1	0.000 V		
2	8	1	0.000 V		
3	6	1	957.0 μ		
4	115	1	0.000 V		

Slika 3: Primer merenja SSS signala

Za ovaj primer usvojićemo da je $F_{PR} = 1$. Ako se na mernom mestu izmeri intenzitet električnog polja $E_{SSS} = 0.039$ V/m onda se maksimalni intenzitet električnog polja određuje:

$$(9) \quad E_{MAX} = \sqrt{F_{BW} \cdot F_{PR} \cdot F_{TDC}} * E_{SSS} = \sqrt{3240 \cdot 1 \cdot 0.8} * 0.39 \text{ V/m} = 50.91 * 0.039 \text{ V/m} = 2 \text{ V/m}$$

Maksimalni intenzitet električnog polja, kada 5G bazna stanice emituju maksimalnu snagu, na posmatranom mestu je oko 50 puta veći od minimalnog intenziteta električnog polja, kada je aktivan samo referentni signal dok su saobraćajni kanali neaktivni.

Diskusija i zaključak

Laboratorija za ispitivanje radioaktivnosti uzoraka i doze jonizujućeg i nejonizujućeg zračenja Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu je za period od 2009. godine do danas, kao akreditovana laboratorija, izvršila više od 1500 merenja u okolini baznih stanica mobilne telefonije. U zavisnosti od načina instalacije antenskog sistema, najveći broj antenskih sistema se nalazi na antenskim stubovima i krovovima stambenih zgrada, na dimnjacima toplana, u crkvenim zvonnicima i na silosima itd. Najveća zastupljenost tehnologija do 2017. godine je GSM, DCS i UMTS. Od 2015. godine je počeo značajan broj kolociranja LTE tehnologije sa GSM i UMTS sistemima. Danas možemo da zapazimo da je najzastupljenija tehnologija LTE i da je primetno da se na frekvencijama gde su bili zastupljeni DCS i UMTS sistemi sada zamenjuju sa 4G sistemima. Energetski efikasnije tehnologije, sa većim brzinama protoka podataka i mogućnostima za implementaciju novih servisa prirodno zamenjuju prevaziđene tehnologije. Implementacijom VoLTE (Voice over LTE) tehnologije stekli su se uslovi za potpuno gašenje UMTS mreža, a oslobođeni infrastrukturni i frekvencijski resursi mogli bi biti efikasno angažovani za povećanje kapaciteta LTE mreža ili za uvođenje 5G mobilnih mreža. Primeri procene maksimalnog polja prikazani u ovom radu pokazuju da su 4G i 5G tehnologije kada rade sa minimalnim korisničkim saobraćajem, za period "noćnih sati" (23h-9h), emituju 10 do 20 puta manje izlaganje ljudi elektromagnetnim poljima u odnosu na 2G i 3G sisteme. Za periode "aktivnih sati" (9h-23h) sve tehnologije, posebno u gradskim sredinama, radiće sa približno maksimalnim korisničkim saobraćajem. Ako posmatramo period u poslednjih 10 godina, može se primetiti da se izlaganje ljudi elektromagnetnim poljima konstantno povećava i to približno 2 puta na svakih 3 do 4 godine. Razlog je veći broj baznih stanica i veći broj kolokacija različitih tehnologija ili različitih operatora. Takođe, razlog je i veći broj mobilnih korisnika i sve više sati korišćenja mobilnih uređaja u toku dana. Ovde nije uzeto u obzir izlaganje koje dolazi od mobilnih uređaja, a koje može biti značajno. Poznato je da izračena snaga brzo opada sa povećanjem udaljenosti od bazne stanice, pa je signal koji emituju naši mobilni telefoni često snažniji od signala bazne stanice na udaljenosti gde mi obično koristimo naše uređaje. Manje izlaganje ljudi elektromagnetnim poljima je moguće jedino ako se koriste energetski efikasnije i štedljivije tehnologije i kada je u pitanju slanje i primanje podataka. Dobra pokrivenost signalom područja gde ljudi često provode vreme može smanjiti izračene snage mobilnih uređaja i na taj način smanjiti i izlaganje ljudi elektromagnetnim poljima.

Zahvalnica

Istraživanja je finansiralo Ministarstvo nauke, tehnološkog razvoja i inovacija Republike Srbije (Ev.br. 451-03-47/2023-01/200125)

Literatura

- [1] N.Krstić, D.Mrđa, D.Velimirović, Z.Nađ, I.Bikit i S.Forkapić Problemi sa upotrebom savremene 5G tehnologije u Republici Srbiji i preporuke sa usklađivanjem propisa u oblasti zaštite od nejonizujućih zračenja, Zbornik radova XXXI simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, 08–10. Oktobar 2021, Beograd, 353-360
- [2] Mladen T. Koprivica, Povećanje efikasnosti metoda za merenje intenziteta električnog polja u okolini baznih stanica javnih mobilnih sistema - doktorska disertacija, Beograd, 2016.
- [3] SRPS EN 62232:2022 Određivanje jačine RF polja, gustine snage i SAR u blizini radiokomunikacionih baznih stanica radi procene izlaganja ljudi.

- [4] Studija o strategiji uvođenja 5G mobilnih komunikacionih mreža u Crnoj Gori, Institut za razvoj i istraživanja u oblasti zaštite na radu, Podgorica, mart 2021.
- [5] Dejan Nemes, Evolucija mobilnih telekomunikacionih sistema - magistarski rad, FTN, Novi Sad.
- [6] SRM-3006 5G NR Code Selective Measurement, Narda Safety Test Solutions.
- [7] dr Miladin Kovačević, Vladimir Šutić, Uroš Rajčević, Upotreba informaciono-komunikacionih tehnologija u Republici Srbiji, 2021. Republički zavod za statistiku, Beograd.

THE INFLUENCE OF THE EVOLUTION OF MOBILE TECHNOLOGIES ON THE EXPOSURE OF PEOPLE TO EM FIELDS

Nebojša KRSTIĆ¹, Zoltan NAD¹, Danijel VELIMIROVIĆ¹, Dušan MRĐA¹,
Sofija FORKAPIĆ¹

1) *Faculty of Sciences, University of Novi Sad, Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad*

ABSTRACT

In this paper, we deal with the evolution of mobile communications, from their first generation 1G to the latest 5G, and the impact of the evolution of mobile technologies on the exposure of people to electromagnetic (EM) fields. The growing demands of users for high-quality telecommunication services have led to the intensive development of wireless communication systems. As the introduction of fifth generation (5G) mobile telecommunications is well underway, standardized methods are needed to assess human exposure to radio frequency electromagnetic fields from 5G radio base stations. The introduction of new emission sources, which work in parallel with already existing 2G/3G/4G mobile technologies, raises concerns about exceeding the permissible EM field exposure limits. This paper analyzes the issues and challenges related to the measurement of EM fields, which are crucial for assessing the compliance of EM fields with regulatory limits. The results of the verification and implementation of the new version of the SRPS EN IEC 62232:2022 standard method for determining RF field strength, power density and SAR in the vicinity of radio communication base stations for the assessment of human exposure are presented and discussed.

