

UNIVERZITET CRNE GORE
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET

Nikola Svrkota

**RAZVOJ KOINCIDENTNIH METODA MJERENJA NA
VIŠEDETEKTORSKIM GAMA-SPEKTROMETRIMA**
DOKTORSKA DISERTACIJA

Podgorica, 2013

UNIVERZITET CRNE GORE
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET

Nikola Svrkota

**RAZVOJ KOINCIDENTNIH METODA MJERENJA NA
VIŠEDETEKTORSKIM GAMA-SPEKTROMETRIMA**

DOKTORSKA DISERTACIJA

Podgorica, 2013

Za Slađanu, Ivu i Miloša

PODACI I INFORMACIJE O DOKTORANTU

Ime i prezime doktoranta:	Nikola Svrkota
Datum i mjesto rođenja:	28. 10. 1976. godine, Bar
Naziv završenog postdiplomskog studijskog programa i godina završetka:	Primijenjena fizika (Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet Crne Gore), 2007

INFORMACIJE O DOKTORSKOJ DISERTACIJI

Naziv doktorskih studija:	Doktorski studijski program Fizika
Naslov teze:	Razvoj koincidentnih metoda mjerenja na višedetektorskim gama-spektrometrima
Fakultet na kojem je disertacija odbranjena:	PMF

UDK, OCJENA I ODBRANA DOKTORSKE DISERTACIJE

Datum prijave doktorske teze:	02. 02. 2010.
Datum sjednice Senata Univerziteta Crne Gore na kojoj je prihvaćena teza:	13. 04. 2010.
Komisija za ocjenu podobnosti teze i kandidata:	prof. dr Perko Vukotić prof. dr Nevenka Antović prof. dr Slobodan Jovanović
Mentor:	prof. dr Nevenka Antović
Komisija za ocjenu doktorske disertacije:	prof. dr Ištvan Bikit prof. dr Nevenka Antović prof. dr Perko Vukotić prof. dr Jovan Mirković prof. dr Laštovički – Medin
Komisija za odbranu doktorske disertacije:	prof. dr Ištvan Bikit prof. dr Nevenka Antović prof. dr Perko Vukotić prof. dr Jovan Mirković prof. dr Laštovički – Medin
Lektor:	Zuvdija Hodžić
Datum odbrane :	19. 12. 2013.
Datum promocije:	

Predgovor

Ova doktorska disertacija predstavlja nastavak istraživanja započetih pri izradi magistarskog rada „Određivanje aktivnosti torijuma i produkata njegovog raspada metodom dvostrukih koincidencija“, na Prirodno-matematičkom fakultetu Univerziteta Crne Gore (2007. godine), a čiji su rezultati objavljeni u:

Antovic N., Svrkota N., Vukotic P.: „Thorium measurement by the six-crystal spectrometer PRIPYAT-2M“, *Radiation Measurements* (ISSN 1350-4487), 2008, 43(9-10), 1558-1562;

uz saopštenja na naučnim skupovima:

Nikola Svrkota, Bernard Berišaj, Tomislav Andelić, Ranko Zekić, Perko Vukotić i Nevenka Antović: „Minimalna detektibilna aktivnost torijuma u režimu dvostrukih koincidencija na spektrometru PRIPJAT-2M“, *XXIV simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore*, Zlatibor – Srbija, 03-05. X, 2007, str. 319-323,

N. Svrkota and N. Antovic: „Efficiency of ^{232}Th detection by the six-crystal spectrometer PRIPYAT-2M“, *6th Conference on Nuclear and Particle Physics*, Luxor, Egypt, November 17-21, 2007, Book of Abstracts, pp. 32-33, i

Nevenka Antovic, Perko Vukotic and Nikola Svrkota: „A coincidence method of thorium measurement“, *Proceedings of the IRPA 12 (12th International Congress of the International Radiation Protection Association) Strengthening Radiation Protection Worldwide*, Buenos Aires – Argentina, October 19-24, 2008, TSI.1.1, pp. 1-7. www.irpa12.org.ar.

Istraživanje je podrazumijevalo usavršavanje postojećih i razvoj novih metoda mjerenja radionuklida preko njihovih kaskadnih gama prelaza različitih višestrukosti, sa namjerom da oni budu primjenljivi u drugim oblastima, u prvom redu u radioekologiji i zaštiti životne sredine, tim prije što su i prethodna istraživanja ukazivala na mogućnost primjene 4π spektrometra gama koincidencija za mjerenje i različite analize radioaktivnosti u uzorcima iz životne sredine, uključujući uzorke različite prirode i porijekla.

Nakon detaljnih analiza dostupne literature, šema raspada radionuklida i slično, te nakon adaptacije spektrometra PRIPJAT-2M (spektrometar tipa PRIPJAT koji se nalazi u laboratoriji za nuklearnu spektrometriju Prirodno-matematičkog fakulteta u Podgorici) za rad u režimu koincidencija različitih višestrukosti (uz mogućnost izbora energetskog opsega), analizirani su

fonski uslovi, kao i svi dostupni režimi rada, izabrani su optimalni režimi mjerenja različitih radionuklida, a zatim razvijeni koincidentni metodi mjerenja ^{226}Ra , ^{232}Th , uključujući njihovo istovremeno mjerenje, kao i istovremeno mjerenje ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th (tj. njihovih potomaka); i isti, u saradnji sa biologom/ekologom, primijenjeni u radioekologiji i zaštiti životne sredine (vezano za područje Crne Gore). Urađena su poređenja dobijenih rezultata sa rezultatima koji su dobijeni pomoću HPGe detektora u Centru za ekotoksikološka ispitivanja u Podgorici (akreditovanom za gama spektrometrijska ispitivanja po standardu MEST ISO 17025).

Razmatrane su mogućnosti detekcije ostalih radionuklida iz niza raspada ^{238}U , radionuklida iz trećeg prirodnog niza (^{235}U), a razvijan je i radiometrijski režim mjerenja za spektrometre tipa PRIPJAT.

Sprovedena istraživanja otvorila su niz pitanja koja treba da budu predmet budućih istraživanja. Takođe, istraživanja samo započeta u okviru ove doktorske disertacije (problem samoapsorpcije gama zračenja, zavisnost efikasnosti detekcije i osjetljivosti uređaja od pozicije izvora unutar detekcione komore, itd.), treba da budu nastavljena, kao i modifikacija, započeta sa ciljem da se karakteristike sistema poboljšaju, a njegove mogućnosti prošire.

Istraživanja su realizovana u okviru projekta „Razvoj koincidentnog metoda mjerenja na višedetektorskom spektrometru PRIPJAT-2M”, koji je finansiran od strane Ministarstva nauke (Ugovor br. 05-1/3-3354), u periodu 2008-2011. godine.

Izvod

Opsežna istraživanja sprovedena na šest-detektorskom 4π spektrometru γ -koincidencija PRIPJAT-2M, pokazala su da je optimalni režim mjerenja ^{137}Cs i ^{40}K – nekoincidentni, dok je za mjerenje produkata raspada ^{226}Ra i ^{232}Th optimalni režim – režim dvostrukih koincidencija. U energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, eksperimentalna fotoefikasnost detekcije ^{137}Cs i ^{40}K (tj. gama zraka energije 662 keV i 1460 keV, respektivno) u nekoincidentnom režimu rada iznosi 0.236 i 0.137, respektivno. Za 1000 s realnog vremena, minimalna detektibilna aktivnost cezijuma i kalijuma je 0.64 Bq i 0.76 Bq, respektivno. U isto vrijeme, mjerenje ^{226}Ra (kada je radioaktivnoj ravnoteži sa potomcima) zasnovano je na detekciji gama zraka koji prate β^- -raspad ^{214}Bi , tj. gama zraka energije 609 keV – u integralnom, nekoincidentnom i koincidentnim režimima rada, a eksperimentalna fotoefikasnost u režimu dvostrukih koincidencija iznosi 0.103 (minimalna detektibilna aktivnost je 0.9 Bq, za 500 s realnog vremena mjerenja). Detekcija ^{232}Th , u ravnoteži sa potomcima, zasnovana je na registraciji gama zraka energije 911 keV (iz β^- -raspada ^{228}Ac) – u integralnom i nekoincidentnom režimu rada, ali i zraka energije 583 keV i 2615 keV (iz β^- -raspada ^{208}Tl) – u režimu dvostrukih koincidencija, sa eksperimentalnom efikasnošću registracije u fotopiku – 0.082 i 0.013, respektivno (dok je minimalna detektibilna aktivnost, za 1000 s realnog vremena, 0.74 Bq i 1.95 Bq, respektivno).

Primjenjujući razvijene metode urađene su radioekološke studije (uzorci iz južnog Jadranskog mora – morska voda, sediment, mulj sa detritusom, morska trava, ribe; zemljište i pijesak sa crnogorskog primorja; zemljište i uzorci vegetacije – stablo kupine, lišće smreke, kora bukve, cvekla i šargarepa, sa sjevera Crne Gore). Takođe je razmatrana mogućnost detekcije ostalih produkata raspada ^{238}U , ali i radionuklida iz niza ^{235}U , kao i radiometrijski režim spektrometara tipa PRIPJAT – u kojem je efikasnost detekcije veća, a vrijeme mjerenja kraće (za red veličine) nego u spektrometrijskom režimu mjerenja.

Izvod

Opsežna istraživanja sprovedena na šest-detektorskom 4π spektrometru γ -koincidencija PRIPJAT-2M, pokazala su da je optimalni režim mjerenja ^{137}Cs i ^{40}K – nekoincidentni, dok je za mjerenje produkata raspada ^{226}Ra i ^{232}Th optimalni režim – režim dvostrukih koincidencija. U energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, eksperimentalna fotoefikasnost detekcije ^{137}Cs i ^{40}K (tj. gama zraka energije 662 keV i 1460 keV, respektivno) u nekoincidentnom režimu rada iznosi 0.236 i 0.137, respektivno. Za 1000 s realnog vremena, minimalna detektibilna aktivnost cezijuma i kalijuma je 0.64 Bq i 0.76 Bq, respektivno. U isto vrijeme, mjerenje ^{226}Ra (kada je radioaktivnoj ravnoteži sa potomcima) zasnovano je na detekciji gama zraka koji prate β^- -raspad ^{214}Bi , tj. gama zraka energije 609 keV – u integralnom, nekoincidentnom i koincidentnim režimima rada, a eksperimentalna fotoefikasnost u režimu dvostrukih koincidencija iznosi 0.103 (minimalna detektibilna aktivnost je 0.9 Bq, za 500 s realnog vremena mjerenja). Detekcija ^{232}Th , u ravnoteži sa potomcima, zasnovana je na registraciji gama zraka energije 911 keV (iz β^- -raspada ^{228}Ac) – u integralnom i nekoincidentnom režimu rada, ali i zraka energije 583 keV i 2615 keV (iz β^- -raspada ^{208}Tl) – u režimu dvostrukih koincidencija, sa eksperimentalnom efikasnošću registracije u fotopiku – 0.082 i 0.013, respektivno (dok je minimalna detektibilna aktivnost, za 1000 s realnog vremena, 0.74 Bq i 1.95 Bq, respektivno).

Primjenjujući razvijene metode uradene su radioekološke studije (uzorci iz južnog Jadranskog mora – morska voda, sediment, mulj sa detritusom, morska trava, ribe; zemljište i pijesak sa crnogorskog primorja; zemljište i uzorci vegetacije – stablo kupine, lišće smreke, kora bukve, cvekla i šargarepa, sa sjevera Crne Gore). Takode je razmatrana mogućnost detekcije ostalih produkata raspada ^{238}U , ali i radionuklida iz niza ^{235}U , kao i radiometrijski režim spektrometara tipa PRIPJAT – u kojem je efikasnost detekcije veća, a vrijeme mjerenja kraće (za red veličine) nego u spektrometrijskom režimu mjerenja.

Abstract

Comprehensive research on the six-crystal 4π spectrometer of γ -coincidences PRIPYAT-2M, showed that optimal mode of measuring ^{137}Cs and ^{40}K is non-coincidence one, while an optimal mode for measuring decay products of ^{226}Ra and ^{232}Th is the mode of double coincidences. In the energy range from 300 to 3000 keV, experimental photopeak detection efficiency of ^{137}Cs and ^{40}K (i.e., gamma rays with energy 662 keV and 1460 keV, respectively), in the non-coincidence mode of counting, is 0.236 and 0.137, respectively. For 1000 s real measuring time, the minimum detectable activity of cesium and potassium is found to be 0.64 and 0.76 Bq, respectively. At the same time, ^{226}Ra measurement (when it is in radioactive equilibrium with decay products) is based on detecting gamma rays which follow β^- -decay of ^{214}Bi , i.e., gamma rays with energy 609 keV – in the integral, non-coincidence and coincidence modes of counting, and experimental photopeak detection efficiency in the mode of double coincidences is found to be 0.103 (minimum detectable activity – 0.9 Bq, for 500 s real measuring time). Thorium-232 (in radioactive equilibrium with its decay products) detection is based on registering 911 keV gamma rays (from β^- -decay of ^{228}Ac) – in the integral and non-coincidence mode of counting, but also the 583 and 2615 keV gamma rays (from β^- -decay of ^{208}Tl) – in the mode of double coincidences, with experimental photopeak detection efficiency – 0.082 and 0.013, respectively (minimum detectable activity, for 1000 s real measuring time – 0.74 and 1.95 Bq, respectively).

By applying developed methods radioecological studies have been performed (samples from the South Adriatic Sea – seawater, sediment, mud with detritus, seagrass, fish; soil and sand from the Montenegrin Coast; soil and vegetation samples – stem of blackberry, leaves of spruce, bark of beech, red beet and carrot, from northern Montenegro). A possibility to detect the other ^{238}U decay products, but also radionuclides from ^{235}U series is also considered, as well as the radiometric mode of the PRIPYAT spectrometers – in which detection efficiency is higher and measuring time shorter (for an order of magnitude) in compare to the spectrometric mode of counting.

S a d r Ź a j

1. UVOD	9
1.1. Mjerenje prirodnih radionuklid	9
<i>1.1.1. Koincidentna detekcija zračenja</i>	<i>10</i>
2. TRI PRIRODNA RADIOAKTIVNA NIZA	13
2.1. Šema raspada ^{238}U	13
2.2. Šema raspada ^{235}U	21
2.3. Šema raspada ^{232}Th	26
3. SPEKTROMETAR PRIPJAT-2M	32
3.1. Karakteristike spektrometra	32
<i>3.1.1. Konstrukcija spektrometra</i>	<i>32</i>
<i>3.1.2. Blok šema i princip rada spektrometara tipa PRIPJAT</i>	<i>33</i>
3.2. Softver PRIP	35
<i>3.2.1. Režimi rada spektrometra</i>	<i>35</i>
<i>3.2.2. Kalibracija spektrometra PRIPJAT-2M</i>	<i>36</i>
3.3. Brzina brojanja fonskih impulsa	38
3.4. Osjetljivost spektrometra	41
3.5. Registracija koincidencija	43
<i>3.5.1. Slučajne koincidencije</i>	<i>43</i>
<i>3.5.2. Efikasnost koincidentne detekcije zračenja</i>	<i>44</i>
<i>3.5.3. Suming efekt</i>	<i>47</i>
4. IZBOR OPTIMALNOG REŽIMA MJERENJA RADIONUKLIDA	50
4.1. Fon u oblasti fotopikova u različitim energetske opsezima i režimima rada spektrometra	51
4.2. Detekcija ^{226}Ra i ^{232}Th	52
<i>4.2.1. Prve detekcije ^{226}Ra i ^{232}Th, nakon omogućavanja izbora različitih energetske opsega i razdvajanja koincidencija različitih višestrukosti</i>	<i>52</i>
<i>4.2.2. Nekoliko poređenja sa rezultatima softverskih analiza – kao ilustracija</i>	<i>65</i>
4.3. Detekcija ^{137}Cs i ^{40}K	70

5. KOINCIDENTNI METOD MJERENJA RADIJUMA-226	75
5.1. Selekcija kaskadnih prelaza i koincidencija	75
5.2. Efikasnost detekcije i minimalna detektibilna aktivnost ^{226}Ra	78
5.2.1. Testiranje metoda i poređenje sa standardnim (HPGe) metodom	86
5.3. Primjena koincidentnog metoda mjerenja radijuma-226 u radioekologiji	87
5.3.1. Uzorci i mjerenje	89
5.3.1.1. Zemljište i pijesak	89
5.3.1.2. Uzorci iz južnog Jadranskog mora	91
5.3.1.2.1. <i>Liza aurata</i>	92
5.3.2. Rezultati i diskusija	93
5.3.2.1. Zemljište i pijesak	93
5.3.2.2. Uzorci iz južnog Jadranskog mora – voda, sediment, morska trava, mulj sa detritusom i <i>L. aurata</i>	95
5.4. Razmatranje mogućnosti detekcije drugih produkata raspada ^{238}U	98
6. KOINCIDENTNI METOD MJERENJA TORIJUMA-232	101
6.1. Selekcija kaskadnih prelaza i koincidencija	101
6.2. Efikasnost detekcije i minimalna detektibilna aktivnost ^{232}Th	104
6.2.1. Određivanje aktivnosti ^{232}Th u uzorku zemljišta	108
6.3. Mjerenje torijuma u uzorcima različite gustine	110
6.4. Primjena koincidentnog metoda mjerenja torijuma-232 u ispitivanju marinske životne sredine	113
6.4.1. Rezultati i diskusija	114
6.4.1.1. Uzorci iz južnog Jadranskog mora – voda, sediment, morska trava, mulj sa detritusom, <i>M. cephalus</i>	118
7. ISTOVREMENA DETEKCIJA RADIJUMA I TORIJUMA SPEKTROMETROM PRIPJAT-2M	122
7.1. Uzorci zemljišta i vegetacije	123
7.2. Dalje radioekološke studije	127
8. ISTOVREMENA DETEKCIJA CEZIJUMA, KALIJUMA RADIJUMA I TORIJUMA	130

8.1. Problemi pri mjerenju ^{137}Cs, ^{226}Ra, ^{232}Th u uzorku	130
8.1.1. Aktivnost ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorku zemljišta	131
8.1.2. Aktivnost ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorku kore bukve (<i>F. sylvatica</i>)	134
8.1.3. Aktivnost ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorku ribe (<i>C. labrosus</i>)	135
9. RAZMATRANJE MOGUĆNOSTI DETEKCIJE PRODUKATA RASPADA ^{235}U	137
10. RADIOMETRIJSKI REŽIM SPEKTROMETRA	145
10.1. Radiometrijski režim rada	145
10.1.1. Softver PRIP	145
10.1.2. Osnovi matričnog metoda	147
10.2. Mjerenje izvora ^{232}Th	149
11. ZAVISNOST EFIKASNOSTI REGISTRACIJE I OSJETLJIVOSTI SPEKTROMETRA OD POZICIJE IZVORA, SAMOAPSORPCIJA – POČETNA ISTRAŽIVANJA	153
11.1. Promjene u brzini brojanja šestog detektora – u zavisnosti od pozicije izvora	153
11.2. Problem samoapsorpcije gama zračenja	161
12. PROŠIRENJE MOGUĆNOSTI SPEKTROMETRA – BUDUĆA ISTRAŽIVANJA	164
12.1. Moguće buduće modifikacije sistema, i modifikacija koja je u toku	164
12.2. Nekoliko poređenja rezultata gama i alfa spektrometrijskih mjerenja	167
13. ZAKLJUČAK	170
<i>Literatura</i>	176

1. UVOD

Mnoga i raznovrsna istraživanja, kao što su istraživanja rijetkih interakcija i raspada, kaskadnih prelaza, zračenja slabih intenziteta i slično, omogućena su ili poboljšana upotrebom višedetektorskih sistema koji imaju 4π geometriju. Predstavnik ovih sistema je, na primjer, spektrometar *Crystal Ball*, konstruisan 1978. godine za izučavanje e^+e^- sudara, a čiji je prostorni ugao $0.98 \cdot 4\pi$ sr [1]. Uslijedili su *Plastic Ball* – sa 815 modula sa plastičnim scintilatorima (koji daju prostorni ugao $0.97 \cdot 4\pi$ sr) [2], Romaška sa 12 i 46 modula sa NaI(Tl) detektorima [3], ARGUS sa 32 NaI(Tl) detektora [4], *Dwarf ball* sa 72 plastična scintilatora i unutrašnjim dijametrom 43.2 mm [5], PRIPJAT – sa 6 NaI(Tl) detektora [6], itd. Danas u svijetu postoji veliki broj instrumenata ove vrste, koji se i dalje unapreduju i koriste u raznim oblastima nauke. Među njima, posebnu grupu čine spektrometri koincidencija, pomoću kojih je, između ostalog, moguće dobiti informacije i o ugaonim γ - γ korelacijama. Oni omogućavaju ispitivanja kaskada γ -zračenja, šema raspada, rijetkih nuklearnih procesa, uključujući i rijetke raspade atoma pozitronijuma [7, 8] i testiranje fundamentalnih zakonitosti [9].

Upravo ovoj grupi pripada 4π spektrometar gama koincidencija PRIPJAT-2M, koji se nalazi u Laboratoriji za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore. Spektrometar je konstruisan 1994. godine na Institutu za fiziku Akademije nauka Bjelorusije u Minsku, i služi za γ -spektrometrijska mjerenja.

Dosadašnja istraživanja sprovedena na ovom spektrometru pokazala su da je razvoj novih (koincidentnih) metoda mjerenja moguć, i može obezbijediti napredak u oblasti gama spektrometrije. Ovi metodi treba da budu primjenljivi na svim višedetektorskim spektrometrima sa NaI(Tl) detektorima koji imaju 4π geometriju mjerenja, ali (uz određenu modifikaciju) i u slučaju ostalih višedetektorskih γ -spektrometrijskih sistema.

1.1. Mjerenje prirodnih radionuklida

Pored radionuklida koji pripadaju radioaktivnim nizovima ($^{232}\text{Th} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$, $^{238}\text{U} \rightarrow ^{206}\text{Pb}$, $^{235}\text{U} \rightarrow ^{207}\text{Pb}$), u životnoj sredini postoje i drugi prirodni radioizotopi (na primjer ^{40}K), kao i oni vještački kreirani.

Mjerenje aktivnosti radionuklida (u uzorcima iz životne sredine, na primjer) vršilo se i vrši raznim uređajima i metodima. Za različita mjerenja, na primjer ^{232}Th , ^{226}Ra i drugih potomaka ^{238}U , često su korišćeni masena spektrometrija (ICP – MS) [10-12], X-spektrometrija (zasnovana, na primjer, na reakciji $^{232}\text{Th}(\gamma, n)^{231}\text{Th}$, a zatim snimanju X-zraka ^{231}Th energije 25.65 keV) [13], neutronska aktivaciona analiza [14, 15], Čerenkovljev brojač [16], tečni scintilacioni brojač [17, 18], standardna α -spektrometrija [19-21], standardna γ -spektrometrija [22-28], ili neka kombinacija navedenih mjernih tehnika. Međutim, treba istaći da su najčešće korišćene α - i γ -spektrometrija. Uopšte govoreći, osim relativno dugog vremena mjerenja, navedene mjerne tehnike zahtijevaju dodatno vrijeme i napore za pripremu uzoraka i kalibraciona mjerenja za njihove različite konfiguracije. Ovo se odnosi na slučaj kada se jedan detektor koristi za detekciju zračenja.

U slučaju γ -spektrometrijske analize, u zavisnosti od karakteristika γ -prelaza (energije γ -zraka i njegovog relativnog intenziteta), korišćeni su različiti tipovi detektora (scintilacioni i poluprovodnički), kao i različiti mjerni metodi. Gama spektrometrijski moguće je određivati aktivnosti ^{40}K i velikog broja radionuklida iz nizova uranijuma i torijuma, ali i vještački kreiranog (fisionog produkta) ^{137}Cs , te još nekih radioekološki važnih izotopa. S druge strane, pouzdana direktna γ -spektrometrijska analiza teških, transuranijskih elemenata – nemoguća je zbog malih intenziteta spektralnih linija ovih izotopa. Njih je moguće analizirati sistemima za α -spektrometriju, ili pak (nakon odgovarajućih analiza) utvrđivati korelacione koeficijente između njih i γ -emitera, a zatim koristiti γ -spektrometrijske sisteme.

1.1.1. Koincidentna detekcija zračenja

Ukoliko se tokom radioaktivnog raspada emituje nekoliko čestica (zraka) i ukoliko se posjeduje sistem sa većim brojem detektora, moguće je primijeniti tehnike zasnovane na koincidentnoj (istovremenoj, u granicama vremena rezolucije sistema) detekciji. U većini slučajeva, ove tehnike dozvoljavaju značajno smanjenje minimalne detektibilne aktivnosti radionuklida i unapređenje odnosa signal/šum, tj. fon [29]. Tako, na primjer, razvijen je jednostavan metod za mjerenje ^{226}Ra u uzorcima iz životne sredine, koristeći α - β koincidencije i tečni scintilacioni brojač [30]; indirektni metod brojanja γ - γ koincidencija [31], ali i metod

zasnovan na višedimenzionalnoj koincidentnoj γ -spektrometriji [32]. I za mjerenje ^{232}Th korišćeni su koincidentni metodi [33, 34], uključujući i metod *zadržanih koincidencija* [35].

S druge strane, bez obzira na ranije korišćenje koincidentnih metoda, PRIPJAT-2M bio je među prvim 4π spektrometrima γ -koincidencija na kojima su razvijani koincidentni metodi za mjerenje prirodne radioaktivnosti – ^{222}Rn u vodi [36], ali i ^{232}Th [37, 38], što je zahtijevalo i da spektrometar bude adaptiran za rad u režimu čistih/izdvojenih dvostrukih koincidencija. Na primjer, metod mjerenja torijuma preko koincidentne registracija zračenja produkata njegovog raspada pokazao se kao efikasniji i osjetljiviji od (najčešće korišćenih) standardnih metoda [38]. Tome treba dodati 4π geometriju mjerenja, dobre fonske uslove, kao i mogućnost mjerenja uzoraka velike zapremine i proizvoljnog oblika. Iz istraživanja je postalo jasno da je za dalji razvoj koincidentnih metoda i proširenje mogućnosti spektrometra PRIPJAT-2M (kao i rješavanje problema koji se javljaju pri detekciji drugih prirodnih radionuklida, u prvom redu produkata raspada uranijuma), neophodno adaptirati spektrometar za rad u koincidentnim režimima do višestrukosti šest (budući da se radi o šestdetektorskom sistemu, čije će karakteristike biti predstavljene kasnije), kao i razviti nove (ili unaprijediti postojeće) metode mjerenja radioekološki važnih izotopa, čime bi se korišćenje spektrometra upotpunilo, a γ -spektrometrija unaprijedila.

Treba istaći da, kada se koriste tehnike zasnovane na koincidencijama, individualni detektori uključeni u višedetektorski sistem treba da imaju dobru efikasnost detekcije, i geometrijska efikasnost spektrometra mora biti što je moguće bliža 4π geometriji. Toj grupi γ -spektrometara pripadaju spektrometri tipa PRIPJAT [39], koji su se (zbog svojih karakteristika) pokazali kao pogodni za određivanje koncentracija aktivnosti produkata raspada prirodnih radionuklida [40]. Iz svih prethodnih istraživanja slijedi da razvoj novih (koincidentnih) metoda mjerenja pomoću ovih spektrometara može da obezbijedi značajne prednosti u odnosu na standardne metode koji se trenutno koriste (jednodetektorsku poluprovodničku γ -spektrometriju, na primjer), i to: veću efikasnost registracije γ -zraka i nižu minimalnu detektibilnu aktivnost radionuklida, kraće vrijeme mjerenja, kao i mogućnost mjerenja uzoraka relativno velike zapremine, proizvoljnog oblika i prirode, bez prethodne specifične pripreme i kalibracionih mjerenja za njihove različite geometrije.

Stoga, uz usavršavanje postojećih metoda za mjerenje radioaktivnosti pomoću 4π spektrometra gama koincidencija PRIPJAT-2M, osnovni cilj istraživanja u okviru ove doktorske disertacije bio je razvoj novih koincidentnih metoda – da bi se omogućila bolja detekcija

radionuklida prirodnog porijekla, ali i onih vještački stvorenih (na primjer onih koji su posljedica havarije u nuklearnoj elektrani Černobilj), ne samo ovim spektrometrom, nego i drugim višedetektorskim spektrometrima ovog ili sličnog tipa.

Iako istraživanje u prvom redu podrazumijeva razvoj novih metoda mjerenja radionuklida preko njihovih kaskadnih gama prelaza različitih višestrukosti, ono ima i radioekološki značaj, zbog mogućnosti primjene metoda za mjerenje i analiziranje radioaktivnosti u uzorcima iz životne sredine, uključujući uzorke vode i sedimenta, kao i uzorke biljnog i životinjskog porijekla.

2. TRI PRIRODNA RADIOAKTIVNA NIZA

Kao što je prethodno rečeno, postoje tri prirodna radioaktivna niza: $^{238}\text{U} \rightarrow ^{206}\text{Pb}$, $^{232}\text{Th} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ i $^{235}\text{U} \rightarrow ^{207}\text{Pb}$, u kojima se javlja 18, 10 i 15 radioizotopa, respektivno [41].

2.1. Šema raspada ^{238}U

U uranijumskom (uranijum-radijumskom) nizu $^{238}\text{U} \rightarrow ^{206}\text{Pb}$, javlja se osamnaest radioizotopa, nastalih nakon 13 α - i 11 β -raspada [41]. Navedeni raspad i su najčešće praćeni emisijom γ -zračenja, tako da se aktivnosti radionuklida iz ovog niza mogu određivati preko γ -linija karakterističnih za dati izotop. Radionuklidi koji pripadaju ovom nizu predstavljeni su u tabeli 2.1.1 i na slici 2.1.1, dok su u tabeli 2.1.2 predstavljeni intenzivniji gama prelazi koji prate raspade radionuklida u nizu.

Alfa raspadom ^{238}U nastaje jezgro ^{234}Th , i dešava se emisija dva γ -zraka energija 113.5 keV i 49.55 keV, čiji su relativni intenziteti 0.01 % i 0.064 %, respektivno. Beta minus raspad ^{234}Th (slika 2.1.2) daje jezgro protaktinijuma. Torijum-234 se prvo transformiše u $^{234\text{m}}\text{Pa}$ koji ima vrijeme poluraspada 1.17 minuta. Gama zraci koji prate β^- raspad ^{234}Th imaju energije koje se nalaze u intervalu od 10 keV do 184.8 keV, a samo tri zraka su intenziteta iznad 1 % (uz dva navedena u tabeli 2.1.2, i zrak energije 92.80 keV).

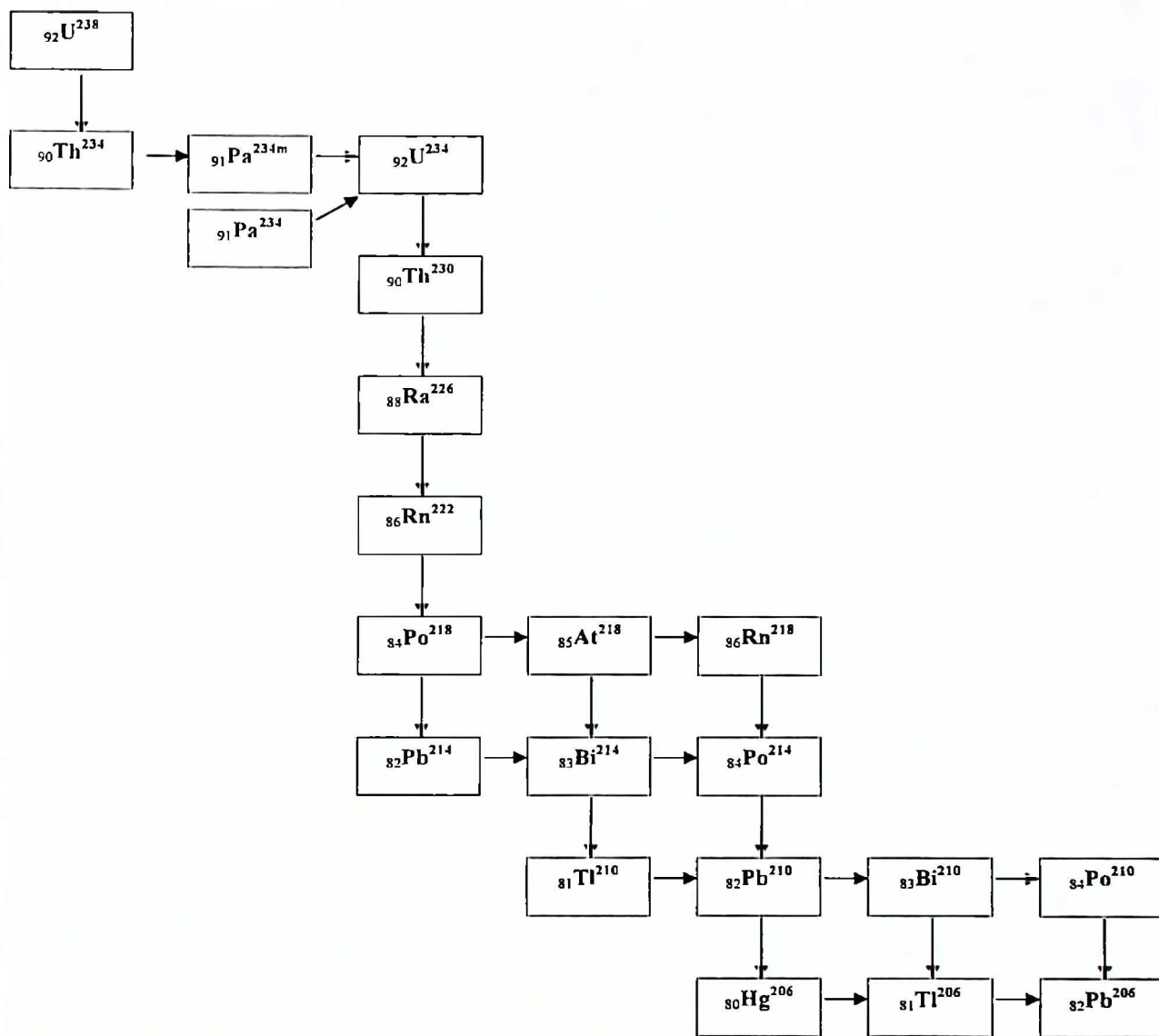
Treba napomenuti da se metastabilni protaktinijum raspada na dva načina, kao i da:

- o vjerovatnoća da se jezgro transformiše u ^{234}Pa je mala, i iznosi 0.16 %;
- o β^- -raspadom prelazi u ^{234}U , sa vjerovatnoćom 99.84 %.

Jezgro ^{234}U , koje nastaje transformacijom ^{234}Pa i $^{234\text{m}}\text{Pa}$, deekscituje uz emisiju 513 γ -zraka (372 zraka prate raspad ^{234}Pa , najveći intenzitet od 18 % ima zrak energije 131.3 keV, dok ukupno 48 zraka ima relativne intenzitete iznad 1 %; 141 gama zrak prati raspad $^{234\text{m}}\text{Pa}$, ali svaki je intenziteta < 1 %).

Tabela 2.1.1. Produkti raspada ^{238}U .

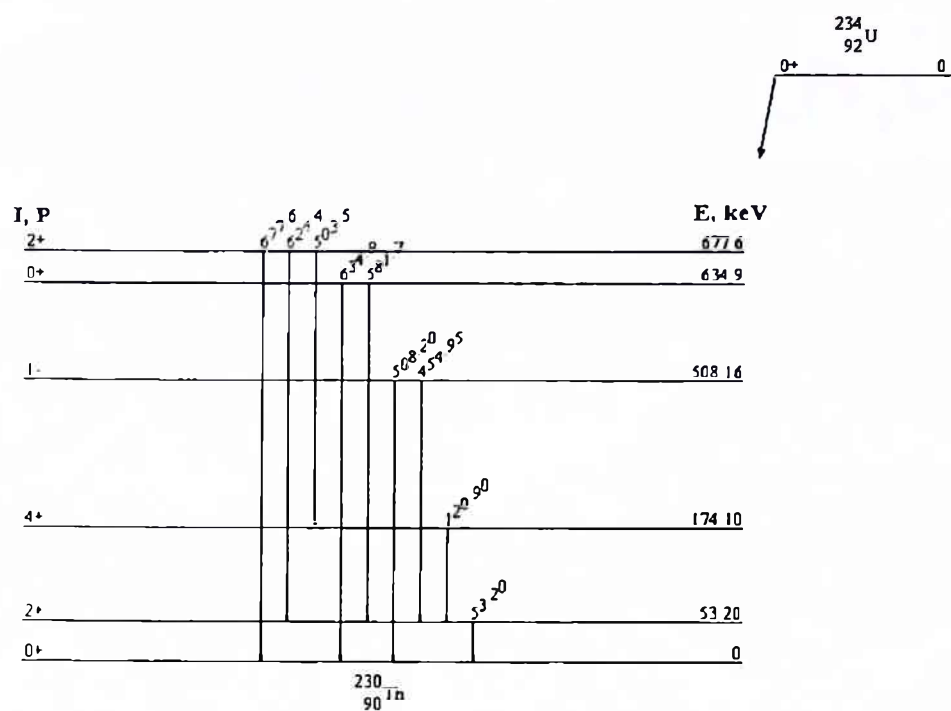
Nuklid	Naziv	Stari naziv	Raspad	$T_{1/2}$	Potomak
$^{92}_{92}\text{U}^{238}$	Uranijum-238	Uranijum	α	$4.468 \cdot 10^9$ g	$^{90}_{90}\text{Th}^{234}$
$^{90}_{90}\text{Th}^{234}$	Torijum-234	Uranijum X1	β^-	24.1 d	$^{91}_{91}\text{Pa}^{234m}$
$^{91}_{91}\text{Pa}^{234m}$	UX_2	Uranium X ₂ , Brevium	β^- : 99.84% IT: 0.16%	1.17 min	$^{92}_{92}\text{U}^{234}$ $^{91}_{91}\text{Pa}^{234}$
$^{91}_{91}\text{Pa}^{234}$	Protaktinijum-234	Uranijum Z	β^-	6.67 h	$^{92}_{92}\text{U}^{234}$
$^{92}_{92}\text{U}^{234}$	Uranijum-234	Uranijum 2	α	$2.455 \cdot 10^5$ g	$^{90}_{90}\text{Th}^{230}$
$^{90}_{90}\text{Th}^{230}$	Torijum-230	Jonijum	α	$7.538 \cdot 10^4$ g	$^{88}_{88}\text{Ra}^{226}$
$^{88}_{88}\text{Ra}^{226}$	Radijum-226	Radijum	α	1600 g	$^{86}_{86}\text{Rn}^{222}$
$^{86}_{86}\text{Rn}^{222}$	Radon-222	Radon	α	3.82 d	$^{84}_{84}\text{Po}^{218}$
$^{84}_{84}\text{Po}^{218}$	Polonijum-218	Radijum A	α : 99.98 % β^- : 0.02 %	3.1 min	$^{82}_{82}\text{Pb}^{214}$ $^{83}_{83}\text{At}^{218}$
$^{83}_{83}\text{At}^{218}$	Astatin-218	Eka-jodin	α : 99.9 % β^- : 0.1 %	1.5 s	$^{81}_{81}\text{Bi}^{214}$ $^{86}_{86}\text{Rn}^{218}$
$^{86}_{86}\text{Rn}^{218}$	Radon-218	Aktinon	α	35 ms	$^{84}_{84}\text{Po}^{214}$
$^{82}_{82}\text{Pb}^{214}$	Olovo-214	Radijum B	β^-	26.8 min	$^{83}_{83}\text{Bi}^{214}$
$^{83}_{83}\text{Bi}^{214}$	Bizmut-214	Radijum C	β^- : 99.979 % α : 0.021 %	19.9 min	$^{84}_{84}\text{Po}^{214}$ $^{81}_{81}\text{Tl}^{210}$
$^{84}_{84}\text{Po}^{214}$	Polonijum-214	Radijum C'	α	164.3 μs	$^{82}_{82}\text{Pb}^{210}$
$^{81}_{81}\text{Tl}^{210}$	Talijum-210	RadijumC''	β^-	1.3 min	$^{82}_{82}\text{Pb}^{210}$
$^{82}_{82}\text{Pb}^{210}$	Olovo-210	Radijum D	β^- : 100 % α : $1.9 \cdot 10^{-6}$ %	22.3 g	$^{83}_{83}\text{Bi}^{210}$ $^{80}_{80}\text{Hg}^{206}$
$^{83}_{83}\text{Bi}^{210}$	Bizmut-210	Radijum E	β^- : 99.99987 % α : 0.00013 %	5.013 d	$^{84}_{84}\text{Po}^{210}$ $^{81}_{81}\text{Tl}^{206}$
$^{84}_{84}\text{Po}^{210}$	Polonijum-210	Radijum F	α	138.376 d	$^{82}_{82}\text{Pb}^{206}$
$^{80}_{80}\text{Hg}^{206}$	Živa-206	–	β^-	8.15 min	$^{81}_{81}\text{Tl}^{206}$
$^{81}_{81}\text{Tl}^{206}$	Talijum-206	Radijum E'	β^-	4.199 min	$^{82}_{82}\text{Pb}^{206}$
$^{82}_{82}\text{Pb}^{206}$	Olovo-206	Radijum G	stabilno	–	–



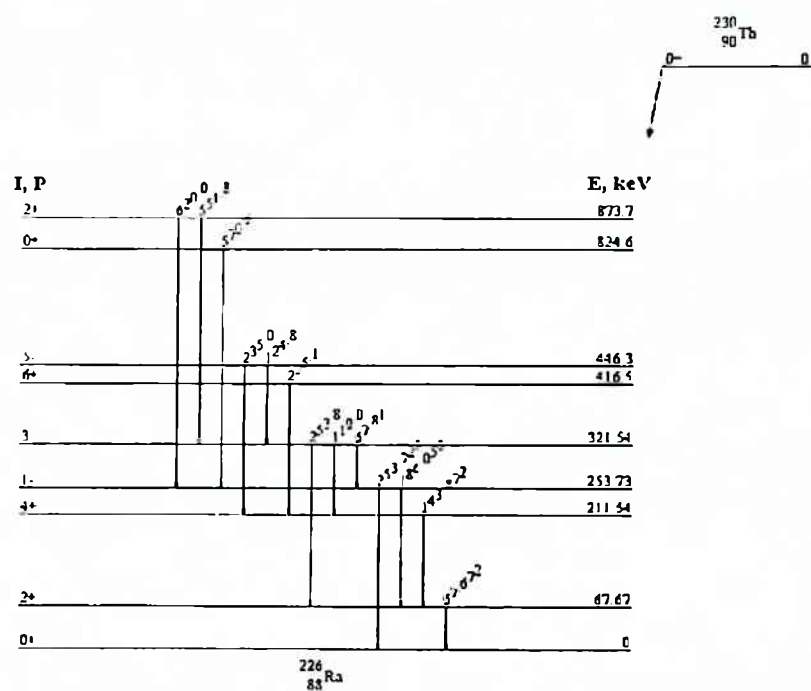
Slika 2.1.1. Šematski prikaz raspada ${}^{238}\text{U}$.

Tabela 2.1.2. Intenzivniji γ -prelazi u nizu ^{238}U .

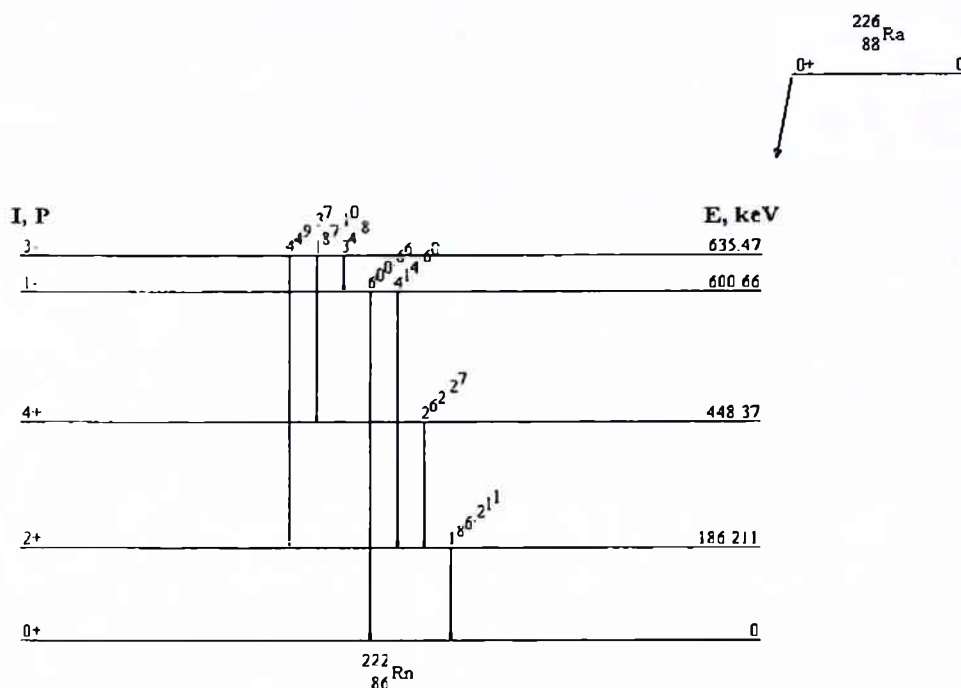
Energije γ -prelaza koji prate raspad jezgra roditelja [keV]	Intenzitet prelaza [%]
^{234}Th	
63.29	4.8
92.38	2.81
^{234m}Pa	
1001.03	0.837
^{234}Pa	
131.3	18
946	13.4
883.24	9.6
^{226}Ra	
186.211	3.59
^{214}Pb	
351.932	37.6
295.224	19.3
^{214}Bi	
609.312	46.1
1764.494	15.4
1120.287	15.1
1238.11	5.79
2204.21	5.08
^{210}Tl	
799.7	99
298	79
1316	21
1210	17
1070	12



Slika 2.1.3. Raspad ^{234}U .



Slika 2.1.4. Raspad ^{230}Th .



Slika 2.1.5. Raspad ^{226}Ra .

Radon-222 se raspada (putem α -raspada) do ^{218}Po , uz emisiju γ -zraka energije 511 keV, a ovaj dalje (uz β^- -transformaciju u ^{218}At , 0.02 %), takode α -raspadom, do ^{214}Pb (bez emisije γ -zraka), čiji β^- -raspad (u $^{214}\text{Bi}^1$) prate 34 γ -zraka, od kojih je 5 sa intenzitetom većim od 1 %.

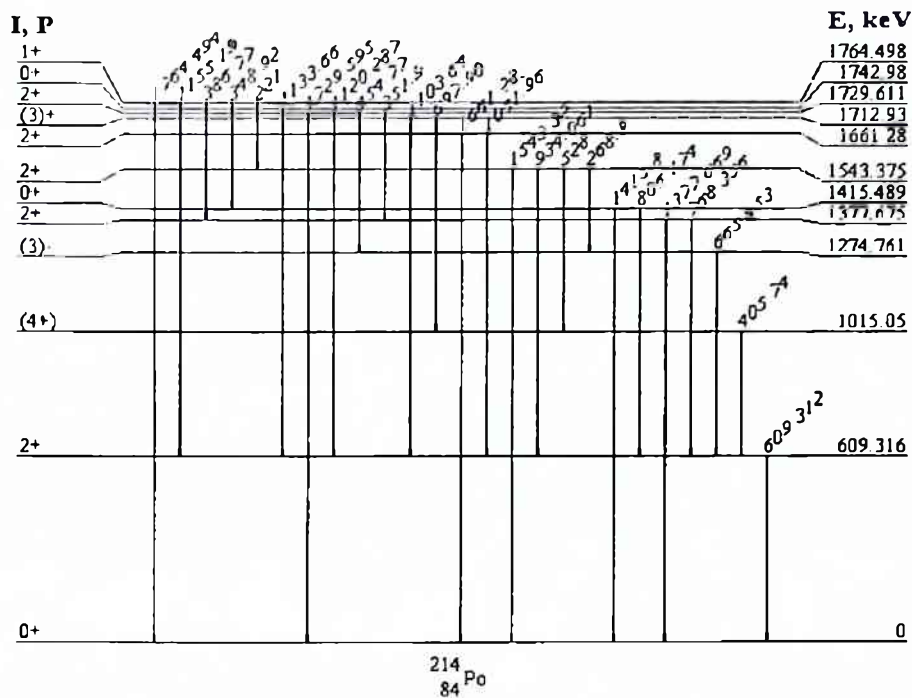
Beta minus raspad ^{214}Bi do $^{214}\text{Po}^2$ (99.979 %), čija deekscitacija je predstavljena na slici 2.1.6, praćen je emisijom 294 γ -zraka, a njih 20 ima intenzitet iznad 1 %. Drugi način raspada ^{214}Bi je α -raspad (0.021 %) u ^{210}Tl , uz emisiju dva gama zraka energija 191.1 keV i 62.5 keV. Transformacija ^{210}Tl u ^{210}Pb vrši se β^- -raspadom, uz emisiju 24 γ -zraka, među kojima 5 ima relativni intenzitet veći od 10 % (tabela 2.1.2).

Polonijum-214 se α -raspadom takode transformiše u ^{210}Pb , uz emisiju dva (niskointenzivna) γ -zraka, a ovaj dalje (uz neznatnu transformaciju u ^{206}Hg) β^- -raspadom – u ^{210}Bi (što je praćeno emisijom γ -zraka energije 46.539 keV i intenziteta 4.25 %). Beta minus

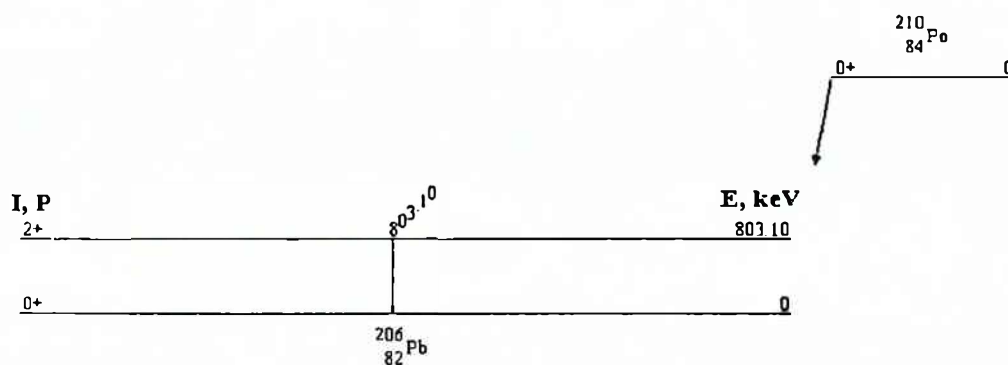
¹ U ^{214}Bi se transformiše i ^{218}At , uz to što ima svojstvo β^- -transformacije u ^{218}Rn (0.1 %).

² U ^{214}Po se transformiše i ^{218}Rn .

raspadom ^{210}Bi nastaje ^{210}Po (dok malo vjerovatnim α -raspadom nastaje ^{206}Tl , u koji se transformiše i ^{206}Hg). Polonijum-210 se dalje (α) raspada do stabilnog olova $^{206}\text{Pb}^3$ (slika 2.1.7).



Slika 2.1.6. Deekscitacija jezgra ^{214}Po .



Slika 2.1.7. Raspad ^{210}Po do stabilnog olova (^{206}Pb).

³ U stabilno olovo se transformiše i ^{206}Tl .

2.2. Šema raspada ^{235}U

U radioaktivnom nizu $^{235}\text{U} \rightarrow ^{207}\text{Pb}$ (uranijum-aktinijumskom) ima petnaest radioizotopa, nastalih nakon 12 α - i 9 β -raspada [41]. Pet radionuklida se raspada na dva načina i to: ^{227}Ac , ^{223}Fr , ^{219}At , ^{215}Po , ^{211}Bi . U svim slučajevima, jedan način raspada je dominantan (3 puta α - i 2 puta β -raspad).

U tabeli 2.2.1 date su karakteristike niza i potomci, na slici 2.2.1 dat je njegov šematski prikaz, dok su u tabeli 2.2.2 izdvojeni intenzivniji gama zraci.

Na slici 2.2.2 prikazan je α -raspad ^{235}U , tj. njegova transformacija u ^{231}Th , praćena emisijom 71 γ -zraka, od kojih 6 ima relativni intenzitet veći od 1 %, a od njih samo su dva intenziteta iznad 10 % (tabela 2.2.2).

Iako β -raspad $^{231}\text{Th}^4$ u ^{231}Pa prate 64 γ -zraka, samo dva imaju relativni intenzitet veći od 1 %. Gama zraci koji prate raspad ^{227}Ac (koji nastaje od ^{231}Pa) u ^{227}Th i ^{223}Fr imaju relativne intenzitete mnogo manje od 1 % [41].

Torijum-227 se transformiše putem α -raspada u ^{223}Ra . Raspad je praćen sa 227 gama emisija. Relativni intenzitet prelaza veći od 1 % ima njih 11, dok samo jedan gama zrak ima relativni intenzitet veći od 10 % (tabela 2.2.2).

Alfa raspad ^{223}Ra u ^{219}Rn praćen je emisijom gama zračenja, a 7 zraka ima intenzitet iznad 1 % (uz zrak naveden u tabeli 2.2.2, na primjer, zrak energije 154.21 keV ima intenzitet 5.62 %).