ФОТОТЕРАПИЈА ЗА НЕОНАТАЛНУ ХИПЕРБИЛИРУБИНЕМИЈУВладимир АЛЕКСИЋ¹1) *Општа болница Пожаревац, Братства јединства 135, Пожаревац**Аутор за кореспонденцију: Владимир АЛЕКСИЋ, vladimiraleksic@obp.rs***САЖЕТАК**

У овом раду је описана фототерапија новорођенчади са хипербилирубинемом. Наиме, код одређеног процента беба након рођења долази до појаве жутице, што је последица метаболичких проблема у вези са разградњом билирубина. За фототерапију се употребљава електромагнетно зрачење из таласног опсега плаве светлости, које, премда не спада у јонизујућа зрачења, може изазвати телесна оштећења и угрозити здравље поменутих неонаталних пацијената. Након кратког увода о развоју фототерапије кроз историју, овај рад приказује основне принципе функционисања терапије плавом светлошћу, као и мере заштите од овог типа нејонизујућег зрачења.

Увод

Електромагнетно зрачење представља пренос енергије кроз простор и његов таласни спектар обухвата опсега од краткоталасних гама зрака до веома дугих радио таласа, при чему само мали интервал припада видљивој светлости (400-780) nm. На основу главних механизма интеракције са биолошким ћелијама и ткивима, светлост која се примењује у фототерапији, као и у фотомедицини генерално, обухвата таласни опсег од 100 nm до 1000 μ m [1]. Осим поменуте видљиве светлости, у овом опсегу се налазе ултраљубичаста и инфрацрвена светлост. Подела фототерапијске светлости према фреквенцијама, таласним дужинама и енергијама фотона дате су у Табели 1.

Табела 1: Подела фототерапијске светлости

Врста светлости	Фреквенција [THz]	Таласна дужина [nm]	Енергија фотона [eV]
Ултраљубичаста	3000-750	100-400	12,4-3,1
Видљива	750-385	400-780	3,1-1,59
Инфрацрвена	385-0,3	780-106	1,59-1,24

Електромагнетно зрачење, па самим тим и светлост, има двојну честично-таласну природу. Таласне карактеристике долазе до изражаја при интеракцији са објектима сличних димензија таласној дужини фотона, док су честичне особине евидентније када су димензије објекта много мање од поменуте таласне дужине. Електромагнетно зрачење, генерално, може се поделити на јонизујуће и нејонизујуће. Јонизујуће зрачење, као што му име говори, може да јонизује материју и, што се тиче хемијских елемената, енергија фотона довољна за процес уклањања електрона из атома креће се од 2,3 eV за атом натријума до 24,5 eV за атом хелијума. Будући да се људски организам процентуално највише састоји од воде, праг јонизације овог једињења од 12,4 eV представља енергетску границу за два наведена типа зрачења и налази се у УВ

области електромагнетног спектра. Стога, видљиви део спектра спада у нејонизујућа зрачења и може се поделити на 6 боја, чије су фреквенције, таласне дужине и енергије фотона дате у Табели 2.

Табела 2: Подела видљиве светлости по бојама

Боја	Фреквенција [Hz]	Таласна дужина [nm]	Енергија фотона [eV]
Љубичаста	750-668	400-450	3,1-2,76
Плава	668-605	450-490	2,76-2,5
Зелена	605-499	490-560	2,5–2,06
Жута	499-482	560-580	2,06–1,99
Наранџаста	482-443	580-630	1,99–1,83
Црвена	443-385	630-780	1,83-1,59

Доминантни типови интеракције са материјом у видљивом делу спектра јесу дисоцијација и електронска екситација, а најважнији облици еластичног расејања су Рејлијево и Лоренц-Мијево [1]. Терапеутски ефекти светлости су резултат апсорбоване енергије у ткиву, при чему су главни апсорбери у ултраљубичастом опсегу ДНК и протеини, док су у таласном опсегу видљиве и инфрацрвене светлости то хемоглобин и меланин.

Историја фототерапије

Будући да је вид примарно чуло код човека, можемо бити сигурни да су људи били опчињени светлошћу хиљадама година, још у временима када нису остављали писане трагове. Многе древне цивилизације су славиле бога сунца, а египатски фараон Ахенатон је 1370. године пре Христа увео богослужење које је укључивало и зраке сунчеве светлости. У јудеохришћанској традицији прво поглавље Библије приказује стварање светлости као први Божји чин креације света – И рече Бог: *Нека буде светлост*. И би светлост (*Постање. 1,3*). У овим давним временима једини извори светлости били су ватра, луминисцентни организми и Сунце. Будући да су прва два извора преслаба за индуковање озбиљнијих фототерапеутских ефеката, хелиотерапија је била једини могући облик терапије све до краја 19. века. Значајан допринос разумевању природе светлости у области класичне физике дали су Исак Њутн, који је 1666. године уз помоћ призме разложио сунчеву светлост на основне компоненте – боје, као и Кристијан Хајгенс, који је препознао таласну природу светлости. Фредерик Хершел и Јохан Ритер открили су инфрацрвену (1800.) и ултраљубичасту (1801.) компоненту сунчеве светлости, респективно, које су невидљиве људском оку [2]. Потом, Артур Даунс и Томас Блунт показали су 1877. године да је ултраљубичаста компонента сунчеве светлости летална за бактерије и друге микроорганизме [2]. Пионир модерне клиничке фототерапије био је нобеловац Нилс Финсен, дански лекар, чије су се публикације односиле на коришћење црвене светлости за превенцију гноја и ожиљака код пацијената са малим богињама. Након тога, Финсен се посветио правој фототерапији – третману туберкулозних инфекција коже (лат. *Lupus Vulgaris*), при