Francijum-223 se raspada na dva načina, a dominantan je β -raspad (vjerovatnoća: 99.994 %) do ^{223}Ra , praćen emisijom 138 zraka, među kojima njih 123 imaju relativni intenzitet manji od 0.1 %, a samo jedan zrak ima intenzitet veći od 10 % (50.13 keV, 36 %). Vjerovatnoća za alfa raspad (do ^{219}At) je svega 0.006 %, i dešava se uz emisiju 4 gama zraka niskih energija i niskih relativnih intenziteta (od 0.0002 % do 0.006 %).

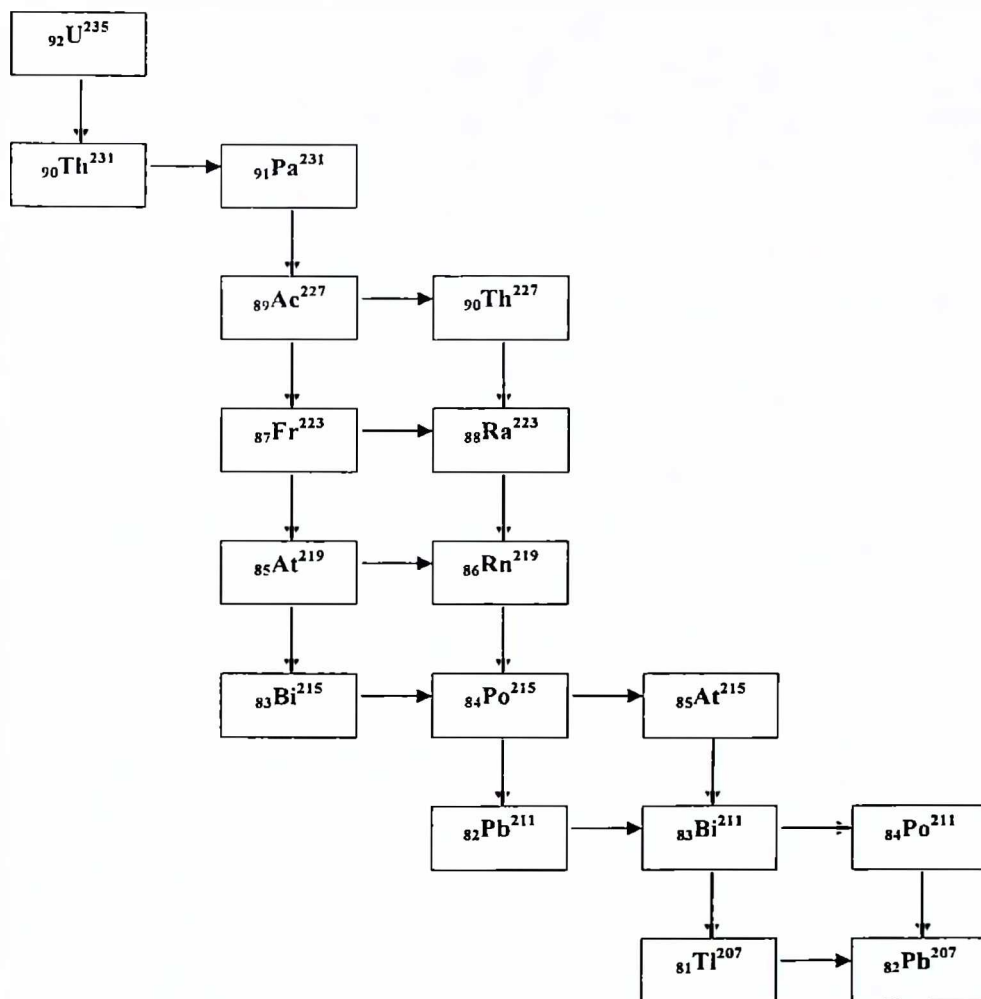
Astatin-219 se takođe raspada na dva načina i to: sa vjerovatnoćom od 3 % β -raspadom prelazi u aktinon (^{219}Rn), dok sa vjerovatnoćom 97 % prelazi u ^{215}Bi , koji dalje prelazi u ^{215}Po . Aktinon (^{219}Rn) transformiše se u ^{215}Po (α -raspadom), što je praćeno emisijom 18 γ -zraka (γ -

⁴ Vjerovatnoća za njegov α -raspad je svega 10^{-8} , zbog čega se ovdje ne razmatra (kao ni neki drugi raspad, izuzetno malo vjerovatni).

zrak energije 271.23 keV ima intenzitet 10.8 %), a koji se opet raspada na dva načina – u olovo ^{211}Pb (α) i u ^{215}At (β^-), mada je zadnji raspad izuzetno rijedak ($2.3 \cdot 10^{-4}$ %).

Tabela 2.2.1. Niz raspada ^{235}U .

Nuklid	Naziv	Stari naziv	Raspad	$T_{1/2}$	Potomak
$^{235}_{92}\text{U}$	Uranijum-235	Aktin Uranijum	α	$7.03 \cdot 10^8$ g	$^{231}_{90}\text{Th}$
$^{231}_{90}\text{Th}$	Torijum-231	Uranijum Y	β^-	25.52 h	$^{231}_{91}\text{Pa}$
$^{231}_{91}\text{Pa}$	Protaktinijum-231	Brevijum	α	$3.276 \cdot 10^4$ g	$^{227}_{89}\text{Ac}$
$^{227}_{89}\text{Ac}$	Aktinijum-227	Emanijum	β^- : 98.62 % α : 1.38 %	21.773 g	$^{227}_{90}\text{Th}$ $^{223}_{87}\text{Fr}$
$^{227}_{90}\text{Th}$	Torijum-227	Radioaktinijum	α	18.72 d	$^{223}_{88}\text{Ra}$
$^{223}_{87}\text{Fr}$	Francijum-223	Eka cezijum Aktinijum K	β^- : 99.994 % α : 0.006 %	21.8 min	$^{223}_{88}\text{Ra}$ $^{219}_{85}\text{At}$
$^{223}_{88}\text{Ra}$	Radijum-223	Aktinijum X	α	11.435 d	$^{219}_{86}\text{Rn}$
$^{219}_{85}\text{At}$	Astatin-219	Eka jodin Dakin	α : 97 % β^- : 3 %	56 s	$^{215}_{83}\text{Bi}$ $^{219}_{86}\text{Rn}$
$^{219}_{86}\text{Rn}$	Radon-219	Aktonon	α	3.96 s	$^{215}_{84}\text{Po}$
$^{215}_{83}\text{Bi}$	Bizmut-215	–	β^-	7.6 min	$^{215}_{84}\text{Po}$
$^{215}_{84}\text{Po}$	Polonijum-215	Aktinijum A	α : 99.99977 % β^- : 0.00023 %	1.781 ms	$^{211}_{82}\text{Pb}$ $^{215}_{85}\text{At}$
$^{215}_{85}\text{At}$	Astatin-215	–	α	0.1 ms	$^{211}_{83}\text{Bi}$
$^{211}_{82}\text{Pb}$	Olovo-211	Aktinijum B	β^-	36.1 min	$^{211}_{83}\text{Bi}$
$^{211}_{83}\text{Bi}$	Bizmut-211	Aktinijum C	α : 99.724 % β^- : 0.276 %	2.14 min	$^{207}_{81}\text{Tl}$ $^{211}_{84}\text{Po}$
$^{211}_{84}\text{Po}$	Polonijum-211	Aktinijum C'	α	516 ms	$^{207}_{82}\text{Pb}$
$^{207}_{81}\text{Tl}$	Talijum-207	Aktinijum C''	β^-	4.77 min	$^{207}_{82}\text{Pb}$
$^{207}_{82}\text{Pb}$	Olovo-207	Aktinijum D	stabilno	–	–



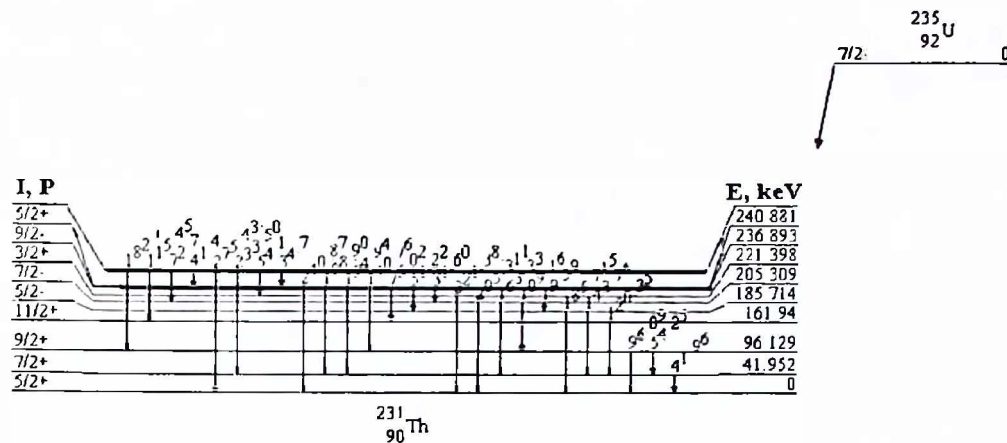
Slika 2.2.1. Šematski prikaz raspada ${}^{235}\text{U}$.

Tabela 2.2.2. Intenzivniji γ -prelazi u nizu ^{235}U .

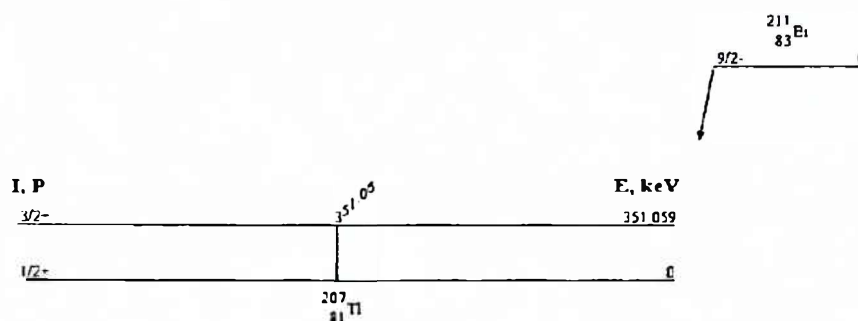
Energije γ -prelaza koji prate raspad jezgra roditelja [keV]	Intenzitet prelaza [%]
^{235}U	
185.715	57.2
143.764	10.96
^{231}Th	
25.646	14.5
^{231}Pa	
27.3	10.3
^{227}Th	
235.971	12.3
^{223}Ra	
269.459	13.7
^{219}Rn	
271.23	10.8
^{211}Bi	
351.06	12.91

Astatin-215 nastao (β^-) raspadom polonijuma, transformiše se u ^{211}Bi (u koji se takode transformiše i ^{211}Pb , putem β^- -raspada, koji je praćen emisijom gama zračenja, a tri zraka su intenziteta iznad 1 %). Kod raspada ^{211}Bi dominantan je α -raspad sa vjerovatnoćom 99.724 % (slika 2.2.3). On je praćen jednim γ -prelazom sa energetskog nivoa 351.06 keV na osnovni nivo (tabela 2.2.2). Raspad ^{207}Tl je β^- , i praćen je emisijom 3 γ -zraka tokom deekscitacije ^{207}Pb (energije su 328.12 keV, 569.702 keV i 897.8 keV, a intenziteti 0.0014 %, 0.0016 % i 0.26 %, respektivno).

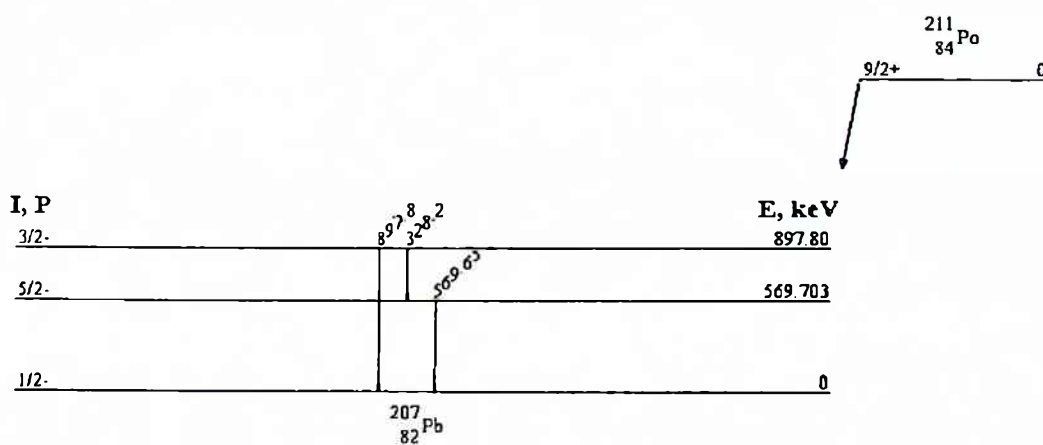
Beta raspadom ^{211}Bi prelazi u ^{211}Po (0.276 %). Ovaj prelaz nije praćen emisijom γ -zraka. Prelaz ^{211}Po u stabilno olovo (slika 2.2.4) vrši se α -raspadom, uz emisiju tri γ -zraka, i to: 328.2 keV (0.003 %), 569.65 keV (0.5 %) i 897.8 keV (0.561 %).



Slika 2.2.2. Deekscitacija ^{231}Th .



Slika 2.2.3. Alfa raspad ^{211}Bi .



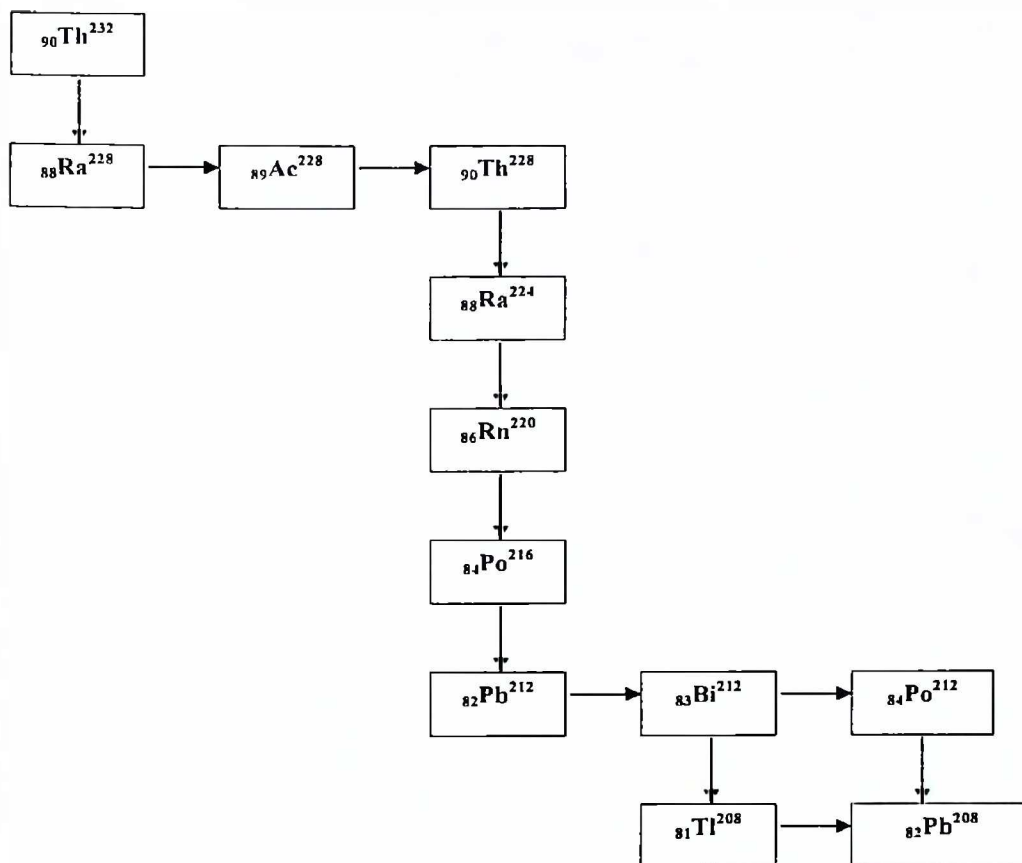
Slika 2.2.4. Alfa raspad ^{211}Po .

2.3. Šema raspada ^{232}Th

U torijumskom nizu ($^{232}\text{Th} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$) ima deset radioizotopa, nastalih nakon 7 α - i 5 β -raspada [41]. Navedeni raspadi su najčešće praćeni emisijom γ -zračenja, tako da se aktivnosti radionuklida i iz torijumovog niza mogu određivati preko γ -linija karakterističnih za dati nuklid. Od svih izotopa, samo se ^{212}Bi raspada na dva načina, α - i β -raspadom (pri čemu je α -raspad manje vjerovatan od njegovog β -raspada), dok se svi ostali radionuklidi raspadaju – ili alfa ili beta raspadom. Na slici 2.3.1 dat je šematski prikaz raspada ^{232}Th do stabilnog ^{208}Pb , a podaci u vezi sa nizom raspada – u tabeli 2.3.1.

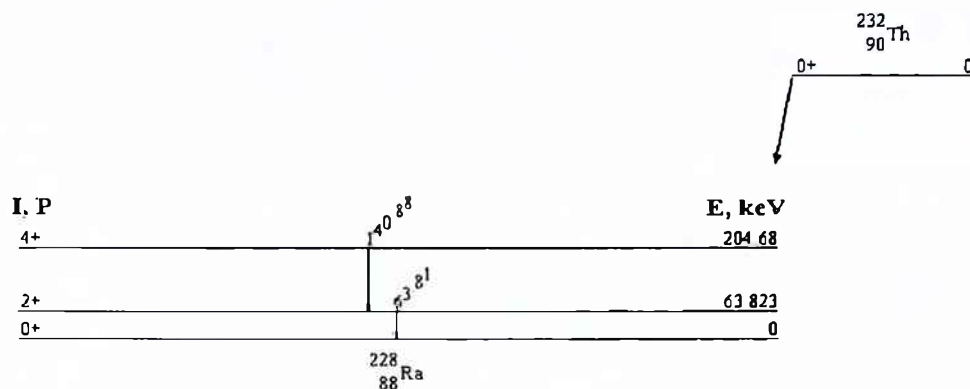
Tabela 2.3.1. Niz raspada ^{232}Th .

Nuklid	Naziv	Stari naziv	Raspad	$T_{1/2}$	Potomak
$^{232}_{90}\text{Th}$	Torijum-232	Torijum	α	$1.405 \cdot 10^{10}$ g	$^{228}_{88}\text{Ra}$
$^{228}_{88}\text{Ra}$	Radijum-228	Mezotorijum 1	β^-	5.75 g	$^{228}_{89}\text{Ac}$
$^{228}_{89}\text{Ac}$	Aktinijum-228	Mezotorijum 2	β^-	6.15 h	$^{228}_{90}\text{Th}$
$^{228}_{90}\text{Th}$	Torijum-228	Radiotorijum	α	1.9116 g	$^{224}_{88}\text{Ra}$
$^{224}_{88}\text{Ra}$	Radijum-224	Torijum X	α	3.66 d	$^{220}_{86}\text{Rn}$
$^{220}_{86}\text{Rn}$	Radon-220	Toron	α	55.6 s	$^{216}_{84}\text{Po}$
$^{216}_{84}\text{Po}$	Polonijum-216	Torijum A	α	0.145 g	$^{212}_{82}\text{Pb}$
$^{212}_{82}\text{Pb}$	Olovo-212	Torijum B	β^-	10.64 h	$^{212}_{83}\text{Bi}$
$^{212}_{83}\text{Bi}$	Bizmut-212	Torijum C	α : 35.94 % β^- : 64.06 %	60.55 min	$^{208}_{81}\text{Tl}$ $^{212}_{84}\text{Po}$
$^{212}_{84}\text{Po}$	Polonijum-212	Torijum C'	α	0.299 μs	$^{208}_{82}\text{Pb}$
$^{208}_{81}\text{Tl}$	Talijum-208	Torijum C''	β^-	3.053 min	$^{208}_{82}\text{Pb}$
$^{208}_{82}\text{Pb}$	Olovo-208	–	stabilno	–	–

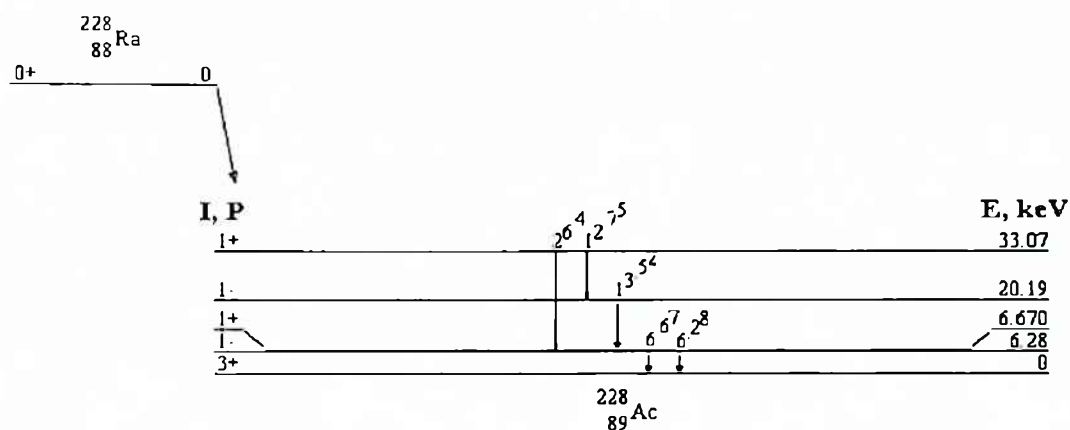


Slika 2.3.1. Šematski prikaz raspada ${}^{232}\text{Th}$.

Na slici 2.3.2 data je šema (α) raspada ${}^{232}\text{Th}$ (do ${}^{228}\text{Ra}$), iz koje se vidi da je raspad praćen sa dva γ -prelaza energija 140.88 keV i 63.81 keV. Relativni intenziteti ovih prelaza su veoma niski (0.021 % i 0.263 %, respektivno). Šema raspada ${}^{228}\text{Ra}$ data je na slici 2.3.3. Novonastalo jezgro ${}^{228}\text{Ac}$ deekscituje emitujući γ -zrake (ukupno 9) veoma niskih intenziteta i (veoma niskih) energija (najveći intenzitet ima zrak energije 13.52 keV, 1.6 %), koje se nalaze u nepogodnom dijelu energetskog spektra (koji se preklapa sa spektrom X-zračenja), tako da ni sistem ORTEC GEM HPGe detektora ne može da detektuje ove zrake (budući da ima energetski opseg od 40 keV do 3000 keV).

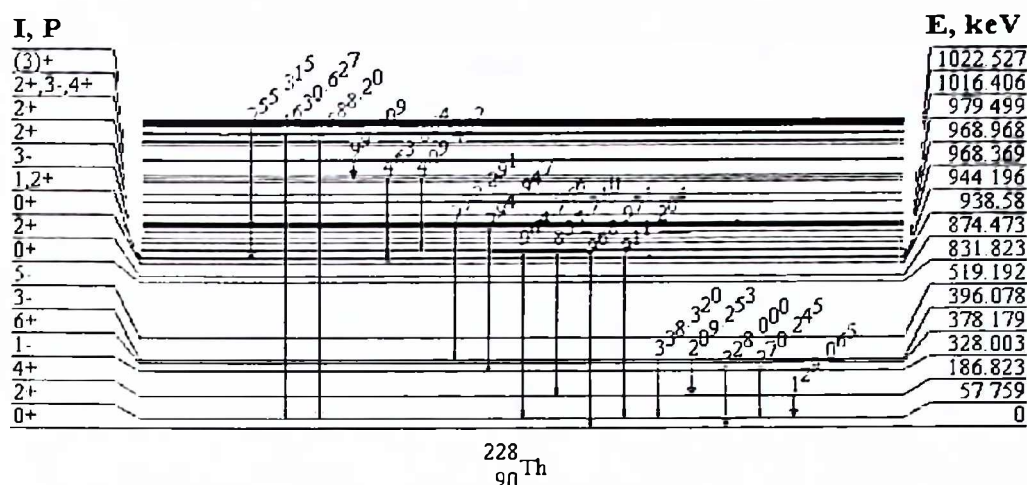


Slika 2.3.2. Alfa raspad ^{232}Th .



Slika 2.3.3. Beta raspad ^{228}Ra .

Na slici 2.3.4 prikazana je šema raspada ^{228}Ac , tj. deekscitacija ^{228}Th (koja se dešava uz emisiju ukupno 262 γ -zraka). Međutim, samo 17 γ -zraka ima relativni intenzitet $\geq 1\%$, a samo tri – veći od 10 %. Najintenzivniji γ -zrak je onaj sa energijom 911.204 keV (25.8 %), koji se emituje sa energetskog nivoa 944.196 keV, i najčešće koristi za detekciju torijuma pomoću poluprovodničkog spektrometra.



Slika 2.3.4. Deekscitacija jezgra ^{228}Th pri β^- -raspadu ^{228}Ac (dio šeme raspada).

Alfa raspad ^{228}Th (do ^{224}Ra), praćen je emisijom 14 γ -zraka niskih intenziteta (najveći intenzitet ima zrak energije 84.373 keV – 1.22 %), dok je α -raspad ^{224}Ra do torona (^{220}Rn) praćen emisijom 5 zraka (najveći intenzitet od 4.1 % ima zrak energije 240.986 keV). Toron se dalje raspada (α) do ^{216}Po , uz emisiju jednog niskointenzivnog (0.114 %) gama zraka (549.76 keV). I on je α -aktivan i dovodi do ^{212}Pb , uz emisiju samo jednog gama zraka (804.9 keV, veoma niskog intenziteta – 0.0019 %).

Bizmut-212 nastaje nakon β^- -raspada ^{212}Pb , koji prati emisija 12 gama zraka, od kojih samo dva imaju intenzitet > 1%. Izotop ^{212}Bi je jedini u torijumskom nizu koji se raspada i alfa (35.94 %) i beta (64.06 %) raspadom, uz emisiju ukupno 26 gama zraka, od kojih onaj energije 727.33 keV ima najveći relativni intenzitet (6.58 %). Produkt α -raspada ^{212}Bi je ^{208}Tl , dok je produkt njegovog β^- -raspada ^{212}Po . Polonijum-212 α -raspadom prelazi u stabilno olovo ^{208}Pb (bez emisije gama zračenja), dok do istoga dovodi i β^- -raspad ^{208}Tl , kada se, pri deekscitaciji ^{208}Pb (slika 2.3.5), emituje 29 gama zraka (od kojih 6 ima intenzitete iznad 1 %).

Tabela 2.3.2. Intenzivniji γ -prelazi u nizu ^{232}Th .