чему је као извор користио сунчеву светлост, коју је пропуштао кроз кварцна сочива и филтере, уклањајући инфрацрвену и видљиву компоненту, а фокусирајући бактерицидну ултраљубичасту на лезију. Временом, коришћење фототерапије се интензивирало у третманима две болести индустријске револуције: плућној туберкулози и рахитису [2]. За модерну интерпретацију природе светлости заслужни су Макс Планк, који је успео да разреши проблем зрачења црног тела, такозвану „ултраљубичасту катастрофу“, уводећи идеју пакета енергије - кванта, чија је енергија сразмерна фреквенцији, затим Алберт Ајнштајн својим објашњењем фотоелектричног ефекта, као и лорд Рејли који је, између осталог, показао зашто је небо плаво у току дана, а црвено при заласку Сунца. Ричард Кремер, енглески лекар, конструисао је први фототерапијски апарат за испитивање ефеката вештачке светлости на бебе, који су чиниле 8 флуоросцентних лампи од 40 W са плавом светлошћу. Коначно, форма фототерапије за неонаталну жутицу била је први пут представљена 1958. године од стране већ поменутог Кремера и сарадника у раду „Утицај светлости на хипербилирубинемiju код беба“ [3], али није у потпуности прихваћена читаву деценију, све док Луси и сарадници својим студијама нису показали сигурност и ефикасност [4]. На крају ваља истаћи конструисање плаве ЛЕД (енгл. *Light Emission Diode*) светиљке, где се струја директно конвертује у фотоне, што за последицу има много већу енергетску ефикасност у односу на халогене и флуоросцентне светиљке. Исаму Акасаки и Хироши Аmano су 1992. године представили ово своје откриће, то јест примену галијум нитрида (GaN) као компоненте ЛЕД, што ће 2014. године бити награђено Нобеловом наградом за физику [5]. Недуго потом, након успешних клиничких испитивања, започела је примена плаве ЛЕД светлости за лечење неонаталне жутице, што се може видети у научном раду „Диоде које емитују светлост: нови извор светлости за фототерапију“ [6].

Фототерапија за неконјуговану хипербилирубинемiju

Да би светлост имала терапеутско дејство, конкретно мора бити апсорбована од стране хромофорних молекула у телу. Апсорпција води ка транзиентној екситацији хромофора на више енергетске нивое. Затим, екситација мора да води до терапеутски корисних фотохемијских реакција. Међутим, многи молекули у телу су безбојни, не апсорбују светлост у видљивом делу спектра и не подлежу фотоекситацији. Стога, они су тотално неосетљиви на терапију видљивом светлошћу. Изузев фоторецепторских пигмената у оку, основне компоненте које апсорбују видљиву светлост су протеини који садрже меланин и хем, међутим, они не подлежу фотохемијским реакцијама *in vivo* при екситацији видљивом светлошћу и фотобиолошки су инертни. Додатно, нискоенергетски фотони видљиве светлости могу изазвати само вибрационе екситације хемијских веза и генерално не изазивају фотохемијске реакције. Стога, није изненађујуће да терапија видљивом светлошћу - било црвеном, наранџастом, жутом, зеленом, плавом, индиго, љубичастом или белом - ретко има корисне физиолошке ефекте. Јединствени изузетак представља фототерапија неонаталне жутице, то јест неонаталне неконјуговане хипербилирубинемije. Око 60% новоронђенчади (бебе рођене у очекиваном термину) и 80% недоношчади (бебе рођене пре очекиваног термина) добије жутицу у првој недељи живота, при чему се код око 10% беба задржи у првом месецу. Жутица се манифестује као жута боја коже и беоњача и ово жутило је последица метаболичких проблема у разградњи неконјугованог билирубина и његовог нагомилавања у кожи и мукозним мембранама. Наиме, билирубин се углавном ствара приликом разлагања црвених крвних зрнаца, овај тип билирубина је неконјуговани (или индиректни) и он се у јетри претвара у конјуговани (или директни) који затим прелази у црева и потом се великим делом излучује кроз столицу. Будући да је

слободни билирубин растворљив у мастима, може проћи крвно-мождану баријеру, а након овог проласка, он може бити наталожен у мозгу и изазвати акутну билирубинску енцефалопатију или керниктерус, што, пак, може довести до хроничног и сталног оштећења нервног система, па чак и до смрти у најтежим случајевима. Етиолошки посматрано, током неонаталног периода најчешћи фактори који утичу на појаву повећаног нивоа билирубина су: прерано рођење, инфекције (попут плућних и кожных), хемолиза (због инкомпатибилности крвне групе), унутрашње крварење (попут кранијалног хематома), хипоксија, хипогликемија и генетски фактори. Да би се спречила наведена озбиљна оштећења нервног система, рана дијагностика и правовремена интервенција су од круцијалног значаја. Транскутана билирубинометрија је неинвазивна метода дијагностике која се користи у данашње време, а најчешћи облик терапије је фототерапија плавом светлошћу. Ова фототерапија изазива фотохемијску реакцију која мења облик, али не и грађу билирубина. Насупрот фотооксидацији, што је спори процес, ове реакције су много брже и ефикасније. Оне производе две породице мутираних билирубинових изомера и могу се упоредити са фотохемијским реакцијама родопсина у ретини ока, провитамина D3 у кожи и фитохрома код биљака. Ови фотохемијски изомери разликују се од својих родитеља изомера у две битне ствари: они су више поларни и могу бити излучени из јетре у жуч са извршеном конјугацијом. Штавише, њима није потребно присуство анјонских транспортера за ефикасно излучивање из јетре у жуч. Терапеутска ефикасност фототерапије примарно зависи од следећих фактора: спектралног квалитета светлости (таласни опсег и пик), интензитета светлости (озраченост или ирадијанса), површине која се експонира, дебљине коже и пигментације, нивоа тоталног билирубина и трајања експозиције. Конкретно, фототерапија је учинковита када је ниво серума билирубина већи од 80 $\mu\text{mol/l}$, таласни опсег светлости од 460 nm до 500 nm, а спектрална ирадијанса износи најмање 30 $\mu\text{W/cm}^2/\text{nm}$. Нежељене појаве могу бити краткорочне и дугорочне. Најважније краткорочне нуспојаве могу бити: оштећење ретине, убрзање срчаног ритма, дехидратација, хипокалкемија, хемолиза, синдром „бронзане бебе“, хемодинамички ефекти, *patent ductus arteriosus*, осип, дијареја итд. У току фототерапије мрежњача (лат. *retina*) апсорбује више фотона него што је уобичајено, те стога да не би дошло до њеног оштећења (ретинопатије) треба прекрити бебине очи и спроводити интентивну негу очију. *Patent ductus arteriosus* настаје јер се јони K^+ активирају да би опустили глатке мишиће у зиду великих крвних судова, па је потребно адекватно прекрити бебине груди током фототерапије. Дехидратација се јавља као последица повећања продуката разградње билирубина и промене интестиналног трансмембранског потенцијала, те по потреби треба беби давати воду и електролите. До хипокалкемије долази услед пораста уринарне екскреције калцијума, опадања плазма мелатонина, повећане коштане апсорпције калцијума и редукције нивоа калцијума у крви. Неопходан је мониторинг нивоа калцијума у крви и суплементација ако је потребно. Хемолиза је вероватно повезана са оксидативним стресом и у том случају треба спровести интермитентну фототерапију. Синдром бронзане бебе је вероватно повезан са нагомилавањем фотоизомера билирубина, при чему нису потребне никакве мере заштите. Што се тиче осипа, ова нежељена појава се може смањити прилагођавање времена експозиције, интензитета и растојању бебе од извора светлости. У најбитније дугорочне нуспојаве спадају појаве алергија, оштећења ДНК, канцера и смрти, међутим тема ових наведених нежељених реакција на фототерапију је за сада контроверзна. Могући повећани ризик за појаву канцера код деце која су излагана фототерапији може бити повезан са хипербилирубинемијом *per se*, фототерапијом или комбинацијом оба. Наиме, неке од студија су ограничене на дијагностиковање канцера у току детињства и нису пратиле

ову децу у њиховом зрелом добу и, будући да је садашња литература ограничена у вези са бројем широкообухватних студија које указују на дугорочни утицај фототерапије, шире проспективне и ретроспективне кохортне студије су неопходне [7]. У данашње време користе се разни типови лампи за терапију плавом светлошћу, попут флуоресцентних и халогених. Међутим, због промене у могућим нежељеним ефектима, у новијим радовима се потенцира ваљаност преласка са плаве флуоресцентне светлости на плаво-зелену (тиркизну) ЛЕД светлост, што је приказано у Табели 3 [8].

Табела 3. Промене у могућим нежељеним ефектима преласком са плаве флуоресцентне светлости на плаво-зелену ЛЕД фототерапију новорођенчади са хипербилирубинемом [8]

Параметар	Ефекат	Разлог
Фотодинамичка штета	Опадање	Редукција фотооксидације и геноцитотоксичности
Смртност новорођенчади	Опадање	Редукција фотодинамичке штете и хемодинамичког одговора
Дефицијенција рибофлавина	Опадање	Фотооксидација рибофлавина
Синдром бранзане бебе	Пораст	Повећање стварања и задржавања бронзаних пигмената
Имуни одговор	Пораст	Повећање стварања преинфламаторних цитокина
Хемодинамички одговор	Опадање	Смањење излагања видљивој (> 530 nm) и инфрацрвеној светлости (топлота)
Трансепидермални губитак воде	Опадање	Као хемодинамички одговор
Хипо/хипертермија	Пораст/оподање	Као и за хемодинамички одговор
Мајка-дете контакт и дојење	Пораст	Краће трајање фототерапије
Учесталост канцера	Опадање	Опадање фотодинамичке штете
Алергијске болести	Пораст	Повећање имуног одговора

Такође, плава ЛЕД светлост са пиком на 478 nm показује бољи ефекат редукције билирубина *in vivo* у односу на плаву ЛЕД светлост са пиком на 459 nm, са једнаком ирадијансом у третману хипербилирубинемом и код недоношчади и код новорођенчади [9]. Ово клиничко испитивање одговара теоретским прорачунима [10]. Поменути плаву ЛЕД светлост са пиком на 478 nm би требало користити будући да се исти ефекат постиже при излагању беба мањој количини фотона, минимизујући ризик од потенцијалних нежељених ефеката и смањујући трајање фототерапије. Такође, треба нагласити значај ове поменуте редукције трајања експозиције, будући да се на тај

начин повећава време које мајка и беба проводе заједно, што утиче на јачање бебиног имунитета.

Дискусија и закључак

Фототерапија за неонаталну жутицу из вештачких извора светлости користи се више од 60 година, при чему из ЛЕД извора више од 25 година, и представља релативно сигуран и ефикасан терапеутски третман. Због апсорпционих и фотохемијских особина билирубина, најбоље таласне дужне за фототерапију су оне из плавог и плаво-зеленог (тиркизног) опсега, између 460 nm и 500 nm, са пиком на око 480 nm, при чему се препоручује ЛЕД извор светлости. Иако зрачење у овом опсегу не спада у јонизујућа зрачења, треба спровести одређене мере заштите, попут прекривања очију и груди бебе. На крају, али не и најмање битно, потребно је извршити широкообухватне кохортне студије у вези са дугорочним нежељеним ефектима, попут појаве канцера.

Захвалница

Захваљујем Милану Радојковићу из Кандела д.о.о. на идејама и саветима, као и Милошу Јеремићу из Dräger техника d.o.o. на достављеним подацима.

Литература

- [1] V.V. Tuchin. Tissue Optics and Photonics: Light-Tissue Interaction, Journal of Biomedical Photonics and Engineering, june 2015.
- [2] A. F. McDonagh. Phototherapy: From Ancient Egypt to the New Millennium, Journal of Perinatology 2001; 21: S7-S12.
- [3] R.J. Cremer, P.W. Perryman, D.H. Richards. Influence of light on the hyperbilirubinaemia of infants. Lancet 1958; 1:1094.
- [4] R. Lucey J, Ferreiro M, Hewitt J. Prevention of hyperbilirubineamia of prematurity bay phototherapy. Pediatrics 1968; 41:1047.
- [5] <https://www.nobelprize.org/prizes/physics/2014/summary/>
- [6] H.J. Vreman, R.J. Wong, D.K. Stevenson. Light-emitting diodes: a novel light source for phototherapy. Pediatr Res. 1998; 44: 804-9.
- [7] T. Jegathesan. Rethinking the assessment of hyperbilirubinemia in preterm infants, PhD thesis, Toronto, 2021.
- [8] F. Ebbesen, H.J. Vreman, T.W.R. Hansen. Blue-Green (480 nm) versus Blue (460 nm) Light for Newborn Phototherapy - Safety Considerations, International Journal of Molecular Science 2023; 24,461.
- [9] F. Ebbesen, M.R. Domingo, A.M. Moeller, H.J. Vreman, M.L. Donneborg. Effect of blue LED phototherapy centered at 478 nm versus 459 nm in hyperbilirubinemic neonates: a randomized study, Pediatric Research (2021) 89:598-603, published online: 26 april 2020.
- [10] Lamola et al. The effect of hematocrit on the efficacy of phototherapy for neonatal jaundice. Pediatr. Res 74, 54-60 (2013).

PHOTOTHERAPY FOR NEONATAL HYPERBILIRUBINEMIAVladimir ALEKSIC¹1) *General hospital Požarevac, Bratstva jedinstva 135, Požarevac***ABSTRACT**

This paper describes the phototherapy of newborns with hyperbilirubinemia. Namely, a certain percentage of babies develop jaundice after birth, which is a consequence of metabolic problems related to the breakdown of bilirubin. For phototherapy, electromagnetic radiation from the wavelength range of blue light is used, which, although it does not belong to ionizing radiation, can cause physical damage and endanger the health of the mentioned neonatal patients. After a short introduction on the development of phototherapy throughout history, this paper presents the basic principles of the functioning of blue light therapy, as well as protection measures against this type of non-ionizing radiation.