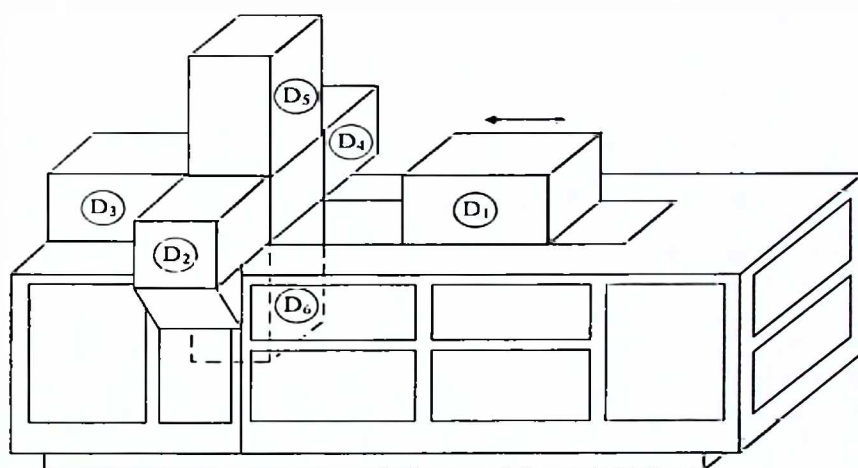
Energije γ-prelaza koji prate raspad jezgra roditelja [keV]	Intenzitet prelaza [%]
^{228}Ra	
12.75	0.3
13.52	1.6
15.5	0.16
16.2	0.72
^{228}Ac	
911.204	25.8
968.971	15.8
338.32	11.27
964.766	4.99
463.004	4.4
794.947	4.25
209.253	3.89
^{212}Pb	
238.632	43.3
300.087	3.28
^{212}Bi	
727.33	6.58
1620.5	1.49
785.37	1.102
^{208}Tl	
2614.533	99
583.191	84.5
510.77	22.6
860.564	12.42
277.351	6.31
763.13	1.81

3. SPEKTROMETAR PRIPJAT-2M

3.1. Karakteristike spektrometra

3.1.1. Konstrukcija spektrometra

U sastav spektrometara tipa PRIPJAT, čiji je šematski prikaz dat na slici 3.1.1, ulazi šest NaI(Tl) detektora, njihova čelična i olovna zaštita, elektromotor za otvaranje i zatvaranje detekcione komore, elektronika tipa CAMAC i PC, sa pratećim softverom PRIP [6].

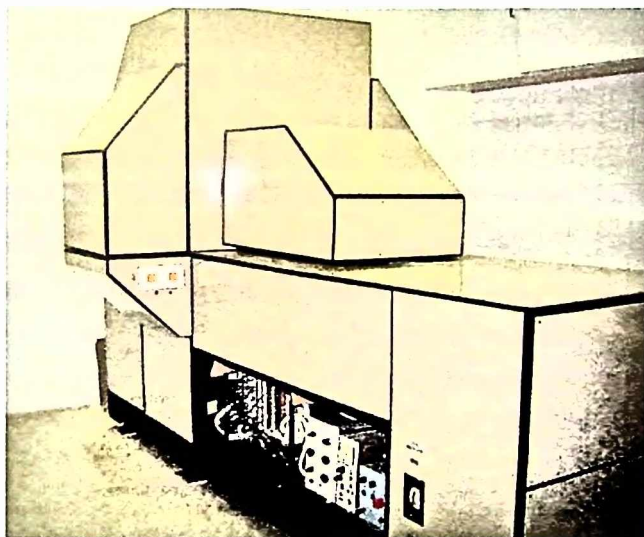


Slika 3.1.1. Šematski prikaz spektrometra tipa PRIPJAT.

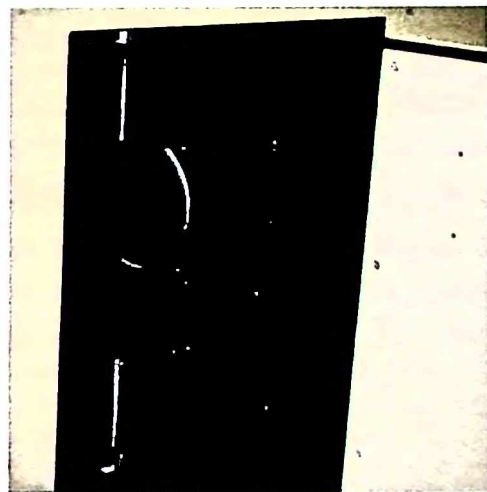
Spektrometar ima šest identičnih sekcija sa detektorima ($D_1 - D_6$), od kojih su dvije u vertikalnom, a četiri u horizontalnom položaju (jedna je pokretna, i otvara i zatvara detekcionu komoru). Svaka sekcija je paralelopiped (čelični, dimenzija 18 cm x 18 cm x 10 cm, sa otvorom prečnika 16.5 cm) u čijoj unutrašnjosti se nalazi standardni scintilacioni blok: kristal (prečnika 15 cm i visine 10 cm) i fotomultiplikator, smješteni u aluminijski kontejner. Između scintilacionih blokova postavljena su po dva čelična paralelopipeda, kao zaštita od rasijanog γ -zračenja, a spektrometar ima i olovnu zaštitu debljine do 15 cm.

Detektori su raspoređeni tako da formiraju relativno veliku detekcionu komoru oblika kocke, čija je stranica 17.5 cm. Spoljašnje dimenzije spektrometra su: 250 cm x 145 cm x 186 cm, dok je njegova ukupna masa 4200 kg.

Kao što je rečeno u Uvodu, jedan od ovih spektrometara (PRIPJAT-2M), konstruisan 1994. godine na Institutu za fiziku Akademije nauka Bjelorusije u Minsku, sa navedenim konstrukcionim karakteristikama, nalazi se u Laboratoriji za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Podgorici, i služi za γ -spektrometrijska istraživanja. Prikazan je na slici 3.1.2. Geometrijska efikasnost registracije spektrometra je $\sim 0.7 \cdot 4\pi$ sr, energetska rezolucija – 10.5 % za γ -liniju ^{137}Cs na energiji 662 keV, vrijeme rezolucije – 40 ns, višestrukost koincidencija – od 2 do 6. Mrtvo vrijeme mjerenja zavisi od aktivnosti uzorka (u slučajevima mjerenja fona obično ne prelazi 1 %).



a)

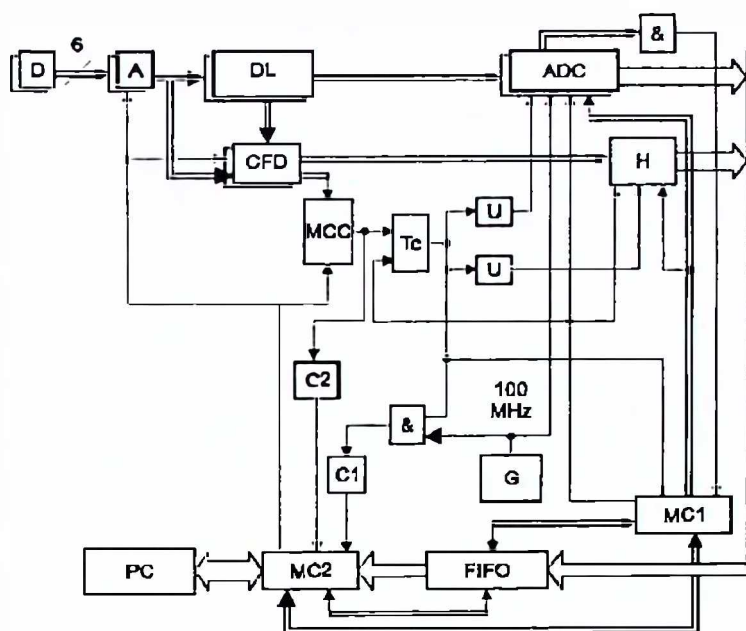


b)

Slika 3.1.2. Spektrometar PRIPJAT-2M (a) i njegova detekciona komora (b).

3.1.2. Blok šema i princip rada spektrometara tipa PRIPJAT

Strukturna šema rada spektrometara tipa PRIPJAT prije najnovije modifikacije prethodno je već opisivana [36, 37]. Nakon modifikacije elektronike, detaljnija blok šema (modifikovani CAMAC moduli) može se predstaviti kao na slici 3.1.3 [40].



Slika 3.1.3. Princip rada spektrometra tipa PRIPJAT nakon modifikacije.

Ukratko, signali koji dolaze sa fotomultiplikatora se pojačavaju (A) i analiziraju pomoću CFD (*constant fraction discriminator*) i ADC (*analog-to-digital converter*). CFD signali idu u MCC (*majority coincidence circuit*), tj. koincidentno kolo koje radi po principu *preklapanja* impulsa, i produkuju se ulazni impulsi za ADC i hodoskop (H) – koji registruje istovremeni rad detektora (tj. vrši vremensku analizu događaja). Kada se desi koinkidencija date višestrukosti, H identifikuje detektore koji su ovu koinkidenciju registrovali. Amplitudna analiza se vrši sa 6 ADC (svaki po 256 kanala), da bi se odredila energija detektovanih fotona. Kada se konverzija završi i svi konverteri daju signale, kontrolni programi u mikrokontrolerima (procesorima) MC1 i MC2 transmituju podatke u *buffer* memoriju (FIFO) i kompjuterski program. Prvi od njih (procesor MC1) provjerava prisustvo podataka, tj. snima podatke (vezane za događaje koji su registrovani u hodoskopu) iz ADC u FIFO memoriju, dok drugi (procesor MC2) transmituje ove podatke iz FIFO u kompjuterski program. Dakle, informacija o svakom registrovanom događaju dolazi do kompjutera u vidu broja (i višestrukosti) detektora koji su ga registrovali, kao i amplituda signala (energija fotona).

3.2. Softver PRIP

3.2.1. Režimi rada spektrometra

Modifikovani softver spektrometra (PRIP), osim kalibracije, akvizicije, prikazivanja i čuvanja podataka, omogućava da se izabere opseg višestrukosti koincidencija i energetski opseg koji se želi razmatrati, te da se u svim režimima rada dobiju pojedinačni spektri sa svih 6 detektora (i odgovarajući sumarni spektri), kao i svi potrebni podaci vezani za registrovanu energiju, brzinu brojanja u fotopiku, širinu fotopika (u keV), itd. Omogućava dalje da se identifikuju izotopi (na osnovu postojeće radne biblioteke), i izračunaju aktivnosti ili koncentracije aktivnosti.

Treba napomenuti da je i spektrometar PRIPJAT-2M, kao i ostali spektrometri ovog tipa, bio konstruisan s namjerom da se ekspresno određuje aktivnost ^{137}Cs , kao i aktivnost ^{40}K – u tzv. integralnom ([1-6]) režimu mjerenja, kada svaki od detektora registruje ukupno γ -zračenje koje do njega stiže (koincidentno i nekoincidentno). Međutim, pri ovakvim mjerenjima koristio se samo minimum stvarnih mogućnosti spektrometra PRIPJAT-2M.

Prva modifikacija spektrometra (i softvera), omogućila je koincidentna mjerenja u režimu [2-6], tj. mjerenja svih zajedno koincidencija višestrukosti od 2 do 6, bez razdvajanja. Uz to, bila je moguća detekcija γ -zraka u integralnom, ali i u nekoincidentnom ([1-1]) režimu, kada se u spektrima pojedinačnih detektora (kao i u sumarnom spektru) prikazuju samo oni gama zraci koje je konkretni detektor registrovao, a da se pri tome nije desila istovremena (u granicama vremena rezolucije sistema) detekcija drugog gama zraka od strane nekog od preostalih pet detektora. Ovi režimi mjerenja korišćeni su za razvoj koincidentnog metoda mjerenja radona u vodi [36].

Dalja modifikacija spektrometra i softvera PRIP (uz pomoć konstruktora sistema sa Instituta za fiziku Akademije nauka Bjelorusije u Minsku), omogućila je, pored postojećih, i režime rada u kojima spektrometar registruje koincidencije višestrukosti od 2 do 6, ali razdvojene. Odnosno, omogućeni su režimi [1-1]-[2-2], [1-1]-[3-3], [1-1]-[4-4], [1-1]-[5-5], [1-1]-[6-6], uz mogućnost odabira opsega koincidencija. Tako, na primjer, izabrana višestrukost 4 znači režim [1-1]-[4-4], pri čemu se dobijaju (na svakom pojedinačnom detektoru, ali i sumarno) nekoincidentni spektri, spektri dvostrukih koincidencija (detektor registruje dati gama zrak i,

istovremeno, tj. u granicama vremena rezolucije spektrometra, još jedan od preostalih detektora registruje drugi gama zrak), spektri trostrukih (tri detektora istovremeno registruju gama zrake) i četverostrukih koincidencija (istovremena detekcija gama zraka od strane četiri detektora u sistemu).

Gama fon i osjetljivost spektrometra PRIPJAT-2M razmatrani su prvobitno (tj. odmah nakon početne modifikacije sistema koja je omogućila razdvajanje koincidencija različitih višestrukosti, ali samo u energetskom opsegu od 200 keV do 2000 keV) u različitim koincidentnim režimima rada [42], ali i kasnije – tokom dalje modifikacije i razvoja novih koincidentnih metoda.

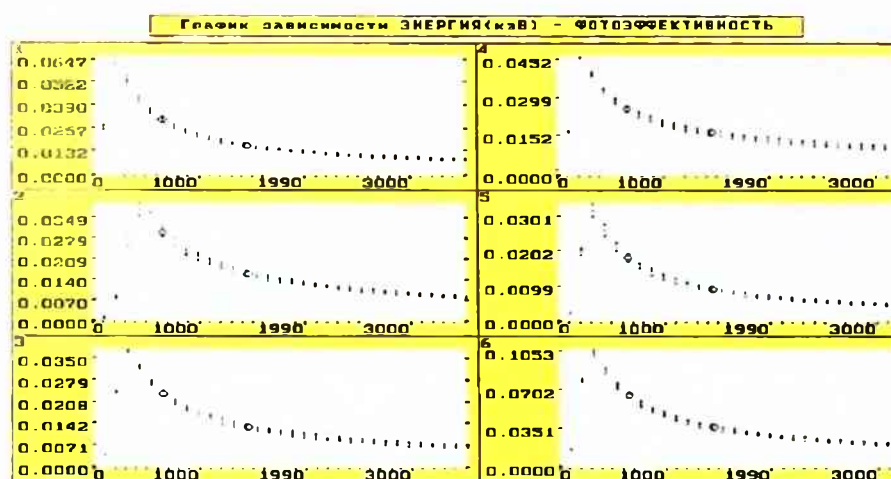
Zbog toga što su mnogobrojna sprovedena istraživanja (između ostalog i u okviru ove disertacije) pokazala dominantnu važnost režima dvostrukih koincidencija, softver PRIP je takode (naknadno, u Minsku) modifikovan i da omogući režim [1-1]-[2-2]-[3-6], pri čemu zadnji član podrazumijeva registraciju koincidencija višestrukosti od 3 do 6, bez razdvajanja. Na osnovu svih dobijenih rezultata, očekuje se i konačna modifikacija softvera PRIP koji ulazi u sastav spektrometra PRIPJAT-2M (u Podgorici), ali i dalja modifikacija cijelog sistema (uključujući elektroniku – o čemu će biti riječi u zadnjem poglavlju disertacije). Odnosno, istraživanja u okviru ove doktorske disertacije, treba između ostalog da pomognu i uspostavljanje nove verzije pratećeg softvera spektrometara tipa PRIPJAT (PRIP), ali i da usmjere dalje modifikacije, tj. poboljšanja karakteristika sistema.

3.2.2. Kalibracija spektrometra PRIPJAT-2M

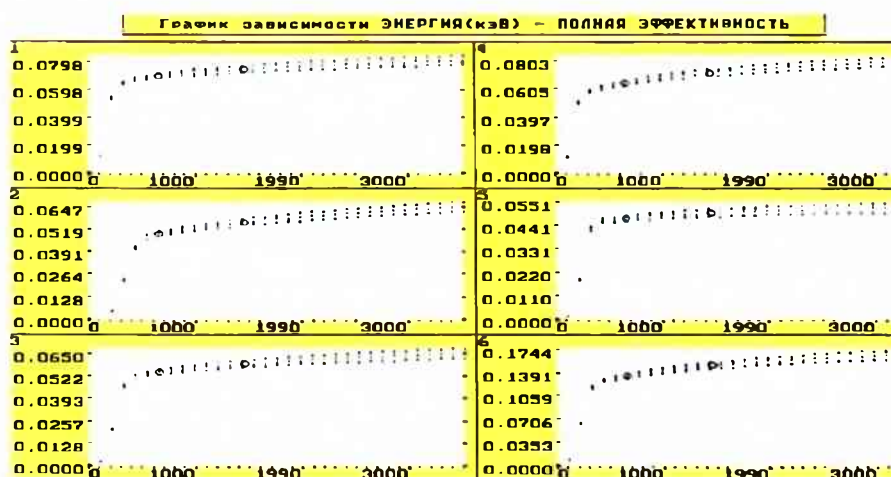
Kalibraciona procedura kod spektrometara tipa PRIPJAT (u spektrometrijskom režimu) predviđa korišćenje dva monoenergetska izvora γ -zračenja pogodnih energija. Za kalibraciju spektrometra PRIPJAT-2M korišćeni su kalibracioni izvori ^{137}Cs i ^{40}K , proizvedeni u VNIIM im. D. I. Mendeleeva – Sankt Peterburg, koji su pakovani u cilindrične plastične posude spoljašnjeg dijametra 10.7 cm (debljina zida je 1.0 mm) i visine 8 cm. Izvor ^{137}Cs (OMASN N^O72/94-2, smola mase 0.486 kg) imao je 01. 01. 1994. godine aktivnost 870 Bq, određenu sa greškom od 3 % na nivou povjerenja 95 %, a izvor ^{40}K (OMASN N^O103/92, kalijum-hlorid mase 0.550 kg)

imao je 01. 08. 1992. godine aktivnost $9.0 \cdot 10^3$ Bq, određenu sa greškom od 5 % na nivou povjerenja 95 %.

Na osnovu snimljenih spektara navedenih izvora, upotrebom softvera PRIP, dobijaju se uobičajene zavisnosti: energija (keV) – broj kanala; širina pika na poluvisini (izražena brojem kanala) – energija (keV); kao i fotoefikasnost – energija (keV) i totalna efikasnost – energija (keV). Kao ilustracija, jedna od kalibracija predstavljena je slici 3.2.1 (zavisnosti fotoefikasnosti i totalne efikasnosti od energije – a i b, respektivno).



a)



b)

Slika 3.2.1. Kalibracioni dijagrami, spektrometar PRIPJAT-2M (fotoefikasnost i totalna efikasnost – energija u keV).

Osobenost kalibracije u koincidentnom režimu jeste radna biblioteka, koja iz uobičajene kalibracije uzima potrebne podatke, a onda vrši odgovarajući proračun efikasnosti registracije pojedinih zraka u kaskadi (uz proračun greške), koristeći pri tome odgovarajuće biblioteke kaskada. Dakle, ukoliko naznačena biblioteka sadrži izotope koji imaju kaskadne γ -prelaze, softver automatski konsultuje biblioteku kaskada, preuzima podatke o linijama i relativnim intenzitetima i vrši proračune. Ovim je izbjegnuta potreba za posebnim kalibrisanjem spektrometra u režimu koincidencija, i potreba za korišćenjem kalibracionih izvora koji emituju γ -zrake u kaskadi – iako bi i to moglo biti predmet budućih istraživanja i modifikacija.

3.3. Brzina brojanja fonskih impulsa

Izvori fona kod NaI(Tl) detektora su: kosmičko zračenje, zračenje radionuklida iz materijala u okolini i iz zaštite spektrometra, kao i zračenje radionuklida koje sadrži sam detektor. Drugi faktor predstavlja zračenje uglavnom uslovljeno radioizotopom ^{40}K i potomcima raspada uranijuma i torijuma, a treći je uslovljen prisustvom ^{40}K u staklu fotomultiplikatora.

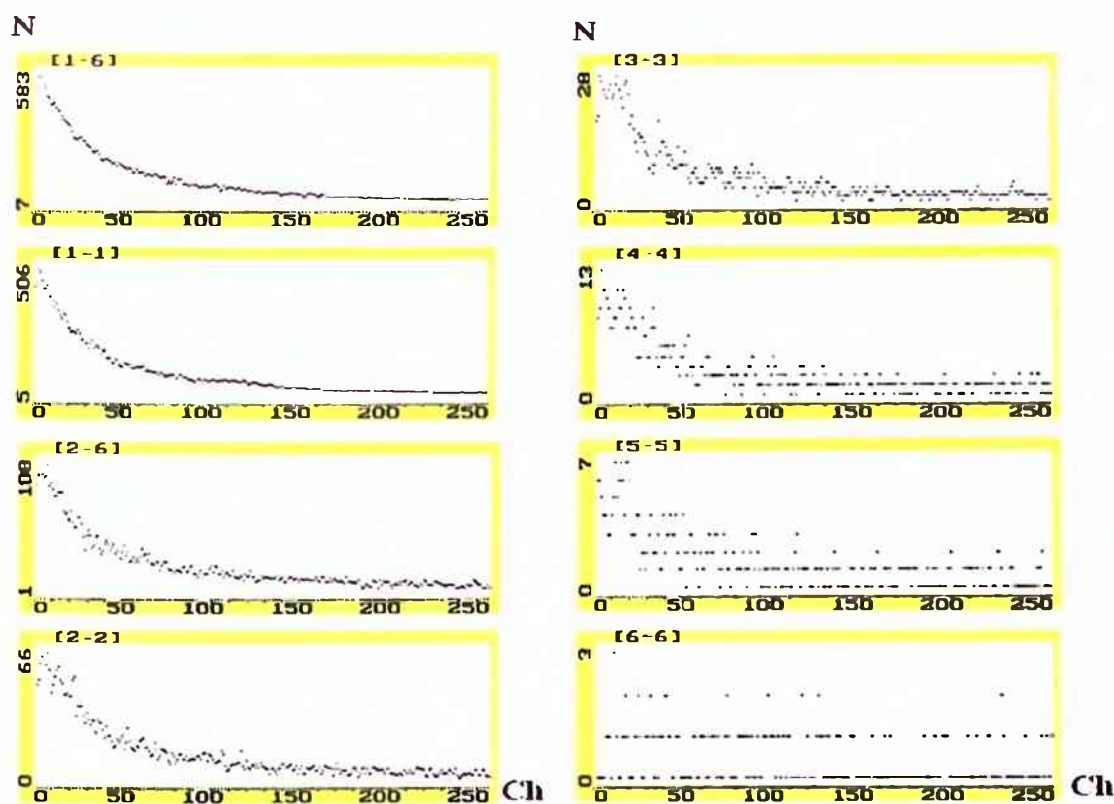
Da bi se umanjio stepen uticaja navedenih izvora fona kod spektrometara tipa PRIPJAT upotrijebljena je pasivna (olovna i čelična) zaštita detektora, a njegovi djelovi su izgrađeni od niskofonskih materijala. S druge strane, u ovako koncipiranom detekcionom sistemu, osnovno i veoma efikasno sredstvo smanjenja brzine brojanja fona jeste rad u koincidentnom režimu [43].

Kao što je prethodno rečeno, odmah nakon omogućavanja mjerenja u režimima razdvojenih koincidencija, urađeno je testiranje fonskih uslova i izvršena su mjerenja u trajanju od 1000 s realnog vremena, u energetsom opsegu od 200 keV do 2000 keV (od 2. do 255. kanala), i ukupna brzina brojanja fona bila je: 30.13 imp/s u integralnom ([1-6]), 23.03 imp/s u nekoincidentnom ([1-1]), 3.48 imp/s u režimu izdvojenih dvostrukih koincidencija ([2-2]), a u ostalim koincidentnim režimima ([3-3], [4-4], [5-5] i [6-6]): 1.41 imp/s, 0.59 imp/s, 0.26 imp/s i 0.17 imp/s, respektivno [42].

Nakon proširenja eneretskog opsega (i omogućavanja izbora istog), fonski uslovi ponovo su testirani serijom mjerenja. Na primjer, ukupna brzina brojanja fona dobijena iz spektara snimanih spektrometrom PRIPJAT-2M po 1000 s realnog vremena u energetsom opsegu od 200 keV do 2000 keV (od 2. do 255. kanala) bila je, u dostupnim režimima mjerenja (uključujući

režim [2-6]), 31.5 imp/s u integralnom ([1-6]), 25.5 imp/s u nekoincidentnom ([1-1]), 3.6 imp/s u režimu izdvojenih dvostrukih koincidencija ([2-2]) i 5.9 imp/s u režimu [2-6]. Brzina brojanja fona u istom energetskom opsegu, u ostalim režimima rada ([3-3], [4-4], [5-5] i [6-6]) bila je: 1.6 imp/s, 0.68 imp/s, 0.28 imp/s i 0.15 imp/s, respektivno [44].

Na slici 3.3.1 predstavljeni su sumarni spektri fona u opsegu od 300 keV do 3000 keV (od 2. do 255. kanala), dobijeni za 1000 s realnog vremena. Ukupna brzina brojanja bila je: 26.4 imp/s u integralnom ([1-6]), 21.1 imp/s u nekoincidentnom ([1-1]), 3.3 imp/s u režimu izdvojenih dvostrukih koincidencija ([2-2]) i 5.1 imp/s u režimu [2-6]. U režimu trostrukih, četverostrukih, petostrukih i šestostrukih koincidencija, brzina brojanja fona bila je: 1.4 imp/s, 0.62 imp/s, 0.26 imp/s i 0.19 imp/s, respektivno [44].



Slika 3.3.1. Spektri fona u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M – u energetskom opsegu od 300 keV do 3000 keV (od 2. do 255. kanala).

U drugim energetske opsezima, u istim režimima rada ([1-6], [1-1], [2-2], [2-6], [3-3], [4-4], [5-5] i [6-6]), ukupne brzine brojanja fona bile su [44]:

u opsegu od 200 keV do 800 keV – 32.9 imp/s, 28.5 imp/s, 2.49 imp/s, 4.08 imp/s, 1.17 imp/s, 0.47 imp/s, 0.18 imp/s i 0.06 imp/s, respektivno;

u opsegu od 300 keV do 800 keV – 23.0 imp/s, 19.6 imp/s, 1.87 imp/s, 2.9 imp/s, 0.82 imp/s, 0.34 imp/s, 0.13 imp/s i 0.06 imp/s, respektivno;

u opsegu od 200 keV do 1000 keV – 37.0 imp/s, 31.9 imp/s, 2.83 imp/s, 4.60 imp/s, 1.30 imp/s, 0.53 imp/s, 0.20 imp/s i 0.07 imp/s, respektivno;

u opsegu od 300 keV do 1000 keV – 26.4 imp/s, 22.47 imp/s, 2.19 imp/s, 3.42 imp/s, 0.96 imp/s, 0.41 imp/s, 0.15 imp/s i 0.07 imp/s, respektivno;

u opsegu od 1000 keV do 2000 keV – 8.98 imp/s, 7.68 imp/s, 0.78 imp/s, 1.30 imp/s, 0.35 imp/s, 0.13 imp/s, 0.05 imp/s i 0.04 imp/s, respektivno;

u opsegu od 2000 keV do 3000 keV – 2.99 imp/s, 2.34 imp/s, 0.33 imp/s, 0.48 imp/s, 0.15 imp/s, 0.04 imp/s, 0.02 imp/s i 0.01 imp/s, respektivno.