САДРЖАЈ

ОПШТИ ПРОБЛЕМИ ЗАШТИТЕ ОД ЗРАЧЕЊА GENERAL PROBLEMS OF RADIATION PROTECTION 1

OPRAVDANOST, OPTIMIZACIJA I REFERENTNI NIVOI U SITUACIJAMA POSTOJEĆEG IZLAGANJA 2

JUSTIFICATION, OPTIMIZATION AND REFERENCE LEVELS IN EXISTING EXPOSURE SITUATIONS 8

METROPOEM PROJEKAT – METROLOGIJA ZA HARMONIZACIJU MERENJA ZAGADJIVAČA ŽIVOTNE SREDINE U EVROPI 9

METROPOEM – METROLOGY FOR THE HARMONISATION OF MEASUREMENTS OF ENVIRONMENTAL POLLUTANTS IN EUROPE 14

РАДИОЕКОЛОГИЈА И ИЗЛАГАЊЕ СТАНОВНИШТВА RADIOECOLOGY AND POPULATION EXPOSURE 15

RADIOLOŠKA KARAKTERIZACIJA POLJOPRIVREDNOG ZEMLJIŠTA NA TERITORIJI VOJVODINE 16

RADIOLOGICAL CHARACTERIZATION OF AGRICULTURAL SOIL IN THE TERRITORY OF VOJVODINA 23

MONITORING RADIOAKTIVNOSTI I PROCENA RADIJACIONOG RIZIKA U OKOLINI TERMOELEKTRANA U REPUBLICI SRBIJI U 2021. I 2022. GODINI 24

RADIOACTIVITY MONITORING AND RADIATION RISK ASSESSMENT IN THE SURROUNDINGS OF THERMAL POWER PLANTS IN THE REPUBLIC OF SERBIA IN 2021 AND 2022 29

GRAMON BAZA PODATAKA: DESETOGODIŠNJA MERENJA SPECIFIČNE AKTIVNOSTI BERILIJUMA-7 U VAZDUHU 30

GRAMON DATABASE: TEN YEARS OF BERYLLIUM-7 SPECIFIC ACTIVITY MEASUREMENTS 35

ISPITIVANJE SADRŽAJA RADIONUKLIDA U VODI I SEDIMENTU, REKA SAVA 36

RADIONUCLIDES IN WATER AND SEDIMENT, SAVA RIVER 41

RADIOLOŠKA ANALIZA NEKIH VRSTA LEKOVITOG BILJA SA PODRUČJA GUČEVA I PROCENA GODIŠNJE EFEKTIVNE DOZE USLED INGESTIJE 42

RADIOLOGICAL ANALYSIS OF SOME TYPES OF MEDICINAL PLANTS FROM THE GUČEVO AREA AND ESTIMATION OF ANNUAL EFFECTIVE DOSE DUE TO INGESTATION 48

PRIMENA JONOIZMENJIVAČKIH SMOLA ZA GAMA SPEKTROMETRIJSKO ODREĐIVANJE RADIJUMA U VODI 49

APPLICATION OF ION EXCHANGE RESINS FOR GAMMA SPECTROMETRIC DETERMINATION OF RADIUM IN WATER 55

ODREĐIVANJE VEŠTAČKIH I PRIRODNIH RADIONUKLIDA U UZORKU ZEMLJIŠTA U SVRHU INTERKOMPARACIJE IAEA-TERC-2022-02 56

DETERMINATION OF GAMMA-EMITTING ANTHROPOGENIC AND NATURAL RADIONUCLIDES IN SOIL SAMPLE FOR THE PURPOSE OF PROFICIENCY TEST IAEA-TERC-2022-02 ALMERA 61

RASPODELA KONCENTRACIJA AKTIVNOSTI PRIRODNIH RADIONUKLIDA U UZORCIMA ŽIVOTNE SREDINE KAO POSLEDICA RADA TERMOELEKTRANE “KOLUBARA” U PERIODU 2010 – 2022. GODINE 62

THE ACTIVITY CONCENTRATION DISTRIBUTIONS OF NATURALLY OCCURRING RADIONUCLIDES IN THE ENVIRONMENTAL SAMPLES AS A RESULT OF THE OPERATION OF THE “KOLUBARA” COAL-FIRED POWER PLANT IN THE PERIOD OF 2010 – 2022. 70

RADIOLOGICAL CHARACTERIZATION OF ALKALI ACTIVATED MATERIALS CONTAINING WOOD AND FLY ASH 71

RADIOLOŠKA KARAKTERIZACIJA ALKALNO AKTIVNIH MATERIJALA KOJI SADRŽE DRVENI I LETEĆI PEPEO	79
POTENCIJALNI ODNOS IZMEĐU KONCENTRACIJE TRICIJUMA U KIŠNICI I REKAMA.....	80
RELATIONSHIP BETWEEN TRITIUM CONCENTRATIONS IN PRECIPITATION AND RIVERS.....	85
ANALIZA TRENDA PROMENE UKUPNE ALFA I UKUPNE BETA AKTIVNOSTI U POLJOPRIVREDNOM EKOSISTEMU.....	86
ANALYSIS OF TREND OF THE GROSS ALPHA AND GROSS BETA ACTIVITY IN THE AGRICULTURAL ECOSYSTEM.....	92
AKUMULACIJA RADIONUKLIDA IZ ZEMLJIŠTA U PLODOVIMA LEŠNIKA	93
ACCUMULATION OF RADIONUCLIDES FROM SOIL IN HAZELNUT FRUITS.....	102
REZULTATI MERENJA PRIVATNE MERNE STANICE U POŽAREVCU ZA KONTINUALNO MERENJE AMBIJENTALNOG EKVIVALENTA DOZE ZA 2021. I 2022. GODINU.....	103
MEASUREMENT RESULTS OF PRIVATE MEASURING STATION IN POŽAREVAC FOR CONTINUOUS MEASUREMENT OF AMBIENT DOSE EQUIVALENT FOR 2021 AND 2022	109
ISPITIVANJE KONCENTRACIJE RADIONUKLIDA U SEDIMENTU PODMORJA CRNE GORE	110
CONCENTRATION OF RADIONUCLIDES IN THE SUBMARINE SEDIMENT OF MONTENEGRO	115
SADRŽAJ RADIONUKLIDA I DOZA INGESTIJOM ZA ČAJEVE SPRAVLJENE OD LEKOVITOG BILJA SA TERITORIJE REPUBLIKE SRBIJE.....	116
RADIONUCLIDE CONTENT AND INGESTION DOSE FOR TEA MADE FROM MEDICINAL HERBES FROM THE THERITORY OF REPUBLIC OF SERBIA	121
ANALIZA FRAKTALNE PRIRODE SPECIFIČNE AKTIVNOSTI BERILIJUMA-7 U PRIZEMNOM SLOJU ATMOSFERE MERENE U BEOGRADU, SRBIJA (1991-2022)	122
ANALYSIS OF THE FRACTAL NATURE OF THE SPECIFIC ACTIVITY OF BERYLLIUM-7 IN THE NEAR-SURFACE LAYER OF THE ATMOSPHERE MEASURED IN BELGRADE, SERBIA (1991–2022)	127
FLY-ASH FOR USAGE IN THE BUILDING MATERIAL INDUSTRY	128
UPOTREBA LETEĆEG PEPELA U INDUSTRIJI GRAĐEVINSKOG MATERIJALA	136
IZBOR REFERENTNOG DATUMA ZA PREZENTOVANJE AKTIVNOSTI RADIONUKLIDA U VREMENSKI KOMPOZITNIM UZORCIMA.....	137
SELECTION OF REFERENCE DATE FOR PRESENTATION OF RADIONUCLIDE ACTIVITY IN TIME-COMPOSITE SAMPLES.....	142
SADRŽAJ RADIONUKLIDA I TEŠKIH METALA U OTPADNOM TALOGU OD PREČIŠĆAVANJA RASTVORA ZA ELEKTROLIZU CINKA U “ZORKI” ŠABAC	143
CONTENT OF RADIONUCLIDES AND HEAVY METALS IN THE WASTE PRECIPITATE FROM THE PURIFICATION OF THE SOLUTION FOR THE ELECTROLYSIS OF ZINC IN "ZORKA" ŠABAC	152
SOIL TO PLANT TRANSFER OF CS-137, SR-90, RA-226, PB-210 AND K-40 IN DIFFERENT AGRICULTURAL PRODUCTS IN CROATIA.....	153
PRIJENOS CS-137, SR-90, RA-226, PB-210 I K-40 IZ TLA U BILJKU U RAZLIČITIM POLJOPRIVREDNIM KULTURAMA U HRVATSKOJ	159
РАДОН RADON.....	160
MERENJE RADIOAKTIVNOSTI I EKSHALACIJE RADONA IZ KONCENTRATA ARSENA KORIŠĆENOG U INDUSTRIJI CINKA „ZORKA” ŠABAC	161
MEASUREMENTS OF RADIOACTIVITY AND RADON EXHALATION FROM THE ARSENIC CONCENTRATE USED IN THE ZINC INDUSTRY "ZORKA" ŠABAC	171
RADON U SREDNJIM ŠKOLAMA U CRNOJ GORI.....	172

RADON IN SECONDARY SCHOOLS IN MONTENEGRO.....	177
RAZVOJ METODOLOGIJE ZA BRZU DIJAGNOSTIKU POVIŠENIH NIVOVA RADONA I ANALIZU GEOLOŠKIH FAKTORA U RADONOM UGROŽENIM PODRUČJIMA	178
DEVELOPMENT OF METHODOLOGY FOR RAPID DIAGNOSTIC OF ELEVATED RADON LEVELS AND ANALYSIS OF GEOLOGICAL FACTORS IN RADON PRIORITY AREAS.....	185
MERENJE KONCENTRACIJE RADONA U ZATVORENOM PROSTORU – PRIKAZ JEDNOG SLUČAJA.....	186
INDOOR RADON CONCENTRATION MEASUREMENT - CASE STUDY.....	195
TRACERADON PROJEKAT – PREGLED NAJVAŽNIJIH REZULTATA.....	196
TRACERADON PROJECT – AN OVERVIEW OF SCIENTIFIC ACHIEVEMENTS	205
MONITORING KONCENTRACIJE RADONA U RADNOM PROSTORU, LABORATORIJA PMF-A U KOSOVSKOJ MITROVICI	206
MONITORING OF RADON CONCENTRATION IN THE WORKPLACE, LABORATORY OF FACULTY IN KOSOVSKA MITROVICA.....	211
ISPITIVANJE KONCENTRACIJE AKTIVNOSTI RADONA SA VODOIZVORIŠTA U CRNOJ GORI.....	212
INVESTIGATION OF RADON ACTIVITY CONCENTRATION FROM WATER SOURCES IN MONTENEGRO	218
METODE DETEKCIJE I MERNA INSTRUMENTACIJA DETECTION METHODS AND MEASUREMENT INSTRUMENTATION.....	219
PONOVLJIVOST ODREĐIVANJA AKTIVNOSTI RADIONUKLIDA CS-137 IZ CILINDRIČNOG RADIOAKTIVNOG IZVORA.....	220
REPEATABILITY OF CS-137 RADIONUCLIDE ACTIVITY DETERMINATION FROM CYLINDRICAL RADIOACTIVE SOURCE	224
VARIJACIJE FONA HPGE DETEKTORA	225
BACKGROUND VARIATIONS OF HPGE DETECTORS	231
INTERNA KONTROLA KVALITETA HPGE GAMASPEKTROMETRIJSKOG SISTEMA.....	232
INTERNAL QUALITY CONTROL OF HPGE GAMMA SPECTROMETRY SYSTEM.....	237
ODREĐIVANJE SADRŽAJA PRIRODNIH RADIONUKLIDA U UZORCIMA MINERALNIH ĐUBRIVA.....	238
DETERMINATION OF THE CONTENT OF NATURAL RADIONUCLIDES IN SAMPLES OF MINERAL FERTILIZERS.....	244
GODIŠNJA KONTROLA DETEKTORA INSPECTOR 1000 I RADEYE PRD	245
ANNUAL CONTROL OF INSPECTOR 1000 AND RADEYE PRD DETECTORS.....	251
UPOTREBA FRAM SOFTVERA U ANALIZI GAMA SPEKTARA NUKLEARNIH MATERIJALA	252
FRAM SOFTVER	252
THE USE OF FRAM SOFTWARE IN THE ANALYSIS OF GAMMA SPECTRA OF NUCLEAR MATERIALS	258
REZULTATI ISPITIVANJA SONDE S1 SA KOMPENZACIONIM FILTEROM ZA MERENJE AMBIJENTALNOG EKVIVALENTA DOZE ZA UREĐAJ DMRZ-M15	259
TEST RESULTS OF PROBE S1 WITH COMPENSATION FILTER FOR MEASURING THE AMBIENT EQUIVALENT DOSE USED WITH DMRZ-M15 SURVEY METER	264
MERNA NESIGURNOST AMBIJENTALNIH FOTONSKIH DOZIMETARA U IMPULSNOM REŽIMU RADA SA POSEBNIM OSVRTOM NA UTICAJ OSETLJIVOSTI DETEKCIJE I VREMENA MERENJA	265