S druge strane, fon je potrebno snimati pri svakom snimanju izvora i uzoraka iz životne sredine, a fonske uslove spektrometra treba razmatrati uvijek nanovo kada se razvijaju novi (ili unapređuju postojeći) koincidentni metodi⁵, i koriste različiti energetske opsezi, bez obzira što softver PRIP omogućava automatsko oduzimanje odgovarajućeg spektra fona od spektra izvora koji se razmatra (i spektri izvora i uzoraka iz životne sredine analiziraju nakon oduzimanja fona). Ponovljena istraživanja na spektrometru PRIPJAT-2M (u istim režimima rada i istim energetske opsezima, nakon razvoja metoda) pokazala su da varijacije u brzini brojanja fona nijesu značajne i spadaju u kategoriju očekivanih.⁶

Na primjer, u energetske opsegu od 200 keV do 2000 keV (koji je i ranije korišćen pri raznim analizama i pri raznim konfiguracijama sistema), tokom 1000 s realnog vremena, ukupne brzine brojanja fona u režimima [1-6], [1-1], [2-6], [2-2], [3-3], [4-4], [5-5] i [6-6] bile su: 31.5 imp/s, 25.5 imp/s, 5.9 imp/s, 3.6 imp/s, 1.6 imp/s, 0.68 imp/s, 0.28 imp/s, 0.15 imp/s, respektivno; zatim, 30.13 imp/s, 23.03 imp/s, – , 3.48 imp/s, 1.41 imp/s, 0.59 imp/s, 0.26 imp/s,

⁵ tj. kada se optimalni režimi mjerenja pojedinih izotopa utvrđuju na osnovu odnosa efikasnosti detekcije, kao i odgovarajućih fonskih brzina brojanja; odnosno na osnovu osjetljivosti spektrometra (preko minimalne detektibilne aktivnosti radioizotopa)...

⁶ Za neke režime rada, i u toku postupka modifikacije (i razvoja koincidentnih metoda), ukupne brzine brojanja fona neznatno su se mijenjale.

017 imp/s, respektivno; te: 31.5 imp/s, 25.5 imp/s, 6.1 imp/s, 3.7 imp/s, 1.5 imp/s, 0.62 imp/s, 0.34 imp/s, 0.09 imp/s, respektivno.

U energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, ukupne brzine brojanja fona u istim režimima rada bile su: 26.4 imp/s, 21.1 imp/s, 5.1 imp/s, 3.3 imp/s, 1.4 imp/s, 0.62 imp/s, 0.26 imp/s, 0.19 imp/s, respektivno; zatim, 26.4 imp/s, 21.1 imp/s, 5.2 imp/s, 3.4 imp/s, 1.3 imp/s, 0.57 imp/s, 0.32 imp/s, 0.11 imp/s, respektivno.⁷ Nakon razvoja metoda o kojima će biti riječi u narednim poglavljima (na primjer, tokom mjerenja u trajanju 1000 s i 3600 s), u režimima [1-6], [1-1], [2-2], [3-3], [4-4], [5-5] i [6-6], ukupne brzine brojanja fona su: 34.5 imp/s, 30.6 imp/s, 3.1 imp/s, 1.28 imp/s, 0.61 imp/s, 0.31 imp/s, 0.19 imp/s, respektivno (1000 s), te: 37.3 imp/s, 30.6 imp/s, 3.1 imp/s, 1.27 imp/s, 0.57 imp/s, 0.28 imp/s, 0.16 imp/s, respektivno (3600 s). Dodatno, na primjer, pri jednom snimanju fona tokom 2600 s realnog vremena, u nekoincidentnom, režimu dvostrukih koincidencija i režimu [2-6], brzine brojanja fona bile su 21.3 imp/s, 3.9 imp/s i 5.9 imp/s, respektivno.

Najveću varijaciju u brzini brojanja fona pokazali su integralni i nekoincidentni režim (za opseg od 300 keV do 3000 keV), dok su te varijacije u režimu dvostrukih i trostrukih koincidencija najčešće zanemarljive.

3.4. Osjetljivost spektrometra

Osjetljivost višedetektorskog spektrometra može se razmatrati preko minimalne aktivnosti $A(k)$ koju je moguće registrovati datim sistemom, a koja može biti predstavljena izrazom [45, 46]:

$$A(k) = \frac{\alpha^2 (1 + \sqrt{1 + 8k\tau^{k-1} C_N^k (2R)^k \prod_{j=1}^k f_j t / \alpha^2})}{2t C_N^k \prod_{j=1}^k \epsilon_j}, \quad (3.1)$$

⁷Ali i, za 500 s realnog vremena, 35.6 imp/s, 29.5 imp/s, 3.1 imp/s, 1.3 imp/s, 0.56 imp/s, 0.38 imp/s i 0.19 imp/s, respektivno.

gdje je C_N^k – broj kombinacija od N detektora u spektrometru po broju detektora koji istovremeno rade, tj. čiji su impulsi koincidentni, α je koeficijent određen zatom pouzdanošću dobijanja rezultata, t – vrijeme mjerenja, f – ukupna brzina brojanja fona u čitavom energetskom dijapazonu M , a $R = \frac{\Delta}{m_0}$ je rezolucija (m_0 označava broj kanala u kojem se nalazi centroida fotopika).

Proračun minimalne aktivnosti izvora zračenja koji emituje γ -zrake u kaskadama, a koju je moguće registrovati spektrometrom tipa PRIPJAT, potvrđuje prednost koincidentnog metoda. Proračun po formuli (3.1) izvršen je za višestrukost koincidencija 1, 2 i 3. Posmatrani su radionuklidi: ^{137}Cs (662 keV), ^{60}Co (1173 keV, 1333 keV) i ^{48}Sc (984 keV, 1038 keV, 1312 keV). Pri proračunu je uzeta srednja vrijednost efikasnosti registracije navedenih γ -prelaza $\varepsilon = 0.042$ (kao aritmetička sredina pojedinačnih vrijednosti efikasnosti), vrijeme rezolucije 40 ns, i energetska rezolucija 0.1. Vrijeme mjerenja bilo je 1000 s, a pouzdanost mjerenja je određivana koeficijentom $\alpha = 1$. Kao rezultat proračuna prema formuli (3.1), dobijene su sljedeće vrijednosti minimalnih aktivnosti $A(k)$: $A(1) \approx 0.38$ Bq, $A(2) \approx 0.038$ Bq, $A(3) \approx 0.70$ Bq, što znači da je osjetljivost instrumenta u režimu dvostrukih koincidencija u razmatranom slučaju oko deset puta bolja nego u nekoincidentnom režimu, i više od osamnaest puta bolja nego u režimu trostrukih koincidencija [42].

Eksperimentalna istraživanja na višedetektorskim spektrometrima sa kristalima NaI(Tl) jednakih dimenzija i efikasnosti detekcije (kao i teorijske analize koje su pratile ova istraživanja) pokazala su da, sa stanovišta postizanja maksimalne efikasnosti, nije uvijek optimalno rješenje registracija kaskade fotona u režimu koincidencija čija je višestrukost jednaka broju fotona u kaskadi (osim kada se radi o monoenergetskim izvorima i nekoincidentnoj registraciji zračenja), zbog čega je i za kaskade koje čine više fotona u nekim slučajevima najpogodnije koristiti režim dvostrukih koincidencija [36].

Svakako, pri razvijanju novih koincidentnih metoda mjerenja radionuklida, osjetljivost spektrometra, odnosno minimalnu detektibilnu aktivnost, treba razmatrati u svakom od upotrebljivih režima rada spektrometra, što je i urađeno u okviru ove doktorske disertacije.

3.5. Registracija koincidencija

3.5.1. Slučajne koincidencije

Brzina brojanja koincidencija spektrometrom sa više detektora obično se razmatra kao [37]:

$$c = c^{sl} + c^{st}, \quad (3.2)$$

gdje je c^{sl} brzina brojanja slučajnih koincidencija (dogadaja koji ne dolaze iz istog akta raspada), a c^{st} brzina brojanja stvarnih koincidencija (dogadaja istog porijekla).

Brojanje slučajnih koincidencija moguće je samo ako su pojave impulsa (na svim ulazima sistema koji registruje koincidencije) u vremenu raspoređene slučajno i ne zavise jedna od druge. Vremenska nezavisnost među impulsima u različitim kanalima postojaće samo kada uzajamni položaj detektora jonizujućeg zračenja isključuje mogućnost da jedna te ista čestica prođe kroz dva ili veći broj detektora.

Srednji broj slučajnih koincidencija višestrukosti N u jedinici vremena može se procijeniti pomoću [37]:

$$c_{Nj} = N\tau^{N-1} \prod_{j=1}^N c_j, \quad (3.3)$$

gdje je c_j srednja učestanost upada zračenja na j -ti detektor, ako je dužina impulsa u svakom od kanala koincidentnog uređaja ista i jednaka τ .⁸ Tako, broj slučajnih dvostrukih koincidencija u jedinici vremena, tj. brzina brojanja dvostrukih slučajnih koincidencija, bio bi $c_3 = 2\tau c_1 c_2$, a trostrukih $c_3 = 3\tau^2 c_1 c_2 c_3$, itd.

Smanjenje brzine brojanja slučajnih koincidencija moguće je smanjenjem vremena rezolucije koincidentnog uređaja. Međutim, tip detektora određuje minimalno vrijeme rezolucije

⁸ τ je vrijeme rezolucije uređaja.

koje se može uspostaviti (a da ne dođe do gubitka i stvarnih koincidencija), što ograničava eliminaciju slučajnih koincidencija.

Stvarne koincidencije dobijaju se kada se od ukupnog broja registrovanih koincidencija date višestrukosti oduzme fon, a zatim i slučajne koincidencije iste višestrukosti.

Početna istraživanja vezana za razvoj koincidentnog metoda mjerenja ^{232}Th (režim dvostrukih koincidencija, nakon što je omogućeno njihovo izdvajanje [37], i opseg od 200 keV do 2000 keV), pokazala su da je, na primjer, za fotopik energije 583 keV, doprinos slučajnih koincidencija $9.4 \cdot 10^{-6}$ imp/s (vrijeme mjerenja bilo je 500.4 s), što znači da se doprinos slučajno koincidentnih impulsa površini pod razmatranim fotopikom može zanemariti.

Stoga, slučajne koincidencije nijesu detaljnije razmatrane u okviru ove doktorske disertacije ali to, svakako, treba da bude predmet budućih istraživanja (i u budućem razvoju metoda i modifikaciji/unapređenju sistema – u prvom redu za fundamentalna istraživanja).

S druge strane, fonski spektri koji su snimani u istom režimu rada kao i izvor/uzorak, uvijek su oduzimani od spektara izvora/uzorka (prije sumiranja spektara i analiza), i na taj način su fonske koincidencije uglavnom eliminisane.

3.5.2. Efikasnost koincidentne detekcije zračenja

Efikasnost s kojom spektrometar od N detektora registruje zrake višestrukosti k kao događaj višestrukosti m, data je izrazom [47]:

$$P_N^m(k) = C_N^m \sum_{l=0}^m (-1)^{l-m} C_m^l \prod_{j=1}^k [1 - (N-l)\epsilon_j]. \quad (3.4)$$

gdje je C_N^m broj odgovarajućih kombinacija, l predstavlja moguću višestrukost koincidencija, a ϵ_j je efikasnost kojom j-ti detektor registruje foton određene energije. Ukoliko se radi o kaskadama zračenja, pri proračunu efikasnosti sistema, ϵ_j se može tretirati kao srednja vrijednost efikasnosti registracija svakog od γ -prelaza u kaskadi [46].

Izraz (3.4) u obzir uzima mogućnost istovremene registracije različitih fotona iz kaskade od strane jednog detektora, kao i razliku u efikasnostima za svaki od detektora. Ukupna

vjerovatnoća da se događaj registruje sa višestrukošću $m = 1, \dots, k$, ili da se uopšte ne registruje ($m = 0$), jednaka je jedinici, tj. $\sum_{m=0}^k P_N^m(k) = 1$.

U slučaju kada svi detektori imaju jednake efikasnosti detekcije, važi [48]:

$$P_N^m(k) = C_N^m \sum_{l=0}^m (-1)^{l-m} C_m^l [1 - (N-l)\varepsilon]^k. \quad (3.5)$$

Vjerovatnoća da šestdetektorski sistem (na primjer), registruje događaj višestrukosti 2, može se izvršiti na osnovu opšteg izraza (3.5) za spektrometar od N detektora. Vjerovatnoća da događaj višestrukosti 2 neće biti registrovan je: $P_6^0(2) = (1 - 6\varepsilon)^2$, gdje je ε – efikasnost detekcije kaskade takvim spektrometrom.

Vjerovatnoća da sistem od 6 detektora događaj višestrukosti 2 registruje kao događaj višestrukosti 1, data je izrazom: $P_6^1(2) = 6[(1 - 5\varepsilon)^2 - (1 - 6\varepsilon)^2]$, a vjerovatnoća da isti spektrometar dvostruku kaskadu registruje kao događaj višestrukosti 2:

$$P_6^2(2) = 15[(1 - 6\varepsilon)^2 - 2(1 - 5\varepsilon)^2 + (1 - 4\varepsilon)^2]. \quad (3.6)$$

Odnosno, efikasnost detekcije događaja višestrukosti k može se odrediti na više načina, a može se, u opštem slučaju, i računati na osnovu formule [48]:

$$\varepsilon = C_N^k \prod_{j=1}^k \varepsilon_j, \quad (3.7)$$

gdje je ε_j – sopstvena efikasnost svakog od detektora, koja zavisi od energije fotona, a C_N^k predstavlja broj kombinacija od N detektora u spektrometru, po broju detektora koji istovremeno rade, tj. čiji su impulsi koincidentni (u granicama vremena rezolucije).

Svakako, pojedinačni detektori u višedektorskom sistemu imaju sopstvene fotoefikasnosti i totalne efikasnosti registracije zračenja (koje se međusobno razlikuju i kod detektora istih dimenzija i tipa). Odnosno, efikasnost registracije fotona u kaskadi zavisi od mnogo faktora (foto i totalne efikasnosti pojedinačnih detektora, broja detektora, višestrukosti

kaskada, itd.), pa je od izuzetnog značaja eksperimentalno dobijena vrijednost efikasnosti detekcije (korišćenjem odgovarajućih „čistih“ izvora) – u različitim režimima rada (tj. spektrima koji predstavljaju realnu registraciju koincidencija različitih višestrukosti). U okviru ove doktorske disertacije, efikasnosti su određivane upravo eksperimentalno, ali valja napomenuti da bi u nekom budućem istraživanju (između ostalog i koristeći saznanja do kojih se došlo tokom predmetnih istraživanja), trebalo (detaljnije) razmotriti primjenu gore navedenih izraza, kao što bi (između ostalog) trebalo uraditi Monte Karlo simulaciju spektara, i rezultate uporediti sa rezultatima sprovedenih eksperimenata.

Tim prije što je njihova⁹ primjena ograničena potrebom da karakteristike i parametri sistema budu stabilni (a, s druge strane, ograničena je i mogućnost njihove kontrole). Stoga se (kao prediktivni) primjenjuju i poluempirijski metodi (koje bi takođe u budućim istraživanjima trebalo razmatrati, s obzirom na specifičnost razvijenih koincidentnih metoda...), i jedan od njih je korišćen¹⁰ i, na primjer, kod razvoja koincidentnog metoda mjerenja radona u vodi [36].

Takođe, razvijajući metod mjerenja ^{232}Th (u režimu dvostrukih koincidencija), i koristeći set kalibracionih izvora poznatih aktivnosti (i izraženih fotopikova na različitim energijama, u opsegu od 200 keV do 2000 keV), dobijena je fotoefikasnost registracije γ -zraka energije 583 keV (cijelim spektrometrom) $\epsilon_1 = 0.22$, kao i totalna efikasnost koincidentne registracije γ -zraka energije 583 keV i drugog γ -zraka koji je sa njim u kaskadi: $\epsilon_2 = 0.56$ [37, 38]. Koristeći ove podatke, i relativni intenzitet zraka energije 583 keV, koji slijedi β^- -raspad ^{208}Tl ($I = 0.845$), izračunate su efikasnosti detekcije kaskadnih prelaza pri deekscitaciji jezgra ^{208}Pb , odnosno efikasnosti detekcije ^{232}Th u različitim režimima rada spektrometra:

$$\epsilon([1-6]) = \epsilon_1 I = 0.186, \quad \epsilon([1-1]) = \epsilon_1 I \left[1 - \frac{5}{6} \epsilon_2\right] = 0.099, \quad \epsilon([2-2]) = \epsilon_1 I \frac{5}{6} \epsilon_2 = 0.087 \quad [37, 38].$$

Eksperimentalna efikasnost registracije ^{232}Th preko datog fotopika bila je:

$$\epsilon([1-6]) = N_{\text{foto}}/(AI) = 0.202 \quad (\text{gdje je } N_{\text{foto}} \text{ brzina brojanja u fotopiku – neto; } A \text{ je aktivnost izvora, a } I \text{ – intenzitet gama prelaza}), \quad \epsilon([1-1]) = 0.096, \quad \epsilon([2-2]) = 0.086 \quad [37, 38].$$

Te (eksperimentalno dobijene) efikasnosti bile su primjenjivane prilikom određivanja aktivnosti (tj. koncentracija aktivnosti) produkata raspada torijuma u čvrstim uzorcima [37].

⁹ tj. gore navedenih izraza

¹⁰ prije najnovije modifikacije

Date vrijednosti za efikasnosti odnosile su se na ^{232}Th i njegove potomke (u radioaktivnoj ravnoteži), osim ^{208}Tl i ^{212}Po . Ovo stoga što se u ^{232}Th nizu (kao što je rečeno u poglavlju 2 – 2.3) samo ^{212}Bi raspada na dva načina: 35.94 % – α -raspadom u ^{208}Tl , i 64.06 % – β^- -raspadom u ^{212}Po . Stoga, iz šeme raspada i eksperimentalnih rezultata slijedilo je da je za određivanje aktivnosti (samo) ^{208}Tl u datom uzorku potrebno koristiti sljedeće vrijednosti za efikasnosti: $\epsilon([1-6]) = 0.562$, $\epsilon([1-1]) = 0.267$, $\epsilon([2-2]) = 0.240$ [38].

3.5.3. Suming efekat

U gore pomenutom, prethodnom istraživanju, slučajne koincidencije dale su zanemarljiv doprinos, fon je oduziman, i odbroji su (kao što je to rađeno i u okviru ove doktorske disertacije) korigovani na tzv. *suming* efekat.

Odnosno, (konačan) broj odbroja koji u spektru jednog detektora potiču od fotona date energije, dobija se nakon oduzimanja fonskih odbroja i Komptonovog doprinosa, i korekcija gubitaka koji su posljedica istovremene registracije oba fotona u kaskadi jednim te istim detektorom. Tada detektor registruje sumarnu energiju oba prelaza, pa su ti impulsi „gubitak“ za fotopik od interesa. Broj odbroja u fotopiku koriguje se na (tj. dijeli sa) korekcionim faktorom (k_{SE}), koji, na osnovu opšte formule [49], u datom slučaju postaje [37]:

$$K_{SE} = [1 - a_A \cdot c_A \cdot \epsilon_{i,B} \cdot I_B / I_A] \cdot [1 + S(A)], \quad (3.8)$$

gdje je:

- a_A vjerovatnoća da prelaz A slijedi nakon prelaza B;
- c_A vjerovatnoća da foton date energije bude emitovan, tj. $c_A = 1/(1+\alpha_{i,A})$, gdje je $\alpha_{i,A}$ ukupni koeficijent interne konverzije;
- $\epsilon_{i,B}$ totalna efikasnost registracije drugog fotona u kaskadi;
- I_A i I_B intenziteti γ -prelaza date energije i drugog γ -prelaza u kaskadi, respektivno;
- $S(A)$ je vjerovatnoća za koincidentno sumiranje koje dovodi do dodatnih impulsa u posmatranom piku.

Tako, u režimu dvostrukih koincidencija, s obzirom na registracije kaskada koje se javljaju pri raspadu ^{226}Ra i ^{232}Th (o čemu će biti riječi u poglavljljima koja slijede), dati efekat

neophodno je razmatrati i kod fotopika koji kreiraju zraci energije 609 keV (^{226}Ra niz; β^- -raspad ^{214}Bi), i kod fotopika koji kreiraju zraci energije 583 keV (^{232}Th niz; β^- -raspad ^{208}Tl), ali i zraci energije 2615 keV (iako je za analize korišćen opseg do 3000 keV).

Ilustracije radi, kao što će biti navedeno kasnije, kada je u pitanju raspad ^{226}Ra , najintenzivniju dvostruku kaskadu čine: 1120.287 keV (15.1 %) + 609.312 keV (46.1 %). Koeficijent a_A (kao i u ostalim slučajevima) je 1, tj. razmatrani prelaz (zrak energije 609 keV) slijedi iza datog (1120.287 keV), ali i ostalih prelaza. U proračunima ($K_{SE} = 0.848$) u obzir je uzet konverzioni koeficijent (e_k/γ) 0.0143 [50], dok je $S(A)$ zanemareno, jer nema značaja u razmatranom slučaju.

Takode, razmatrajući fotopik na energiji 2615 keV, i najintenzivniju dvostruku kaskadu 583.191 keV (84.5 %) + 2614.533 keV (99 %), na isti način i uzimajući konverzioni koeficijent (e_k/γ) 0.0017 [50], dobijeno je $K_{SE} = 0.647$. $S(A)$ je i ovdje zanemareno, zbog toga što su već početne analize pokazale da je vjerovatnoću za koincidentno sumiranje koje dovodi do dodatnih impulsa u posmatranom piku (u slučaju „čistog“ izvora ^{232}Th) moguće zanemariti. Može se zaključiti da sumirane energije nešto intenzivnijih zraka iz ovog radioaktivnog niza „pune“ oblast koja se poklapa, ne sa fotopikom, već sa Kompton oblašću (za zrak energije 2615 keV), tj. sa regionom čija je centroida na oko 2200 keV (o čemu će biti riječi kasnije).

Dodatno, posmatrajući fotopik na energiji 583 keV (i $e_k/\gamma = 0.015$ [50]), i intenzivnu dvostruku kaskadu 510.77 keV (22.6 %) + 583.191 keV, kao i 763.13 keV (1.81 %) + 583.191 keV, na isti način su dobijeni $K_{SE} = 0.891$ i $K_{SE} = 0.99$, respektivno.

Treba naglasiti da (zbog energetske rezolucije sistema PRIPJAT) ovaj fotopik ne može biti razdvojen od fotopika na energiji 510.77 keV. Početne analize su pokazale da, uopšte govoreći, ukoliko bi se u obzir uzimalo navedeno, ali i činjenica da su zraci energija približno 2615 keV, 511 keV, 277 keV i 763 keV emitovani u kaskadi sa datim zrakom, totalni intenzitet za datu liniju bio bi 0.385, kao što bi, za liniju 2615 keV (razmatrajući režime dvostrukih i trostrukih koincidencija), s obzirom da je taj zrak u kaskadi sa svim ostalim zracima, totalni intenzitet bio 0.359 [51]. Ovo svakako može biti (i treba da bude) predmet budućih istraživanja.

S druge strane, budući da su pri eksperimentalnom određivanju efikasnosti detekcije (u okviru ove doktorske disertacije), korišćeni standardi (tj. „čisti“ izvori ^{226}Ra i ^{232}Th), i urađena poređenja nekoincidentne (i integralne) i koincidentne registracije, koja su pokazala dominantan

doprinos razmatranim (prethodno pomenutim) fotopikovima upravo zraka najvećih intenziteta – 583 keV i 2615 keV, pri konačnom razvoju metoda, eksperimentalno je (nakon oduzimanja fona i svih korekcija) određivana efikasnost detekcije – iz spektara u datom režimu rada, uzimajući u obzir intenzitete zraka koji dominantno „pune“ fotopikove¹¹ (tim prije što su, na primjer, u slučaju fotopika na energiji 583 keV, odbroji korigovani i na *suming* efekat: $K_{SE} = 0.891$, za kaskadu 510.77 keV + 583.191 keV, a u nekoincidentnom režimu mjerenja, zbog značajno većeg intenziteta, pik dominantno „puni“ zrak energije 583.191 keV).

Takode, pri nekoincidentnoj registraciji ^{232}Th , fotopik na energiji 911 keV (nakon β^- -raspada ^{228}Ac), je multipl pik koji se sastoji od zraka čije su energije približno 911 keV (25.8 %), 965 keV (5 %, tj. 4.99 %) i 969 keV (15.8 %), pa bi totalni intenzitet bio 0.47 [51]. Međutim, zbog dominantnog doprinosa zraka energije 911 keV, pri određivanju efikasnosti podrazumijevano je da pik kreiraju upravo ti zraci (zbog čega je proračun za konkretne spektre u integralnom i nekoincidentnom režimu vršen na osnovu njihovog intenziteta, i taj princip dalje primjenjivan pri analizi uzoraka iz životne sredine). Treba napomenuti da je dati pik preklopljen (zbog energetske rezolucije sistema PRIPJAT) sa pikom koji grade zraci energije približno 860 keV (nakon β^- -raspada ^{208}Tl), što bi takode moglo biti predmet budućih istraživanja (iako se ne radi o koincidentnoj registraciji zračenja).

4. IZBOR OPTIMALNOG REŽIMA MJERENJA RADIONUKLIDA

¹¹ A greška mjerenja (pri, na primjer, mjerenju uzoraka iz životne sredine – zemljišta, itd.) veća je nego kod HPGe spektrometra.

U istraživanjima u okviru ove doktorske disertacije (vezanim za razvoj koincidentnih metoda mjerenja na višedetektorskom spektrometru PRIPJAT-2M, tj. spektrometrima tipa PRIPJAT, koji imaju geometriju mjerenja blisku 4π), razmatrana je detekcija četiri radionuklida – ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th (zadnja dva – preko produkata njihovog raspada). Ovo stoga što, iako je spektrometar bio konstruisan za ekspresno određivanje ^{137}Cs i ^{40}K u uzorcima iz životne sredine, razvoj koincidentnih metoda (modifikacija elektronike i softvera), zahtijevao je da se i za njihovo mjerenje utvrdi optimalni režim (i energetski opseg koji treba koristiti) – a da bi se istovremeno obezbijedilo (ekspresno) mjerenje produkata raspada radijuma i torijuma.