MEASUREMENT UNCERTAINTY OF AMBIENT PHOTON DOSIMETERS IN PULSE MODE OPERATION WITH SPECIAL EMPHASIS TO THE INFLUENCE OF DETECTION SENSITIVITY AND MEASUREMENT TIME	271
PRIPREMA RADIOAKTIVNIH STANDARDA ZA KALIBRACIJU GAMA SPEKTROMETARA	272
PREPARATION OF RADIOACTIVE STANDARDS FOR CALIBRATION OF GAMMA SPECTROMETER	279
ODREĐIVANJE SR-89 I SR-90 ČERENKOVLEJIVIM BROJENJEM.....	280
DETERMINATION OF SR-89 AND SR-90 BY CHERENKOV COUNTING.....	286
ANALIZA FLUKSA I DOZNIH EFEKATA TERESTRIJALNOG SKYSHINE ZRAČENJA	287
ANALYSIS OF FLUX AND DOSE EFFECTS OF TERRESTRIAL SKYSHINE RADIATION	292
KALIBRACIJA LSC DETEKTORA U OKVIRU RAZVOJA METODE ZA MERENJE URANIJUMA U PODZEMNIM VODAMA	293
CALIBRATION OF LSC DETECTOR FOR THE DEVELOPMENT OF METHOD FOR MEASURING URANIUM IN GROUNDWATER.....	297
ЗАШТИТА ОД ЗРАЧЕЊА У МЕДИЦИНИ RADIATION PROTECTION IN MEDICINE.....	298
ANALIZA RASEJANJA ZRAČENJA OD ZAUSTAVLJAČA SNOPA KOD LINEARNIH MEDICINSKIH AKCELERATORA	299
ANALYSIS OF RADIATION SCATTERING FROM BEAM STOPPERS AT LINEAR MEDICAL ACCELERATORS	305
UNAPREĐENJE ZAŠTITE MEDICINSKOG OSOBLJA KOJE UČESTVUJE U FLUOROSKOPSKI VOĐENIM INTERVENTNIM PROCEDURAMA UVOĐENJEM POLUAUTOMATSKOG SISTEMA UPRAVLJANJA VISEĆIM ZAŠTITNIM EKCRANOM.....	306
IMPROVING THE PROTECTION OF MEDICAL STAFF PARTICIPATING IN FLUOROSCOPICALLY GUIDED INTERVENTIONAL PROCEDURES BY INTRODUCING A SEMI-AUTOMATIC SYSTEM FOR MANAGING A CEILING-SUSPENDED PROTECTIVE SCREEN	312
NOVI PRISTUP U KONSTRUKCIJI ZAŠTITE U BRAHITERAPIJI-BRAHITERAPIJSKA KOMORA	313
A NEW APPROACH IN THE CONSTRUCTION OF PROTECTION IN BRACHYTHERAPY – BRACHYTHERAPY CHAMBER.....	320
EKSPERIMENTALNI MODEL ZA PROCENU MOGUĆEG RADIOPROTEKTIVNOG EFEKTA BILJNOG EKSTRAKTA	321
EXPERIMENTAL MODEL FOR ASSESSING THE POSSIBLE RADIOPROTECTIVE EFFECT OF PLANT EXTRACT	327
CT PROTOKOL I VRIJEDNOSTI DOZA ZA PREGLED UROGRAFIJE.....	328
CT PROTOCOL AND DOSE VALUES FOR UROGRAPHY EXAMINATION	334
STANJE RENDGEN-APARATA U DIJAGNOSTIČKOJ RADIOLOGIJI U CRNOJ GORI.....	335
THE CONDITION OF X-RAY MACHINES IN DIAGNOSTIC RADIOLOGY IN MONTENEGRO	341
VALIDACIJA ITLC METODE ZA ODREĐIVANJE SADRŽAJA RADIOHEMIJSKE NEČISTOĆE C U ^{99m} Tc-MIBI INJEKCIJI	342
VALIDATION OF AN ITLC METHOD FOR THE DETERMINATION OF RADIOCHEMICAL IMPURITIES C IN ^{99m} Tc-MIBI INJECTION.....	349
METODA ISPITIVANJA FIZIOLOŠKE RASPODELE ^{99m} Tc-DPD.....	350
METHOD FOR INVESTIGATION OF PHYSIOLOGICAL DISTRIBUTION OF ^{99m} Tc DPD	355
AUTOMATIZACIJA PROCESA PROIZVODNJE RADIOFARMACEUTIKA U CILJU SMANJENJA DOZE ZRAČENJA OPERATERA.....	356

AUTOMATION OF THE PRODUCTION OF RADIOPHARMACEUTICAL WITH THE AIM TO REDUCE THE OPERATOR'S RADIATION DOSE	360
ДОЗИМЕТРИЈА DOSIMETRY	361
USPOSTAVLJANJE ETALONSKOG POLJA ZA MALE VREDNOSTI JAČINE DOZNOG EKVIVALENTA.....	362
ESTABLISHING CALIBRATION FIELD FOR SMALL VALUES OF DOSE EQUIVALENT RATE....	368
EVALUATION OF DIAGNOSTIC RADIOLOGY DETECTOR PERFORMANCE IN REFERENCE MAMMOGRAPHY RADIATION FIELDS	369
EVALUACIJA PERFORMANSI DETEKTORA ZA DIJAGNOSTIČKU RADIOLOGIJU U REFERENTNIM POLJIMA ZRAČENJA ZA MAMMOGRAFIJU	375
PROVERA RADIOTERAPIJSKIH USTANOVA SRBIJE OD 2019. DO 2022. GODINE POŠTANSKOM DOZIMETRIJOM U VELIČINI APSORBOVANA DOZA U VODI.....	376
POSTAL DOSIMETRY AUDIT OF RADIOTHERAPY CENTERS IN SERBIA FOR THE PERIOD FROM 2019. TO 2022. IN TERMS OF ABSORBED DOSE TO WATER	381
THE INFLUENCE OF COMPRESSION PADDLE POSITIONING ON HVL MEASUREMENTS IN MAMMOGRAPHY	382
UTICAJ POZICIJE KOMPRESIJE PAPUČICE NA HVL MERENJA U MAMMOGRAFIJI	386
PRIMENA TL DOZIMETARA ZA ISPITIVANJE TAČNOSTI ISPORUČENE DOZE U OZRAČIVAČU KRVI	387
APPLICATION OF TL DOSIMETERS FOR TESTING THE ACCURACY OF DELIVERED DOSE IN BLOOD IRRADIATOR	393
БИОЛОШКИ ЕФЕКТИ ЈОНИЗУЈУЋИХ ЗРАЧЕЊА BIOLOGICAL EFFECTS OF IONIZING RADIATION	394
SINTEZA LUTECIJUMA(III) KOMPLEKSA SA POLIAZAMAKROCIKLIČNIM LIGANDOM	395
SYNTHESIS OF LUTETIUM(III) COMPLEX WITH A POLYAZAMACROCYCLIC LIGAND.....	400
ANTIOKSIDATIVNI I RADIOPROTEKTIVNI EFEKAT FLAVONOIDA NA UČESTALOST MIKRONUKLEUSA U HUMANIM LIMFOCITIMA	401
ANTIOXIDATIVE AND RADIOPROTECTIVE EFFECT OF FLAVONOIDS ON FREQUENCY OF MICRONUCLEI IN HUMAN LYMPHOCYTES	405
PROMENE GENETIČKOG MATERIJALA U LIMFOCITIMA PERIFERNE KRVI IZLOŽENIH U VANREDNOM DOGAĐAJU NA GRANIČNOM PRELAZU BEZDAN.....	406
CYTOGENETIC CHANGES IN PERIPHERAL BLOOD LYMPHOCYTES OF THE EXPOSED PERSONS IN THE EMERGENCY EVENT AT THE BORDER CROSSING BEZDAN	410
ANALIZA ZDRAVSTVENOG STANJA RADNIKA NA CARINSKOM PRELAZU AKCIDENTALNO IZLOŽENIH RADIOAKTIVNOM ZRAČENJU	411
ANALYSIS OF THE HEALTH CONDITION AFTER THE EMERGENCY EVENT AT BEZDAN BORDER CROSSING	416
THE EFFECT OF HONEY ON MALONDIALDEHYDE LEVEL IN PLASMA EXPOSED TO A THERAPEUTIC DOSE OF RADIATION.....	417
DELOVANJE MEDA NA NIVO MALONDIALDEHIDA U PLAZMI IZLOŽENOJ TERAPIJSKOJ DOZI ZRAČENJA.....	423
OKSIDATIVNI STATUS KOD PACIJENATA OBOLELIH OD DOBRO DIFERENTOVANIH KARCINOMA ŠTITASTE ŽLEZDE NAKON TERAPIJE ¹³¹ I.....	424
OXIDATIVE STATUS IN PATIENTS SUFFERED FROM WELL DIFFERENTIATED THYROID CARCINOMA AFTER ¹³¹ I THERAPY.....	429