Odnosno, u postupku modifikovanja sistema i razvoja metoda, rješavanje problema detekcije ^{226}Ra i ^{232}Th spektrometrom PRIPJAT-2M (te njihove istovremene detekcije – o čemu će biti riječi u jednom od narednih poglavlja, kao i o istovremenoj detekciji sva četiri navedena radionuklida), zahtijevalo je (ne samo dodatna podešavanja elektronike i softvera) već i dodatnu analizu efikasnosti registracije i fonskih uslova. Tim prije što drugačije brzine brojanja fona (za različite energetske opsege i slično), kao i efikasnosti registracije gama zraka, utiču na osjetljivost bilo kog spektrometra.

U toku razvoja metoda, u pojedinim fazama¹², provjeravane su i računate, kako efikasnosti, tako i osjetljivost, tj. minimalne detektibilne aktivnosti pojedinih radioizotopa za dato vrijeme mjerenja, utvrđivani su *odnosi* među režimima i opsezima, i spektrometar je mogao biti (i jeste) korišćen za različita istraživanja (sa njegovim trenutnim karakteristikama). Proračuni efikasnosti (u prvom redu efikasnosti registracije γ -zraka u fotopiku, tj. fotoefikasnosti) su često vršeni „ručno“ (na standardni način, na osnovu eksperimentalnih podataka – uzimajući u obzir brzinu brojanja pod fotopikom u datom režimu rada, nakon oduzimanja fona, poznatu aktivnost izvora, kao i intenzitet registrovanog γ -zraka), ili koristeći mogućnosti softvera PRIP (koji *fituje* pikove, daje brzinu brojanja /neto/ pod fotopikom, i druge potrebne podatke) i korigujući odbroje¹³, a zatim su na osnovu toga računate minimalne detektibilne aktivnosti. Na ovaj način su dobijani podaci koji su dalje usmjeravali rad – do konačnog uspostavljanja metoda.

¹² Intenzivna istraživanja rađena su i 2007, i početkom 2008. godine, što je omogućilo ustanovljenje koincidentnih metoda mjerenja radijuma i torijuma. Odnosno, do velikog broja rezultata/saznanja vezanih za detekciju ^{226}Ra i ^{232}Th , došlo se tokom te dvije godine.

¹³ Kompton rasijanje, *summing* efekat.

Konačno, nekoliko značajnih problema (vezanih za istovremenu detekciju radijuma i torijuma, ali i istovremenu detekciju cezijuma, kalijuma, radijuma i torijuma – što će biti razmatrano u poglavljima koja slijede) je riješeno, a pri tome, karakteristike sistema (tipa – osjetljivosti) nijesu pogoršane.

4.1. Fon u oblasti fotopikova u različitim energetske opsezima i režimima rada spektrometra

Ispitivanja područja fotopikova¹⁴ pomoću kojih bi se spektrometrom PRIPJAT-2M mogle određivati aktivnosti, a koje kreiraju izvori: ¹³⁷Cs (γ-zrak energije 662 keV, intenziteta 85.1%), ⁴⁰K (γ-zrak energije 1460 keV, intenziteta 10.7 %), ²²⁶Ra (γ-zrak energije 609 keV, intenziteta 46.1 %), ²³²Th (γ-zraci energija 583 keV, 911 keV i 2615 keV, intenziteta 84.5 %, 25.8 % i 99 %, respektivno), pokazala su da su brzine brojanja fona (N_f) u integralnom, nekoincidentnom, režimu [2-6] i režimu dvostrukih koincidencija, dobijene za 1000 s realnog vremena u dva energetska opsega o kojima je već bilo riječi u poglavlju 3 (3.3) [44]:

u regionu fotopika na energiji 662 keV: 6.13 imp/s (u prvom energetske opsegu¹⁵) i 6.91 imp/s (u drugom energetske opsegu¹⁶) – u integralnom režimu rada, kao i 5.66 imp/s (u prvom opsegu) i 5.57 imp/s (u drugom opsegu) – u nekoincidentnom režimu rada;

u regionu fotopika na energiji 1460 keV: 2.55 imp/s (u prvom opsegu) i 3.01 imp/s (u drugom opsegu) – u integralnom režimu rada, kao i 2.06 imp/s (u prvom opsegu) i 2.36 imp/s (u drugom opsegu) – u nekoincidentnom ([1-1]) režimu rada;

u regionu fotopikova na energijama 609 keV i 583 keV – tabela 4.1.1;

u regionu fotopika na energiji 911 keV: u integralnom i nekoincidentnom režimu rada – 3.68 imp/s i 2.99 imp/s, respektivno (u prvom opsegu), i 3.75 imp/s i 2.97 imp/s, respektivno (u drugom opsegu);

¹⁴ Određenih iz spektara kalibracionih izvora cezijuma i kalijuma (VNIIM D.I. Mendeleev, ¹³⁷Cs: OMASN, N.72/94-2, smola mase 0.486 kg, ⁴⁰K: OMASN, N. 103/92, kalijum-hlorid mase 0.55 kg), radijuma (²²⁶Ra, Pylon Electronics Inc. Canada, 2250 Bq, S/N 189) i torijuma (²³²Th, 1000 Bq, Institut za fiziku Akademije nauka Bjelorusije, Minsk) koji su snimani po 1000 s realnog vremena.

¹⁵ (200-2000) keV

¹⁶ (300-3000) keV

u regionu fotopika na energiji 2615 keV: u integralnom, nekoincidentnom, režimu [2-6], kao i u režimu izdvojenih dvostrukih koincidencija – 0.92 imp/s, 0.49 imp/s, 0.30 imp/s i 0.13 imp/s, respektivno (u drugom opsegu).

Tabela 4.1.1. Brzine brojanja fona (N_f) u oblastima fotopikova na energijama 609 keV i 583 keV.

Energetski opseg [keV]	Režim rada	N_f [imp/s] (609 keV)	N_f [imp/s] (583 keV)
200-2000	[1-6]	6.40	7.36
	[1-1]	5.17	4.89
	[2-6]	1.36	1.68
	[2-2]	0.83	1.08
	[3-3]	0.25	0.48
300-3000	[1-6]	6.49	7.77
	[1-1]	5.01	5.19
	[2-6]	1.55	1.83
	[2-2]	0.86	1.10
	[3-3]	0.36	0.45

4.2. Detekcija ^{226}Ra i ^{232}Th

4.2.1. Prve detekcije ^{226}Ra i ^{232}Th , nakon omogućavanja izbora različitih energetskih opsega i razdvajanja koincidencija različitih višestrukosti

Prva modifikacija spektrometara tipa PRIPJAT, omogućila je rad u integralnom, nekoincidentnom i u režimu koincidencija višestrukosti od dva do šest, bez razdvajanja ([2-6]), nakon čega je razvijen metod mjerenja ^{222}Rn u vodi [36].

Zatim je, kao što je već rečeno, uz pomoć konstruktora, sistem ponovo modifikovan (tj. unaprijeđen – novim modulima i softverskim rješenjem) – za potrebe razvoja koincidentnih metoda mjerenja radionuklida, sa ciljem unapređenja karakteristika sistema, što je i potvrđeno početnim istraživanjima i razvojem metoda mjerenja ^{232}Th u režimu izdvojenih dvostrukih

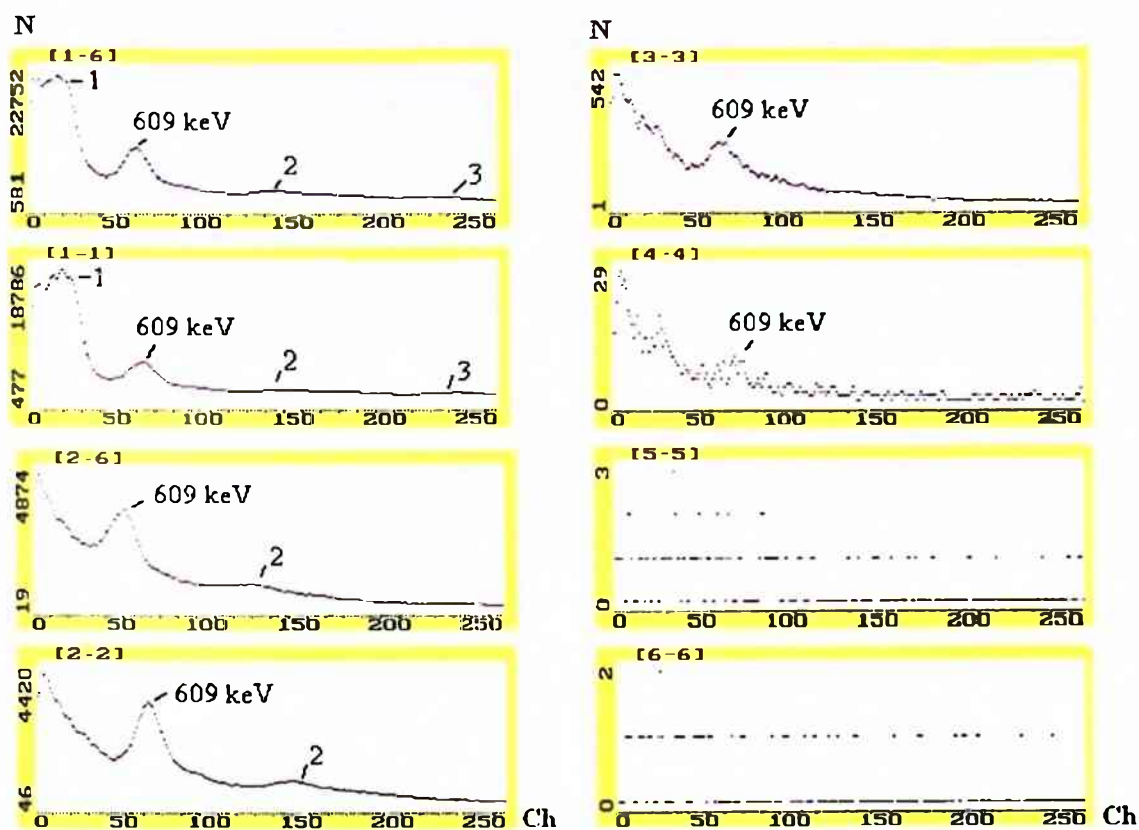
koincidencija i energetsom opsegu od 200 keV do 2000 keV. Tada su za testiranje metoda korišćeni uzorci šuta i crvenog mulja sa povećanim sadržajem/aktivnošću torijuma [37, 38].¹⁷

Odmah nakon što je omogućen energetski opseg od 300 keV do 3000 keV, i nakon analiza šema raspada, mjereni su specifikirani izvori ^{226}Ra i ^{232}Th , ali sada u svim dostupnim režimima rada spektrometra. Cilj tog istraživanja je bio – utvrditi koje fotone i kako (tj. u kojim režimima rada) spektrometar registruje, odrediti *odnose* među pojedinim režimima rada (i energetske opsege), tj. utvrditi kako nastaviti i konačno razviti metode, te koji režim koristiti za ekspresno određivanje radijuma/torijuma u (na primjer) uzorcima iz životne sredine, omogućavajući njihovu preciznu istovremenu detekciju, s obzirom na energetske rezolucije spektrometra. Pri konačnom razvoju metoda koji je ubrzo uslijedio (i biće predstavljen u poglavljima 5 i 6), testirana su i različita vremena mjerenja i višestrukost koincidencija koje je za date izotope moguće registrovati.

Naime, izvor ^{226}Ra poznate aktivnosti (*Pylon Electronics Inc. Canada*, 2250 Bq, S/N 189) u metalnom cilindru (visina: 6 cm, dijametar: 4.4 cm), u kome je ^{226}Ra u radioaktivnoj ravnoteži sa potomcima (nema gubitaka usljed emanacije ^{222}Rn), prvobitno je mjereno spektrometrom PRIPJAT-2M tokom 1000 s realnog vremena u svim raspoloživim režimima rada: u integralnom režimu, u režimu [2-6] i uspostavljenim koincidentnim režimima (koincidencije različitih višestrukosti, razdvojene: [1-1], [2-2], [3-3], [4-4], [5-5], [6-6]).

Ispitivani energetski opseg bio je od 200 keV do 2000 keV, a kasnije i od 300 keV do 3000 keV. Sumarni spektri u energetske opsegu od 200 keV do 2000 keV, u različitim režimima rada, prikazani su na slici 4.2.1 [52]. Živo vrijeme snimanja u integralnom režimu bilo je 663.2 s, u nekoincidentnom i koincidentnim režimima – 666.3 s, dok je u režimu koincidencija [2-6] ono iznosilo 652.6 s. Ista živa vremena snimanja bila su i u slučaju energetskog opsega od 300 keV do 3000 keV (predstavljeno na slici 4.2.2) [53].

¹⁷ I u tom istraživanju u obzir je uzeto da postoji i određeni sadržaj/aktivnost radijuma, i upravo su ta istraživanja pomogla da se relativno brzo i konačno riješi problem njihove istovremene detekcije, o čemu će biti riječi kasnije.

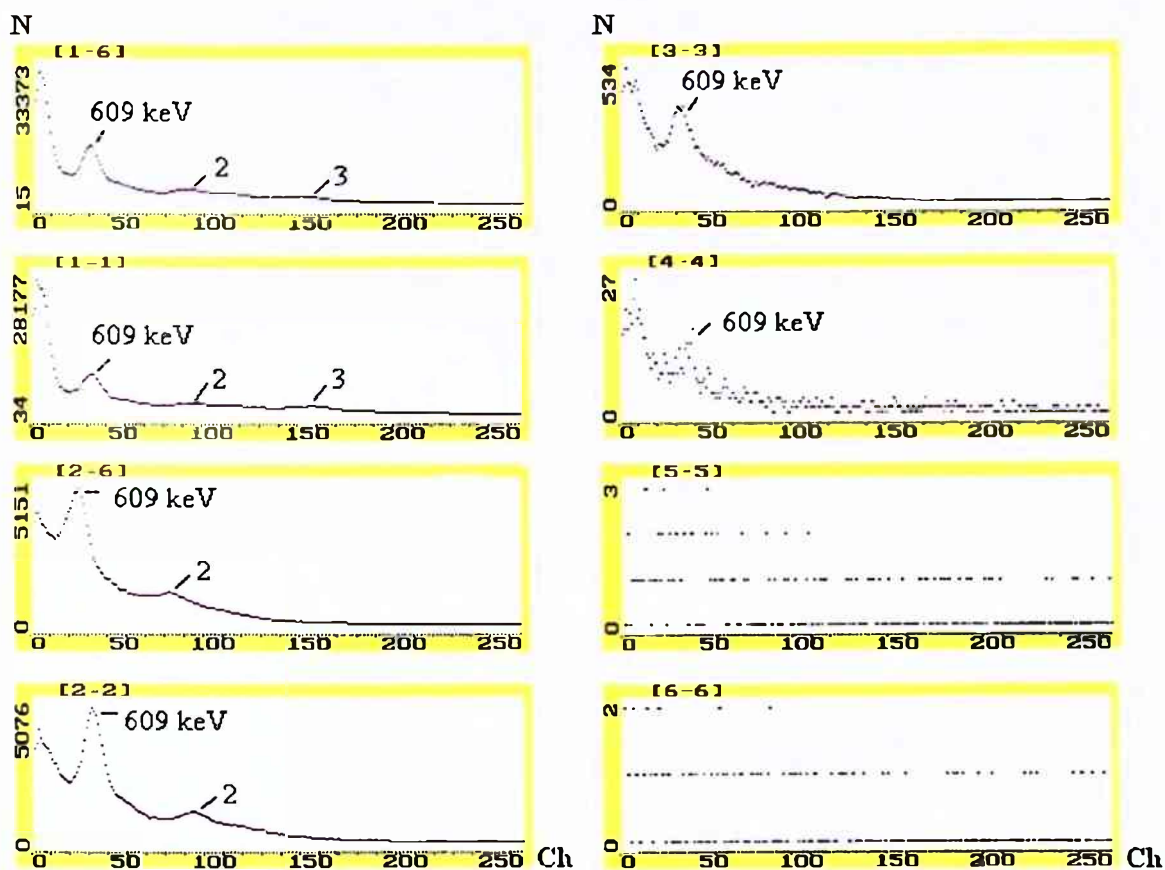


Slika 4.2.1. Sumarni spektri izvora ^{226}Ra u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M, u energetsom opsegu od 200 keV do 2000 keV (1000 s realnog vremena).

Odnosi brzina brojanja u spektru radijuskog izvora i u spektru fona¹⁸, za energetske opsege od 200 keV do 2000 keV, u režimima rada [1-6], [1-1], [2-6], [2-2], [3-3], [4-4], [5-5] i [6-6], bili su: 56.74, 53.27, 68.91, 111.57, 25.49, 2.55, 0.44 i 1.02, respektivno [52], a za energetske opsege od 300 keV do 3000 keV – 51.16, 48.89, 62.61, 98.56, 22.20, 2.12, 0.54 i 1.19, respektivno [53]. Kao što se može vidjeti, ovi odnosi su, uglavnom, bili veći u energetsom opsegu (200-2000) keV, nego u opsegu (300-3000) keV. Najbolji odnos dobijen je za režim dvostrukih koincidencija, u oba energetska opsega (iako je u opsegu od 200 keV do 2000 keV on

¹⁸ Brzina brojanja fona u oblasti (200-2000) keV veća je nego u oblasti (300-3000) keV, tj. (očekivano) doprinos fona oblasti od 200 keV do 300 keV veći je od doprinosa fona oblasti (2000-3000) keV. Takođe, u oba razmatrana opsega (od 200 keV do 2000 keV, i od 300 keV do 3000 keV), ukupna brzina brojanja fona opada sa rastom višestrukosti koincidencija [53].

nešto veći). Drugi najbolji odnos brzina brojanja (spektar izvora/spektar fona) dobijen je za režim [2-6], pa tek onda za integralni režim.



Slika 4.2.2. Sumarni spektri izvora ^{226}Ra u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M, u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV (1000 s realnog vremena).

Slike 4.2.1 i 4.2.2 pokazuju da je pik na energiji 609 keV izražen u spektru dvostrukih i trostrukih koincidencija, kao i u režimu koincidencija višestrukosti od 2 do 6. U spektru četverostrukih koincidencija, za dato vrijeme mjerenja, ovaj fotopik nije formiran dovoljno dobro za pouzdanu analizu, dok u spektrima petostrukih i šestostrukih koincidencija on i ne postoji (tj., petostruke i šestostruke koincidencije, za dato vrijeme mjerenja, nijesu registrovane).

Brzina brojanja u oblasti fotopika na energiji 609 keV¹⁹ u režimima rada [1-6], [1-1], [2-6], [2-2] i [3-3], za energetske opsege od 200 keV do 2000 keV, iznosila je: 347.81 imp/s, 218.77 imp/s, 133.24 imp/s, 125.46 imp/s i 9.13 imp/s, respektivno [53]. Odnosno, u odnosu na istu oblast u fonskom spektru bila je veća 54.33, 42.31, 98.04, 150.43 i 36.53 puta, respektivno [52].

U energetske opsegu od 300 keV do 3000 keV, za pomenute režime rada, brzina brojanja iznosila je 347.85 imp/s, 211.53 imp/s, 146.99 imp/s, 127.14 imp/s i 9.13 imp/s, respektivno (a u fonskom spektru – kako je navedeno u tabeli 4.1.1) [53].

Region 1 (slika 4.2.1) najvećim dijelom predstavlja pikove (dijelom *preklopljene*, a dijelom i odsječene) na energijama 351.932 keV (37.6 %), 295.224 keV (19.3 %) i 241.997 keV (7.43 %), tj. γ -zrake koji prate β^- -raspad ^{214}Pb (u ^{214}Bi), čije razdvajanje je otežano (a dijelom i nemoguće) zbog energetske rezolucije NaI(Tl) detektora i spektrometra PRIPJAT-2M (kao i donjeg energetskog praga od 200 keV). Brzina brojanja u ovoj oblasti u spektru izvora radijuma bila je 730.37 imp/s – u integralnom, 581.18 imp/s – u nekoincidentnom režimu rada, dok su brzine brojanja fona iznosile 11.38 imp/s i 8.75 imp/s, respektivno. Odnosno, u datoj oblasti, u odnosu na istu oblast u fonskom spektru, brzina brojanja veća je 64.18 i 66.42 puta, respektivno [52, 53].

Pik 2, sa centroidom na oko 1200 keV (o kome će detaljnije biti riječi u sljedećem poglavlju, tj. poglavlju 5), u energetske opsegu od 200 keV do 2000 keV, pokazao je brzine brojanja u iznosu 130.76 imp/s – u integralnom, 77.87 imp/s – u nekoincidentnom, 34.93 imp/s – u režimu [2-6] i 40.41 imp/s – u režimu dvostrukih koincidencija; dok su brzine brojanja u ovoj oblasti u odgovarajućem spektru fona iznosile 2.59 imp/s, 2.35 imp/s, 0.45 imp/s i 0.34 imp/s, respektivno (tj. bile su manje 50.48, 30.06, 77.62 i 118.85 puta, respektivno).

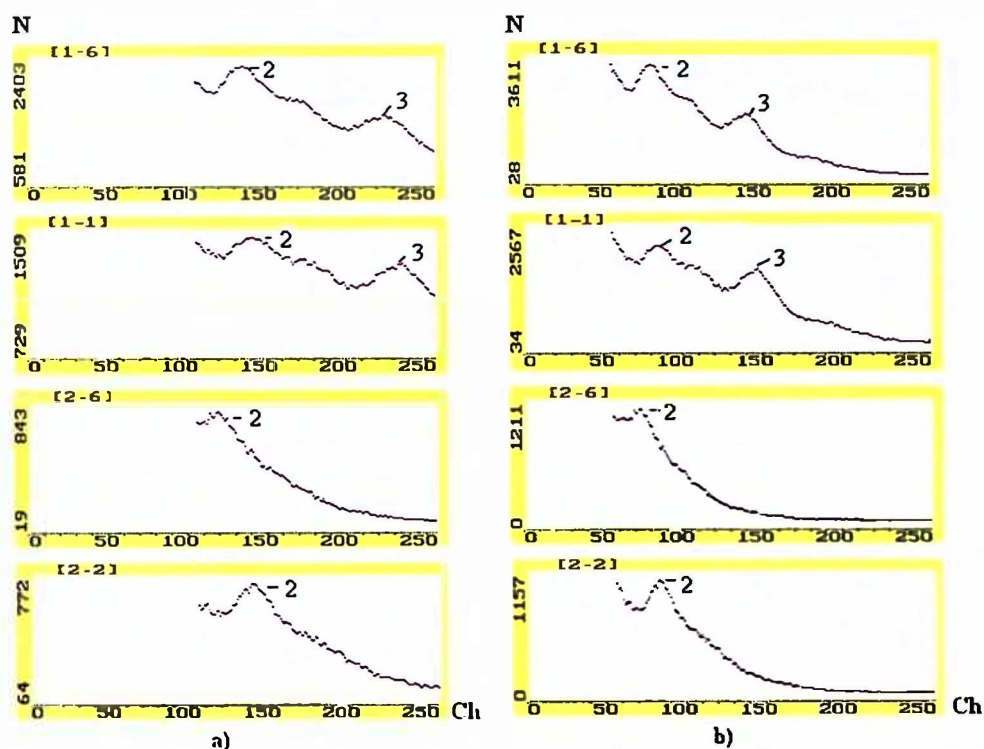
U energetske opsegu od 300 keV do 3000 keV, brzine brojanja u piku 2 bile su: 141.21 imp/s (integralni režim), 89.86 imp/s (nekoincidentni režim), 41.7 imp/s ([2-6]) i 42.43 imp/s (režim dvostrukih koincidencija), a brzine brojanja u fonskom spektru iznosile su 2.84 imp/s, 2.02 imp/s, 0.57 imp/s i 0.37 imp/s, respektivno [53].

Pik 3 u spektru radijuma (detaljnije će biti komentarisano u poglavlju 5, ali treba reći da se centroid nalazi na oko 1800 keV), u energetske opsegu od 200 keV do 2000 keV, pokazao je brzine brojanja: 76.18 imp/s – u integralnom, i 68.24 imp/s – u nekoincidentnom režimu rada, a u

¹⁹ Oblast određivana „ručno“, i uz slobodnu procjenu gdje „počinje“ i gdje se „završava“ fotopik (tj. bez korekcija)...

odgovarajućem spektru fona u ovoj oblasti brzine brojanja su bile 1.25 imp/s i 0.98 imp/s, respektivno (tj. bile su manje 60.94 i 69.63 puta, respektivno [52]). U energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, brzine brojanja u spektru radijuma, za istu oblast i režime rada, iznosile su 96.58 imp/s i 84.06 imp/s, respektivno, a u fonskom spektru – 1.76 imp/s i 1.24 imp/s, respektivno [53].

Radi poređenja, na slici 4.2.3 zumiran je sumarni spektar radijuma (nakon oduzimanja fona) i to: od 105. do 255. kanala – u energetsom opsegu od 200 keV do 2000 keV (a), i od 55. do 255. kanala – u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV (b).

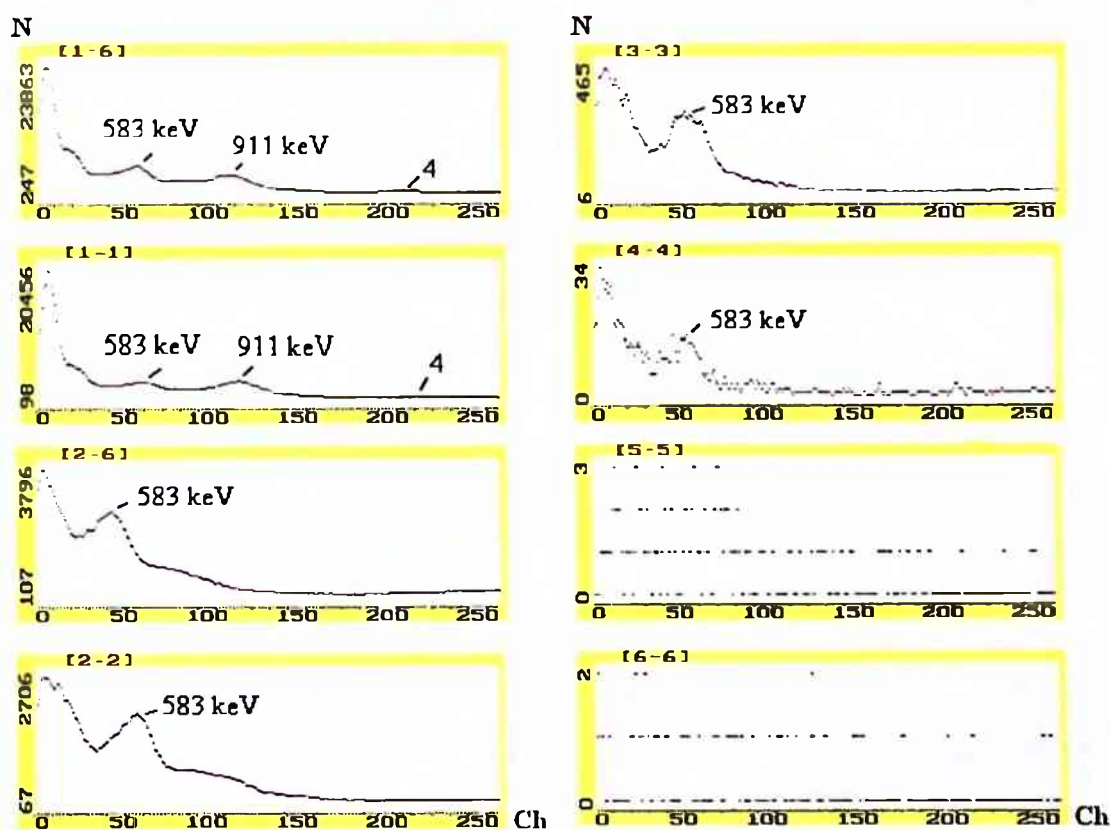


Slika 4.2.3. Poređenje zumiranih spektara izvora ^{226}Ra : (a) (105-255) kanal, u energetsom opsegu (200-2000) keV; (b) (55-255) kanal, u energetsom opsegu (300-3000) keV.