РАДИОАКТИВНИ ОТПАД И ДЕКОНТАМИНАЦИЈА RADIOACTIVE WASTE AND DECONTAMINATION.....430

BEZBEDNO UPRAVLJANJE ZATVORENIM IZVORIMA JONIZUJUĆEG ZRAČENJA: MOGUĆI PRISTUPI, RUKOVANJE, KONDICIONIRANJE I SKLADIŠTENJE	431
SAFE MANAGEMENT OF SEALED RADIOACTIVE SOURCES: POSSIBLE APPROACHES, HANDLING, CONDITIONING AND STORAGE	438
EFIKASNOST I KAPACITET SORPCIJE JONA BA^{2+} ZEOLITOM 4A I PRIRODNIM KLINOPTILOLITOM I UTICAJ KOMPETICIJE SA JONIMA SR^{2+}	439
EFFICIENCY AND CAPACITY OF BA^{2+} IONS SORPTION BY ZEOLITE 4A AND NATURAL KLINOPTILOLITE AND INFLUENCE OF COMPETING SR^{2+} IONS.....	444
PREGLED POTENCIJALNIH PRIMENA OTPADNOG STAKLA EKRANA U MALTER-MATRIKSU ZA IMOBILIZACIJU TEČNOG RADIOAKTIVNOG OTPADA	445
OVERVIEW OF POTENTIAL APPLICATIONS OF SCREEN WASTE GLASS IN MORTAR-MATRIX FOR LIQUID RADIOACTIVE WASTE IMMOBILIZATION	451
ПРОБНИ РАД ПОСТРОЈЕЊА ЗА ПРЕРАДУ РАДИОАКТИВНОГ ОТПАДА БЕЗ РАДИОАКТИВНИХ И НУКЛЕАРНИХ МАТЕРИЈАЛА	452
TRIAL OPERATION OF THE RADIOACTIVE WASTE PROCESSING FACILITY WITHOUT RADIOACTIVE AND NUCLEAR MATERIALS	460
UPRAVLJANJE RADIOAKTIVNIM OTPADOM INSTITUTA ZA ONKOLOGIJU I RADIOLOGIJU SRBIJE	461
RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT OF THE INSTITUTE FOR ONCOLOGY AND RADIOLOGY OF SERBIA	468

РЕГУЛАТИВА, ЕДУКАЦИЈА И ЈАВНО ИНФОРМИСАЊЕ REGULATION, EDUCATION AND PUBLIC INFORMATION.....469

PRIMENA KAZNENIH MERA U INSPEKCIJSKOM NADZORU	470
APPLICATION OF PENALTIES IN INSPECTION OVERSIGHT	476
TERMINOLOGIJA U OBLASTI RADIJACIONE I NUKLEARNE SIGURNOSTI I BEZBEDNOSTI – IZAZOVI.....	477
TERMINOLOGY IN THE FIELD OF RADIATION AND NUCLEAR SAFETY AND SECURITY – CHALLENGES	482
BEZBEDNOSNI IZAZOVI USLED POJAVE FALSIFIKOVANIH, LAŽNIH I SUMNJIVIH PREDMETA U LANCU NUKLEARNOG SNABDEVANJA	483
SECURITY CHALLENGES DUE TO THE APPEARANCE OF COUNTERFEIT, FAKE AND SUSPICIOUS ITEMS IN THE NUCLEAR SUPPLY CHAIN.....	488
UNAPREĐENJE REGULATORNOG OKVIRA U OBLASTI PRIMENE IZVORA ZRAČENJA U MEDICINI.....	489
IMPROVEMENT OF THE REGULATORY FRAMEWORK IN THE FIELD OF APPLICATION OF RADIATION SOURCES IN MEDICINE.....	495
GENERALNA PREVENCIJA ILEGALNE TRGOVINE RADIOAKTIVNIH MATERIJALA	496
GENERAL PREVENTION OF RADIOACTIVE MATERIALS ILLICIT TRAFFICKING.....	508

НЕЈОНИЗУЈУЋА ЗРАЧЕЊА NON-IONIZING RADIATION509

UTICAJ EVOLUCIJE MOBILNIH TEHNOLOGIJA NA IZLAGANJE LJUDI EM POLJIMA	510
THE INFLUENCE OF THE EVOLUTION OF MOBILE TECHNOLOGIES ON THE EXPOSURE OF PEOPLE TO EM FIELDS	518
ФОТОТЕРАПИЈА ЗА НЕОНАТАЛНУ ХИПЕРБИЛИРУБИНЕМИЈУ	519
PHOTOTHERAPY FOR NEONATAL HYPERBILIRUBINEMIA	525