Izvor torijuma poznate aktivnosti (Institut za fiziku Akademije nauka Bjelorusije u Minsku; visina: 10 mm, prečnik: 15 mm, masa: 1.41 g, aktivnost: 1000 Bq), gdje je torijum u radioaktivnoj ravnoteži sa potomcima, tj. nema gubitaka usljed emanacije torona (^{220}Rn), sniman je spektrometrom PRIPJAT-2M 1000 s realnog vremena – u integralnom (živo vrijeme mjerenja

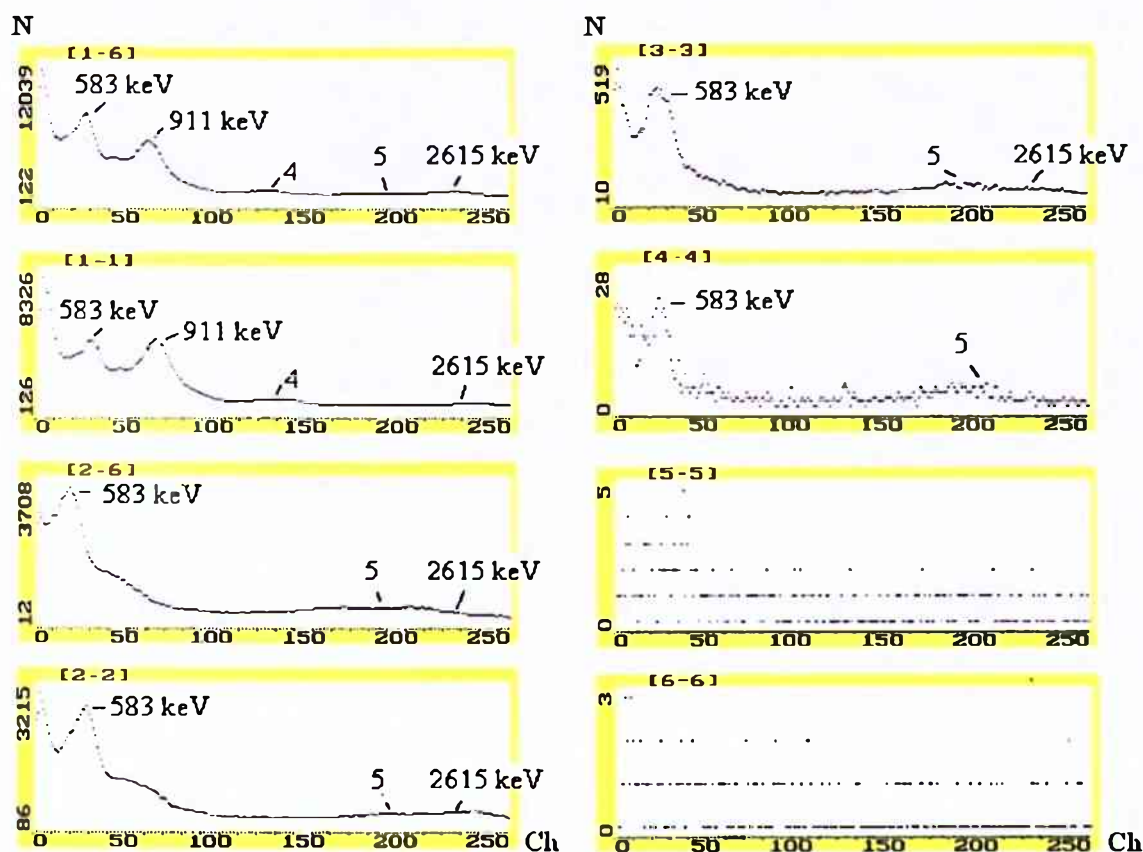
bilo je 794.5 s), nekoincidentnom i koincidentnim režimima rada (živo vrijeme mjerenja: 794.6 s), kao i u režimu [2-6] (živo vrijeme mjerenja: 835 s). Sumarni spektar u opsegu od 200 keV do 2000 keV prikazan je na slici 4.2.4, dok je sumarni spektar u energetskom opsegu od 300 keV do 3000 keV prikazan na slici 4.2.5.²⁰

Odnosi brzina brojanja u spektrima dobijenim snimanjem izvora torijuma i fona, u energetskom opsegu (200-2000) keV, u režimima rada [1-6], [1-1], [2-6], [2-2], [3-3], [4-4], [5-5] i [6-6], bili su: 28.82, 26.82, 38.26, 57.48, 18.54, 2.44, 0.56 i 1.12, respektivno; a u opsegu (300-3000) keV: 24.66, 21.21, 37.77, 56.45, 18.86, 2.26, 0.73 i 1.26, respektivno. Najbolji odnos je dobijen za režim dvostrukih koincidencija, i to u oba energetska opsega (i opet je ovaj odnos nešto bolji u energetskom opsegu (200-2000) keV) [53].



Slika 4.2.4. Sumarni spektri izvora ^{232}Th u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M u energetskom opsegu od 200 keV do 2000 keV.

²⁰ Treba naglasiti da su energetske regije selektovane u procesu obrade spektara, kao i u slučaju mjerenja radijuma.



Slika 4.2.5. Sumarni spektri izvora ^{232}Th u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV.

Kao što se može vidjeti na slikama 4.2.4 i 4.2.5, petostruke i šestostruke koincidencije sa gama zrakom energije 583 keV nijesu registrovane (za dato vrijeme mjerenja). S druge strane, u nekoincidentnom režimu ovaj fotopik manje je izražen od fotopika na energiji 911 keV, ali je zato najizraženiji u integralnom i u režimima koincidencija – dvostrukih, višestrukosti od 2 do 6 i trostrukih, a uočava se i u režimu [4-4]. Međutim, precizno i sigurno mjerenje torijuma preko ovog fotopika u režimu četvorostrukih koincidencija zahtijeva duže vrijeme mjerenja (što je kasnije testirano, a o čemu će biti riječi u poglavlju 6).

U oblasti fotopika na energiji 583 keV, brzine brojanja u spektru izvora ^{232}Th , u režimima [1-6], [1-1], [2-6], [2-2] i [3-3], u energetsom opsegu (200-2000) keV, bile su: 182.36 imp/s, 94.77 imp/s, 84.16 imp/s, 74.98 imp/s i 11.28 imp/s, respektivno; a u energetsom opsegu (300-

3000) keV: 186.94 imp/s, 97.48 imp/s, 90.39 imp/s, 75.45 imp/s i 10.65 imp/s, respektivno [53]. Fonske brzine brojanja, za oba opsega, navedene su u tabeli 4.1.1.²¹

U oblasti fotopika na energiji 911 keV, u spektru izvora ^{232}Th , u režimima [1-6] i [1-1], u energetsom opsegu (200-2000) keV, brzine brojanja bile su 139.84 imp/s i 117.44 imp/s, respektivno, a u energetsom opsegu (300-3000) keV: 139.69 imp/s i 115.95 imp/s, respektivno [53].

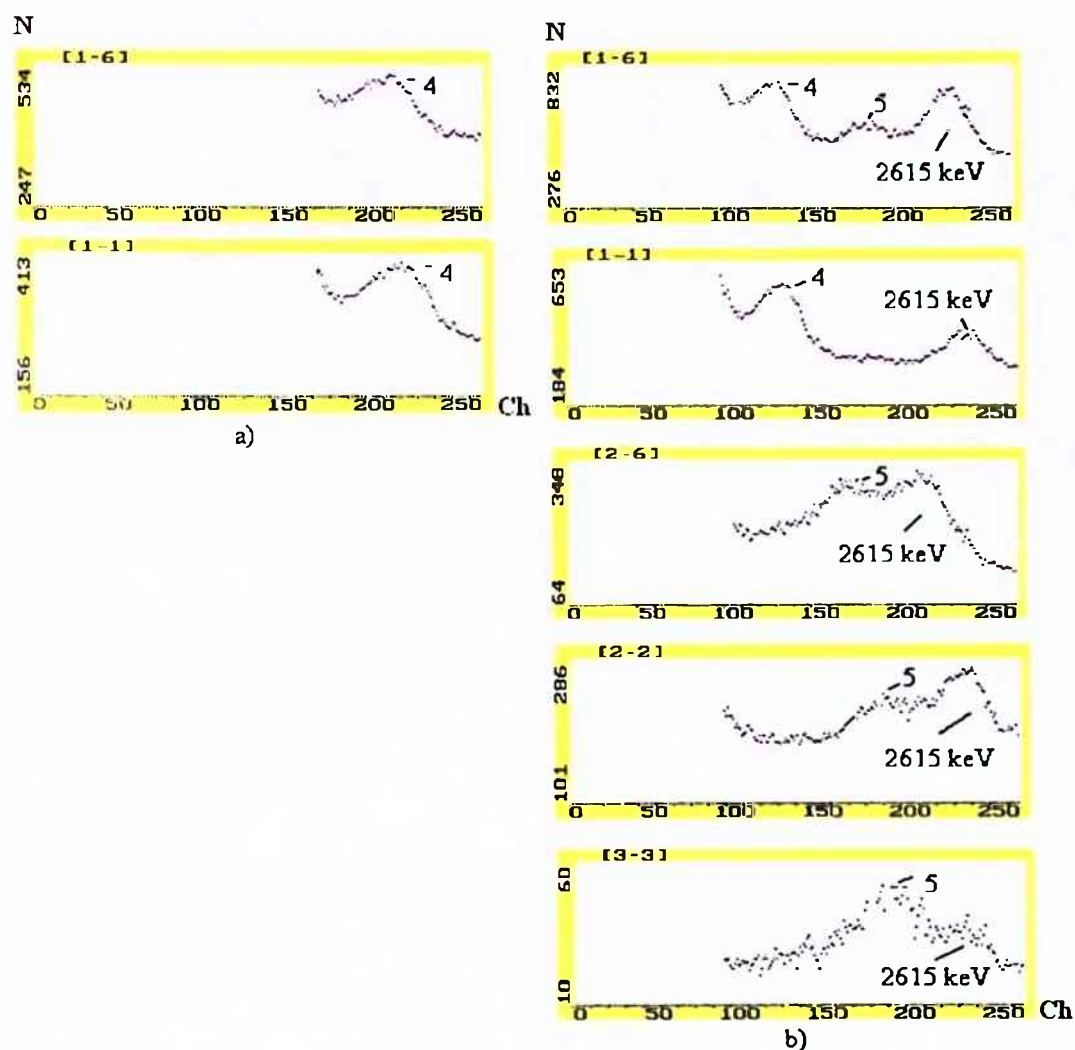
Fotopik na energiji 2615 keV (u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV) u režimu trostrukih koincidencija uočava se slabo, dok u režimu četverostrukih koincidencija fotoni date energije nijesu ni registrovani (za navedeno vrijeme mjerenja). Brzine brojanja pod ovim fotopikom, u režimima [1-6], [1-1], [2-6] i [2-2], iznosile su: 34.09 imp/s, 17.07 imp/s, 16.98 imp/s i 14.38 imp/s, respektivno [53].

Pik 4 (u poglavlju 6 će biti detaljnije komentarisani) izražen je u integralnom i nekoincidentnom spektru, i njegova centroida se nalazi na energiji oko 1600 keV. Odnosi brzina brojanja pod ovim pikom u spektru izvora torijuma i u istoj oblasti fona, u energetsom opsegu (200-2000) keV, su 15.14 (u integralnom režimu rada) i 15.19 (u nekoincidentnom režimu rada), a u energetsom opsegu (300-3000) keV ove vrijednosti su bile: 15.54 (integralni režim) i 14.97 (nekoincidentni režim).

Oblast označena brojem 5 (u poglavlju 6 će biti detaljnije komentarisana, ali treba istaći da se centroida nalazi na energiji oko 2200 keV) javlja se u spektrima u integralnom režimu, režimu [2-6], kao i u režimima dvostrukih i trostrukih koincidencija (gdje je izraženija od fotopika na energiji 2615 keV). Odnosi brzina brojanja u ovoj oblasti (izvor ^{232}Th /fon) su 21.67 (u integralnom režimu), 51.82 (u režimu dvostrukih koincidencija) i 41.38 (u režimu trostrukih koincidencija) [53].

Radi poredenja, zumirani spektar izvora ^{232}Th (nakon oduzimanja fona) prikazan je na slici 4.2.6, i to: od 162. do 255. kanala – u opsegu (200-2000) keV (a), i od 95. to 255. kanala – u opsegu (300-3000) keV (b).

²¹ Prethodno (u 4.1), navedene su i fonske brzine brojanja u oblastima ostalih fotopikova.



Slika 4.2.6. Poređenje zumiranih spektara izvora ^{232}Th : od 162. do 255. kanala, u opsegu (200-2000) keV (a); od 95. do 255. kanala, u opsegu (300-3000) keV (b).

Konačno, izvršeni su proračuni efikasnosti detekcije zraka u fotopikovima radijuma i torijuma na prethodno navedenim energijama (tj. procijenjene su fotoefikasnosti²²), u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M.

²²Računate na osnovu eksperimentalnih podataka „ručno“, tj. bez *fitovanja* pikova i uz slobodnu procjenu gdje „počinje“ i gdje se „završava“ dati fotopik (a time i odgovarajuća oblast fona); kao i bez procjena/korekcija Kompton rasijanja i gubitaka usljed *suming* efekta.

Ove efikasnosti detekcije, kao i minimalne detektibilne aktivnosti (za dato vrijeme mjerenja) procijenjene pomoću formule koja je već korišćena u slučaju mjerenja spektrometrom tipa PRIPJAT [54]:

$$A_{\min} = \frac{m\sqrt{N_f}}{\varepsilon\sqrt{t}}, \quad (4.1)$$

gdje su: ε – fotoefikasnost, N_f – brzina brojanja fona u oblasti fotopika (prethodno navedena), t – živo vrijeme mjerenja, a $m = 2$ – broj *rms* devijacija zbog statističkih fluktuacija fona, date su u tabeli 4.2.1

Tabela 4.2.1. Procijenjene fotoefikasnosti i minimalne detektibilne aktivnosti.

Fotopik [keV]	Energetski opseg [keV]	Režim rada	ε	A_{\min} [Bq]
583	200-2000	[1-6]	0.216	0.89
		[1-1]	0.112	1.40
		[2-6]	0.099	0.91
		[2-2]	0.088	0.84
		[3-3]	0.013	3.78
	300-3000	[1-6]	0.221	0.89
		[1-1]	0.115	1.40
		[2-6]	0.107	0.87
		[2-2]	0.089	0.83
		[3-3]	0.012	3.96
609	200-2000	[1-6]	0.335	0.59
		[1-1]	0.210	0.84
		[2-6]	0.128	0.71
		[2-2]	0.120	0.58
		[3-3]	0.008	4.84
	300-3000	[1-6]	0.335	0.59
		[1-1]	0.204	0.85
		[2-6]	0.092	1.06
		[2-2]	0.122	0.58
		[3-3]	0.009	5.16
911	200-2000	[1-6]	0.542	0.25
		[1-1]	0.455	0.27
	300-3000	[1-6]	0.541	0.25
		[1-1]	0.449	0.27
2615	300-3000	[1-6]	0.034	2.01
		[1-1]	0.017	2.92
		[2-6]	0.017	2.23
		[2-2]	0.014	1.96

Razmatranje *odnosa* među pojedinim režimima rada spektrometra pri registraciji ^{226}Ra i ^{232}Th , pokazalo je sljedeće.

U opsegu od 200 keV do 2000 keV, ^{226}Ra je detektibilan preko fotopika na energiji od 609 keV u nekoliko režima rada spektrometra, ali je najpovoljniji režim – režim dvostrukih koincidencija ([2-2]). U poređenju sa integralnim režimom rada, u ovom režimu efikasnost detekcije je manja 2.7 puta, ali je to kompenzovano smanjenjem brzine brojanja fona (oko 7.7 puta). Isti faktori dobijeni upoređivanjem sa nekoincidentnim režimom su: 1.7 i 6.2, respektivno. Dodatno, iako je brzina brojanja fona u režimu dvostrukih koincidencija 3.3 puta veća nego u režimu trostrukih koincidencija, efikasnost detekcije fotopika je veća 15 puta. U režimu [2-6] brzina brojanja fona je oko 1.6 puta veća nego u režimu čistih/izdvojenih dvostrukih koincidencija, dok se (ovako procijenjena i) eksperimentalno dobijena efikasnost detekcije fotopika na energiji od 609 keV u ovim režimima razlikuje neznatno. Isti zaključak se može izvesti i iz analize spektara u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV [53]. Naime, efikasnost detekcije fotopika na energiji 609 keV u režimu dvostrukih koincidencija smanjuje se 2.7 i 1.7 (a fon 7.5 i 5.8) puta, u poređenju sa integralnim i nekoincidentnim režimom, respektivno. Ona je 1.3 puta veća od efikasnosti detekcije u režimu [2-6] (fon je manji 1.8 puta) i 13 puta veća od efikasnosti detekcije u režimu trostrukih koincidencija (brzina brojanja fona veća je 2.4 puta).

U vezi sa mjerenjem ^{232}Th :

– u energetsom opsegu od 200 keV do 2000 keV, detekcija torijuma preko fotopika na energiji 583 keV je optimalna u režimu dvostrukih koincidencija gdje je, u poređenju sa integralnim režimom, efikasnost detekcije manja oko 2.5 puta, dok je brzina brojanja fona manja 6.8 puta. U odnosu na efikasnost detekcije fotopika 583 keV u nekoincidentnom i režimu [2-6], efikasnost u režimu dvostrukih koincidencija manja je 1.2 puta, tj. 1.1 put (dok je brzina brojanja fona manja 4.5 puta i 1.5 puta), respektivno. Povećanje brzine brojanja fona u režimu dvostrukih koincidencija u poređenju sa režimom trostrukih koincidencija (za 2.2 puta) kompenzovano je većom efikasnošću detekcije fotopika (oko 6.7 puta).

U opsegu od 300 keV do 3000 keV, detekcija fotopika na energiji 583 keV najpovoljnija je, opet, u režimu dvostrukih koincidencija. Efikasnost detekcije fotopika, u poređenju sa integralnim, nekoincidentnim i režimom [2-6], manja je 2.5 puta, 1.3 puta, odnosno 1.2 puta (u

isto vrijeme, odgovarajuće brzine brojanja fona manje su 7 puta, 4.7 puta, odnosno 1.6 puta), respektivno. Posebno, u poređenju sa režimom trostrukih koincidencija, efikasnost detekcije fotopika je 7.4 (a brzina brojanja fona 2.4) puta veća, što dovodi do toga da se minimalna detektibilna aktivnost u režimu trostrukih koincidencija povećava, s obzirom na izraz (4.1);

- torijum-232 može biti detektovan preko fotopika na energiji 911 keV u integralnom i nekoincidentnom režimu rada, u oba energetska opsega. Nesumnjiva prednost određivanja aktivnosti torijuma korišćenjem ovog fotopika je u slabijoj zavisnosti rezultata od emanacije torona iz uzorka;

- u energetskom opsegu od 300 keV do 3000 keV, detekcija torijuma moguća je i preko fotopika na energiji 2615 keV. Optimalni režim rada je režim dvostrukih koincidencija. U poređenju sa integralnim, nekoincidentnim i režimom [2-6], efikasnost detekcije fotopika u režimu dvostrukih koincidencija manja je oko 2.4 puta, 1.2 puta i 1.2 puta, respektivno; dok je odgovarajuća brzina brojanja fona manja oko 7.1 put, 3.8 puta i 2 puta, respektivno.

Prednost određivanja aktivnosti torijuma preko ovog fotopika (2615 keV), iako je efikasnost detekcije relativno niska, proističe iz činjenice da se u energetskoj oblasti ovog fotopika ne mogu naći intenzivne γ -linije koje potiču od zraka emitovanih usljed raspada drugih prirodnih radionuklida. Posebno, kada se u uzorku nalaze radijum i torijum, a pikovi na energijama 583 keV i 609 keV ne mogu biti razdvojeni (zbog energetske rezolucije spektrometra), za određivanje aktivnosti torijuma neophodno je koristiti upravo fotopik na energiji 2615 keV (pored fotopika na energiji 911 keV).

Konačno, na osnovu sprovedenih analiza brzina brojanja fona i početnih procjena efikasnosti detekcije fotona iz raspada radionuklida koje prate kaskade fotona (nizovi ^{226}Ra i ^{232}Th), zaključuje se da je optimalni režim mjerenja – režim izdvojenih dvostrukih koincidencija (bez obzira na izabrani energetski opseg). Odnosno, početne analize pokazale su da je osjetljivost spektrometra najveća u tom režimu, a rješavanje problema istovremene detekcije radijuma i torijuma nametnulo je potrebu da metodi budu konačno razvijeni koristeći energetski opseg od 300 keV do 3000 keV (bez obzira na neke prednosti i neke nešto bolje *odnose* u energetskom opsegu od 200 keV do 2000 keV). Takođe, zaključak je i da je integralni režim mjerenja nekada neophodno razmatrati, za razliku od režima [2-6], koji je u datim slučajevima nepotreban.

4.2.2. Nekoliko poređenja sa rezultatima softverskih analiza – kao ilustracija

Zbog koincidentne registracije (te promjene energetskeg opsega) i slično, neophodno je bilo ponavljati mjerenja ^{226}Ra i ^{232}Th , utvrđivati zakonitosti i izabrati „stanje“ sistema koje će obezbijediti najbolje njegove karakteristike za mjerenje više radioizotopa istovremeno (tj. u istom uzorku), uzimajući u obzir i međusobne odnose njihovih aktivnosti i činjenicu da se određene oblasti njihovih spektara preklapaju.

Na primjer, prilikom mjerenja ^{226}Ra , tj. detekcije fotopika na energiji 609 keV, prije konačnog razvoja metoda²³, efikasnosti određene „ručno“ kako je to prethodno objašnjeno, u opsegu (300-3000) keV, u režimima [1-6], [1-1], [2-2] i [3-3], bile su 0.335, 0.204, 0.122 i 0.009, respektivno (dok su brzine brojanja fona u oblasti fotopika određene kao: 6.49 imp/s, 5.01 imp/s, 0.86 imp/s i 0.36 imp/s, respektivno) – iz spektara snimljenih tokom 1000 s realnog vremena. Konačne analize (ilustracija *fitovanja* – na slici 4.2.7), tj. analize nakon kompletnog razvoja metoda, dale su eksperimentalne vrijednosti za efikasnosti registracije – one koje će biti navedene u sljedećem poglavlju (5.2). I serija ponovljenih analiza dala je iste rezultate.²⁴

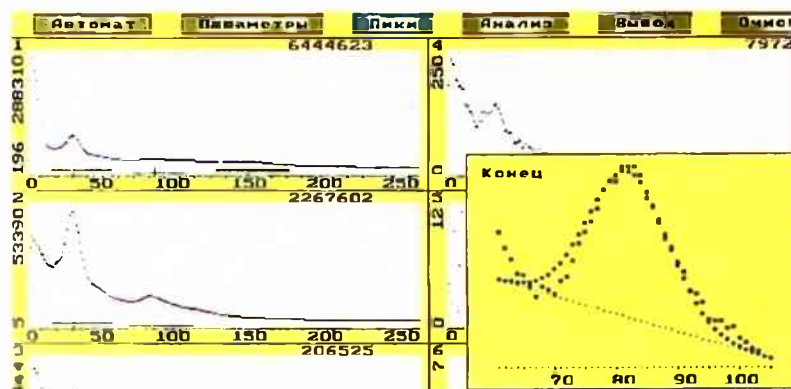
Nadalje, za isti opseg (od 300 keV do 3000 keV), odnos brzina brojanja u cijelom spektru izvora ^{226}Ra i u odgovarajućem (cijelom) spektru fona, u režimima [1-6], [1-1], [2-2], [3-3], [4-4], [5-5] i [6-6], za realno vrijeme mjerenja 1000 s, u toku razvoja metoda, određen je kao: 51.16, 48.89, 98.56, 22.2, 2.12, 0.54 i 1.19, respektivno; a nakon toga (na primjer, mjerenje tokom 500 s realnog vremena), 35.49, 30.23, 103.59, 23.03, 1.92, 0.48, 0.56, respektivno. Navedeno ukazuje da je (u krajnjem) dati odnos poboljšan u koincidentnim režimima rada od značaja (u prvom redu – u režimu dvostrukih koincidencija).

U prilog tome, početno razmatranje odnosa brzina brojanja u oblasti fotopika 609 keV u spektru izvora i u spektru fona, u režimima [1-6], [1-1], [2-2] i [3-3], za 1000 s realnog vremena mjerenja (a u energetskeg opsegu od 300 keV do 3000 keV), pokazalo je vrijednosti: 53.6, 42.2,

²³ u toku modifikacije

²⁴ Na primjer, za realno vrijeme mjerenja 2000 s (i druga realna vremena mjerenja), potvrđena je efikasnost registracije pika na energiji 609 keV u režimu dvostrukih koincidencija u iznosu 0.1031, tj. 0.103, a serijom mjerenja potvrđene su i zakonitosti u promjeni *odnosa* odbroja u pojedinim oblastima spektara izvora i spektara fona (u dostupnim režimima rada).

147.8 i 25.4, respektivno; a konačno (softverskom analizom), dobijeno je (za 500 s realnog vremena mjerenja): 38.26, 29.08, 174.9 i 37.95, respektivno²⁵.



Slika 4.2.7. Primjer *fitovanja* pika na energiji 609 keV (izvor ²²⁶Ra).

Takođe, „pik“ sa centroidom na oko 1200 keV, u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, prije konačnog razvoja metoda, u režimima [1-6], [1-1] i [2-2], za 1000 s realnog vremena mjerenja istog izvora ²²⁶Ra, pokazivao je odnose (pik/fon): 49.7, 44.5 i 114.7, respektivno; a konačno je (nakon razvoja metoda i za 500 s realnog vremena mjerenja) dobijeno: 33.91, 24.09 i 70.72, respektivno; te – 35.9, 25.7 i 119.7, respektivno (za 1000 s).

Jednako, „pik“ sa centroidom na oko 1800 keV, u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, u režimima [1-6] i [1-1], za 1000 s realnog vremena mjerenja, pokazivao je odnose (pik/fon): 54.9 i 67.8, respektivno; a konačno (softverskom analizom), dobijeno je (za 500 s realnog vremena mjerenja): 34.25 i 33.52, respektivno; dok su za 1000 s realnog vremena, za istu oblast, dobijeni odnosi: 36.2 i 36.4, respektivno (nevelike razlike uslovljene varijacijama u brzini brojanja fona).

Ipak, razmatranje odnosa efikasnosti detekcije gama zraka energije 609 keV u različitim režimima rada, u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, pokazalo je (i u pojedinim fazama razvoja metoda, kada su iste određivane „ručno“²⁶, i nakon toga, kada su vrijednosti dobijene uz pomoć softvera PRIP) približno iste (ili identične) vrijednosti. Naime, efikasnost detekcije fotopika na energiji 609 keV u integralnom režimu veća je od one u režimu dvostrukih

²⁵ *fitovanjem* pika i pravilnijim izborom njegove oblasti – kao i u slučaju ostalih pikova od interesa...

²⁶ Ali jednako iz spektara izvora od kojih je oduzet fon.

koincidencija 2.7 puta (dobijeno i „ručno“ – za 1000 s realnog vremena, i uz pomoć softvera – za 500 s realnog vremena mjerenja; samo što se u prvom slučaju fon u oblasti fotopika smanjuje 7.5 puta, a u drugom slučaju 12 puta – uslovljeno selekcijom oblasti fotopika). U nekoincidentnom režimu, efikasnost detekcije fotopika na energiji 609 keV veća je od one u režimu dvostrukih koincidencija 1.7 puta (dobijeno i „ručnom“ analizom – za 1000 s realnog vremena, i uz pomoć softvera – za 500 s realnog vremena mjerenja; samo što je u prvom slučaju dobijeno da se fon u oblasti fotopika smanjuje 5.8 puta, a u drugom slučaju – 9.7 puta). Zatim, u režimu dvostrukih koincidencija, u odnosu na režim trostrukih koincidencija, efikasnost detekcije gama zraka energije 609 keV u fotopiku veća je 13 puta (dobijeno iz spektra 1000 s realnog vremena snimanja, „ručnim“ analizama), odnosno 12 puta (dobijeno uz pomoć softvera, za spektar sniman 500 s realnog vremena), dok je fon u oblasti fotopika u režimu trostrukih koincidencija manji 2.4 puta, tj. 2 puta, respektivno.

S druge strane, prilikom mjerenja ^{232}Th i detekcije fotopika na energiji 583 keV, tokom razvoja metoda, najviše varijacija (u karakteristikama sumarnog spektra) pokazivao je nekoincidentni režim. Prvobitno su, za realno vrijeme mjerenja 1000 s, u opsegu (300-3000) keV, u režimima [1-6], [1-1], [2-2] i [3-3], efikasnosti određene „ručno“, i to: 0.221, 0.115, 0.089 i 0.012, respektivno (dok su brzine brojanja fona u oblasti fotopika bile: 7.77 imp/s, 5.19 imp/s, 1.1 imp/s i 0.45 imp/s, respektivno); nešto kasnije, iz spektara snimanih 500 s: 0.224, 0.084, 0.085 i 0.013, respektivno (dok su brzine brojanja fona u oblasti fotopika određene kao 8.86 imp/s, 5.19 imp/s, 1.12 imp/s i 0.43 imp/s, respektivno). Konačno, efikasnosti registracije su: 0.226, 0.081, 0.082, 0.013, respektivno (brzine brojanja fona u oblasti fotopika: 10.08 imp/s, 5.08 imp/s, 0.91 imp/s, 0.44 imp/s, respektivno).²⁷

Jednako, za fotopik na energiji 911 keV, u režimima [1-6] i [1-1], u opsegu (300-3000) keV, za realno vrijeme mjerenja 1000 s, efikasnosti određene „ručno“ bile su 0.541 i 0.449, respektivno (brzine brojanja fona u oblasti fotopika: 3.75 imp/s i 2.97 imp/s, respektivno), a za realno vrijeme mjerenja 500 s – 0.49 i 0.416 (brzine brojanja fona: 4.32 imp/s i 3.67 imp/s, respektivno). Konačno, dobijene su sljedeće vrijednosti za efikasnosti registracije: 0.592 i 0.415, respektivno (brzine brojanja fona u oblasti fotopika: 4.44 imp/s i 4.05 imp/s, respektivno). Kao i u slučaju svih ostalih fotopikova – riječ je o eksperimentalno dobijenim vrijednostima za efikasnosti

²⁷ Navedeno radi poređenja, iako će o tome biti riječi u poglavlju 6.

registracije, nakon svih potrebnih korekcija. Iz navedenih podataka slijedi da, za razliku od slučaja fotopika na energiji 583 keV, u slučaju ovog fotopika, nekoincidentni režim pokazao je (u izvjesnom smislu) veću *stabilnost*.

Takode, prilikom mjerenja izvora ^{232}Th i detekcije fotopika na energiji 2615 keV, prije konačnog razvoja metoda, za realno vrijeme mjerenja 1000 s, u režimima [1-6], [1-1] i [2-2], efikasnosti su bile 0.034, 0.017 i 0.014, respektivno (dok su brzine brojanja fona u oblasti fotopika određene kao 0.92 imp/s, 0.49 imp/s i 0.13 imp/s respektivno), a za 500 s: 0.034, 0.016 i 0.014 (brzine brojanja fona u oblasti fotopika: 0.98 imp/s, 0.55 imp/s i 0.16 imp/s, respektivno). Konačno su utvrđene efikasnosti registracije u iznosu: 0.034, 0.016 i 0.013, respektivno, tj. gotovo identične kao prethodno (brzine brojanja fona u oblasti fotopika bile su 1.24 imp/s, 0.94 imp/s i 0.16 imp/s, respektivno)²⁸. Ovo stoga što razvoj metoda nije podrazumijevao modifikacije/korekcije vezano za oblast ovog fotopika (osim što je bilo neophodno omogućiti opseg od 300 keV do 3000 keV), s obzirom da se u datoj oblasti (kako je prethodno rečeno) uobičajeno ne mogu naći druge intenzivne γ -linije (a što bi moglo uticati na tačnost mjerenja), a i ne „pune“ je (makar ne sa značajnom vjerovatnoćom) impulsi koji su posljedica *suming* efekta dva fotona u kaskadi (o čemu će još biti riječi).

U istom energetsom opsegu (od 300 keV do 3000 keV), odnos brzina brojanja u spektru izvora ^{232}Th i u odgovarajućem spektru fona, u režimima [1-6], [1-1], [2-2], [3-3], [4-4], [5-5] i [6-6], za realno vrijeme mjerenja 1000 s, u toku i nakon razvoja metoda, varirao je: 24.66, 21.21, 56.45, 18.86, 2.26, 0.73 i 1.26 respektivno; te: 18.89, 13.67, 59.28, 19.54, 2.46, 0.71 i 0.73, respektivno (uz najveću *stabilnost* režima dvostrukih i trostrukih koincidencija).

Razmatranje odnosa brzina brojanja u oblasti fotopika 583 keV u spektru izvora i odgovarajućem spektru fona, u režimima [1-6], [1-1], [2-2] i [3-3], za 1000 s realnog vremena mjerenja (u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV), pokazivalo je vrijednosti: 24.06, 18.78, 68.59 i 23.67, respektivno; ali i 18.99, 13.58, 77.22 i 26.2, respektivno.

Za fotopik na energiji 911 keV, u režimima [1-6] i [1-1], za 1000 s realnog vremena mjerenja, bez softverske analize, u opsegu (300-3000) keV, odnos brzina brojanja pik/fon,

²⁸ I u početnim istraživanjima, na primjer, tokom 2000 s realnog mjerenja, u režimu dvostrukih koincidencija, u opsegu (300-3000) keV, efikasnosti detekcije fotopikova na energijama 583 keV i 2615 keV (određene „ručno“) bile su 0.097 i 0.014, respektivno.

određen je kao: 37.25 i 39.04, respektivno; a konačno je dobijeno (za isto realno vrijeme mjerenja): 34.4 i 26.49, respektivno.

Odnosi brzina brojanja u oblasti fotopika 2615 keV u spektru izvora i odgovarajućem spektru fona, u režimima [1-6], [1-1] i [2-2], za 1000 s realnog vremena mjerenja, bez softverske analize (u istom energetsom opsegu – od 300 keV do 3000 keV), bili su: 37.05, 34.84 i 110.61, respektivno; ali i: 27.64, 17.06 i 86.6, respektivno.

Takode, „pik“ sa centroidom na oko 1600 keV, u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, u režimima [1-6] i [1-1], za 1000 s realnog vremena mjerenja istog izvora ^{232}Th , pokazivao je date odnose (pik/fon): 15.54, 14.97, respektivno; a zatim i: 11.69 i 9.84, respektivno.

Što se tiče „pika“ sa centroidom na oko 2200 keV, u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, u režimima [1-6], [2-2] i [3-3], za 1000 s realnog vremena mjerenja izvora ^{232}Th , pokazivao je odnose (pik/fon): 21.67, 51.82 i 41.38, respektivno; a konačno je (za 1000 s realnog vremena mjerenja) dobijeno: 16.38, 61.76 i 30.66, respektivno; pri čemu je odnos za režim trostrukih koincidencija dobijen iz spektra snimanog 7200 s realnog vremena. U spektru četvorostrukih koincidencija ovaj odnos bio je 4.2 (realno vrijeme mjerenja: 14 400 s).

Razmatranje odnosa efikasnosti detekcije gama zraka energija 583 keV i 2615 keV u različitim režimima rada, u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, pokazalo je (u toku razvoja metoda i nakon toga):

– efikasnost detekcije fotopika na energiji 583 keV u integralnom režimu veća je od one u režimu dvostrukih koincidencija 2.5 puta (dobijeno „ručno“ – za 1000 s realnog vremena), odnosno 2.7 puta (dobijeno uz pomoć softvera, za 1000 s realnog vremena mjerenja). Smanjenje fona u oblasti fotopika, u režimu dvostrukih koincidencija, u prvom slučaju bilo je 7 puta, a u drugom slučaju 11 puta (zbog pravilnije selekcije oblasti fotopika). U nekoincidentnom režimu, efikasnost detekcije fotopika na energiji 583 keV dobijena „ručno“ činila se većom od one u režimu dvostrukih koincidencija (oko 1.3 puta), ali je konačna analiza (*fitovanje* pika i selektovanje njegove oblasti, uz neophodne korekcije) pokazala da je neznatno manja (faktor: 1.01). Odgovarajuće smanjenje brzine brojanja fona u oblasti fotopika u režimu dvostrukih koincidencija bilo je 4.7 puta, tj. 5.6 puta, respektivno. U režimu dvostrukih koincidencija, u odnosu na režim trostrukih koincidencija, efikasnost detekcije gama zraka energije 583 keV u fotopiku veća je 7.4 puta (dobijeno iz spektra 1000 s realnog vremena snimanja), odnosno 6.3 puta (dobijeno uz pomoć softvera, za spektar

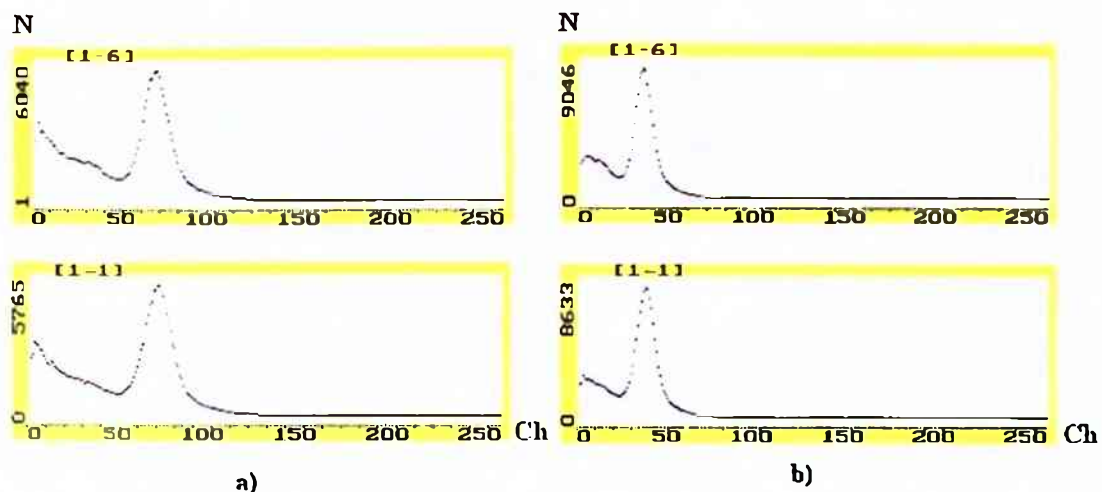
sniman 1000 s realnog vremena); dok je fon u oblasti fotopika manji u režimu trostrukih koincidencija 2.4 puta, tj. 2.07 puta, respektivno;

– efikasnost detekcije fotopika na energiji 2615 keV u integralnom režimu veća je od one u režimu dvostrukih koincidencija 2.4 puta (dobijeno „ručno“ – za 1000 s realnog vremena), odnosno 2.6 puta (dobijeno uz pomoć softvera, za 1000 s realnog vremena mjerenja). Smanjenje fona u oblasti fotopika, u režimu dvostrukih koincidencija, u prvom slučaju bilo je 7.1 put, a u drugom slučaju 7.7 puta. U nekoincidentnom režimu, efikasnost detekcije fotopika na energiji 2615 keV veća je od one u režimu dvostrukih koincidencija 1.2 puta (dobijeno „ručnom“ analizom i uz pomoć softvera – za 1000 s realnog vremena). Odgovarajuće smanjenje brzine brojanja fona u oblasti fotopika u režimu dvostrukih koincidencija bilo je 3.8 puta, tj. 5.8 puta, respektivno.

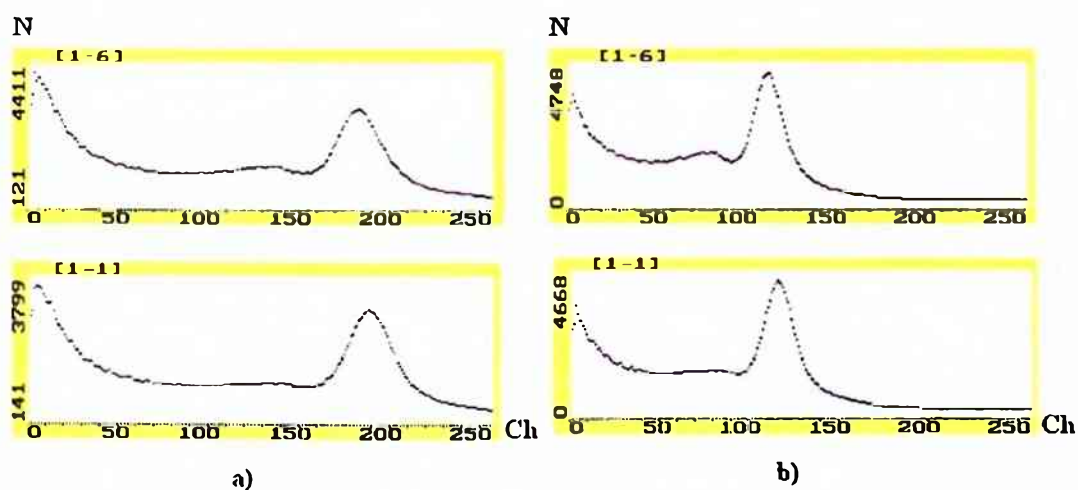
4.3. Detekcija ^{137}Cs i ^{40}K

Iako je već nakon prve modifikacije spektrometra, i omogućavanja (uz integralni režim) i režima rada [1-1]-[2-6], bila omogućena detekcija ^{137}Cs i ^{40}K u nekoincidentnom spektru, u okviru ove doktorske disertacije urađeno je detaljnije poređenje karakteristika režima u kojima se ova dva izotopa mogu detektovati (integralnog i nekoincidentnog). Urađeno je i poređenje karakteristika s obzirom na izabrani energetski opseg (od 200 keV do 2000 keV, ili od 300 keV do 3000 keV) – sa ciljem da se u potpunosti razvije metod za istovremenu detekciju, ne samo ^{137}Cs i ^{40}K , nego i produkata raspada ^{226}Ra i ^{232}Th .

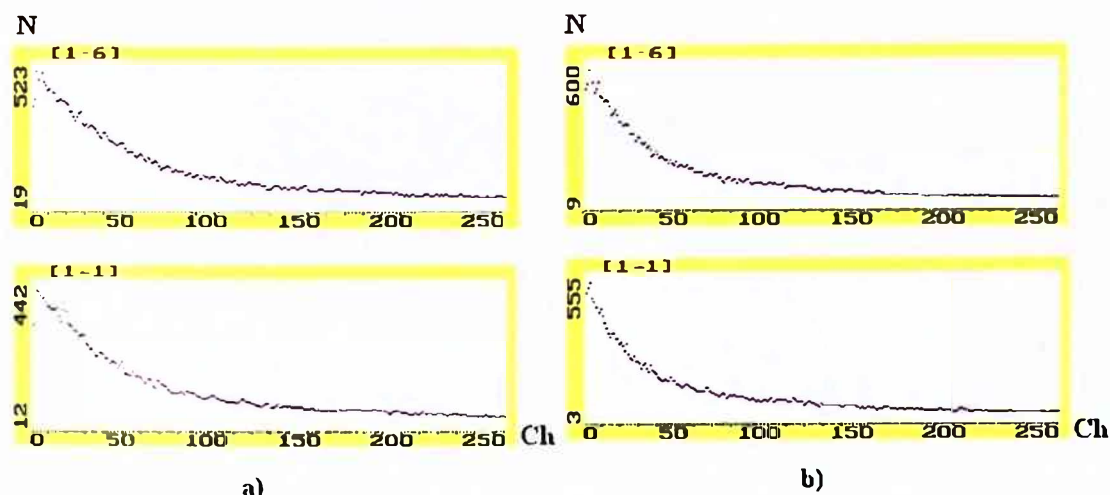
Izvori ^{137}Cs i ^{40}K (prethodno navedeni kalibracioni izvori) mjereni su u integralnom i nekoincidentnom režimu rada spektrometra PRIPJAT-2M po 1000 s realnog vremena (živo vrijeme: izvor ^{137}Cs – 961.5 s u integralnom, i 961.8 s u nekoincidentnom režimu rada; izvor ^{40}K – 878.8 s u integralnom, i 878.6 s u nekoincidentnom režimu rada), u energetskim opsezima (200-2000) keV i (300-3000) keV (od 2. do 255. kanala). Sumarni spektri ^{137}Cs predstavljeni su na slici 4.3.1, a ^{40}K – na slici 4.3.2 [55]. Prije sumiranja, od spektara izvora cezijuma i kalijuma oduzet je odgovarajući fon (sumarni spektri na slici 4.3.3, snimani takođe po 1000 s realnog vremena).



Slika 4.3.1. Sumarni spektri izvora ^{137}Cs u integralnom ([1-6]) i nekoincidentnom ([1-1]) režimu rada, u energetskeim opsezima (200-2000) keV (a) i (300-3000) keV (b).



Slika 4.3.2. Sumarni spektri izvora ^{40}K u integralnom ([1-6]) i nekoincidentnom ([1-1]) režimu rada, u energetskeim opsezima (200-2000) keV (a) i (300-3000) keV (b).



Slika 4.3.3. Sumarni spektri fona u integralnom ([1-6]) i nekoincidentnom ([1-1]) režimu rada, u energetskim opsezima (200-2000) keV (a) i (300-3000) keV (b).

Odnosi brzina brojanja pod fotopikovima u spektrima izvora cezijuma i kalijuma i u istim oblastima u odgovarajućim spektrima fona, dati su u tabeli 4.3.1 [55].

Tabela 4.3.1. Odnosi brzina brojanja u spektrima izvora ^{137}Cs i ^{40}K i u odgovarajućim spektrima fona.

Energetski opseg [keV]	Režim rada	Ukupno: izvor ^{137}Cs / fon	Ukupno: izvor ^{40}K / fon	Oblast fotopika 662 keV: izvor/fon	Oblast fotopika 1460 keV: izvor/fon
200-2000	[1-6]	7.05	12.43	19.31	48.58
	[1-1]	8.37	14.31	22.86	58.15
300-3000	[1-6]	6.72	12.43	17.69	44.18
	[1-1]	8.22	14.79	22.22	55.97

Efikasnosti detekcije fotopikova²⁹, kao i minimalne detektibilne aktivnosti (za dato vrijeme mjerenja) procijenjene pomoću izraza (4.1), date su u tabeli 4.3.2.

²⁹ U početnim analizama, fotoefikasnost (određena „ručno“, iz spektara kalibracionih izvora snimanih po 500 s realnog vremena, tj. ne koristeći mogućnosti softvera – *fitovanje* i određivanje oblasti pika, itd.) za γ -zrak energije 662 keV, u opsegu od 300 keV do 3000 keV, bila je 0.235 – u integralnom, i 0.246 – u nekoincidentnom režimu; a za γ -zrak energije 1460 keV: 0.132 – u integralnom, i 0.137 – u nekoincidentnom režimu. Za dato vrijeme mjerenja, minimalne detektibilne aktivnosti u integralnom i nekoincidentnom režimu mjerenja, procijenjene su na 0.95 Bq i 0.87 Bq, respektivno (^{137}Cs), i 1.11 Bq i 0.97 Bq, respektivno (^{40}K); a za 1000 s: 0.73 Bq i 0.64 Bq, respektivno (^{137}Cs), i 0.85 Bq i 0.76 Bq, respektivno (^{40}K).

Tabela 4.3.2. Efikasnosti detekcije i minimalne detektibilne aktivnosti ^{137}Cs i ^{40}K (realno vrijeme mjerenja: 1000 s).

E_γ	Energetski opseg [keV]	Režim rada	N_r [s^{-1}]	ϵ	A_{min} [Bq]
662 keV	200-2000	[1-6]	6.13	0.226	0.71
		[1-1]	5.66	0.233	0.66
	300-3000	[1-6]	6.91	0.233	0.73
		[1-1]	5.57	0.236	0.64
1460 keV	200-2000	[1-6]	2.55	0.128	0.84
		[1-1]	2.06	0.124	0.78
	300-3000	[1-6]	3.01	0.138	0.85
		[1-1]	2.36	0.137	0.76

Dakle, za realno vrijeme mjerenja 1000 s, u nekoincidentnom režimu i energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, minimalna detektibilna aktivnost ^{137}Cs je 0.64 Bq, dok je, na primjer, za realno vrijeme od 2600 s ona 0.42 Bq. Isto tako, za realno vrijeme mjerenja 1000 s, u nekoincidentnom režimu i energetsom opsegu (300-3000) keV, minimalna detektibilna aktivnost ^{40}K je 0.76 Bq, dok je za realno vrijeme mjerenja 2600 s ona 0.46 Bq.

Promjena eneretskog opsega, tj. korišćenje opsega (300-3000) keV umjesto opsega (200-2000) keV, uslovlja je neznatno povećanje efikasnosti registracije zraka energije 662 keV – 1.03 puta u integralnom i 1.01 put u nekoincidentnom režimu rada (u isto vrijeme, fon u oblasti fotopika povećan je oko 1.13 puta u integralnom, a smanjen 1.02 puta u nekoincidentnom režimu rada). Odnos ukupnih brzina brojanja u spektru izvora cezijuma i u odgovarajućem spektru fona, u oba režima, nešto je veći u opsegu (200-2000) keV (oko 1.05 puta – u integralnom, i 1.02 puta – u nekoincidentnom režimu), kao i odnos brzina brojanja u oblasti fotopika 662 keV (1.09 puta – u integralnom, i 1.03 puta – u nekoincidentnom režimu).

Iz podataka datih u tabeli 4.3.1 i tabeli 4.3.2 slijedi da su, u oba energetska opsega, u nekoincidentnom režimu rada spektrometra PRIPJAT-2M (u odnosu na njegov integralni režim) veće efikasnosti detekcije γ -zraka energije 662 keV, a manje brzine brojanja fona u oblasti tog fotopika, kao i minimalne detektibilne aktivnosti ^{137}Cs .

Poređenje podataka za dva energetska opsega pokazuje da su efikasnosti registracije kalijuma u opsegu (300-3000) keV veće (1.08 puta – u integralnom, i 1.1 put – u

U ovom poglavlju – navedene su konačne efikasnosti detekcije cezijuma i kalijuma cijelim spektrometrom. Takođe, modifikacija (konačan razvoj metoda) nije bitno uticala na detekciju ova dva radionuklida (uticaj na efikasnosti: manji od 5 %), kao ni na minimalne detektibilne aktivnosti.

nekoincidentnom režimu rada), kao i brzine brojanja fona u oblasti fotopika (1.18 – u integralnom, i 1.14 – u nekoincidentnom režimu rada). Odnos ukupnih brzina brojanja u spektru izvora kalijuma i u odgovarajućem spektru fona u integralnom režimu isti je u oba opsega, dok je u nekoincidentnom režimu on neznatno veći u opsegu (300-3000) keV (oko 1.03 puta). Odnos brzina brojanja u oblasti fotopika (1460 keV) veći je u opsegu (200-2000) keV (oko 1.1 put – u integralnom, i 1.04 puta – u nekoincidentnom režimu). Dakle, u slučaju detekcije γ -zraka energije 1460 keV, u nekoincidentnom u odnosu na integralni režim mjerenja, efikasnost detekcije fotopika neznatno je manja, ali je to smanjenje kompenzovano smanjenjem brzine brojanja fona u toj oblasti (1.24 puta u opsegu od 200 keV do 2000 keV, i 1.27 puta u opsegu od 300 keV do 3000 keV), zbog čega su u nekoincidentnom režimu rada niže i minimalne detektibilne aktivnosti, u oba energetska opsega.

Konačno, efikasnosti detekcije fotona energija 662 keV i 1460 keV, kao i odgovarajuće brzine brojanja fona, pokazuju da se šestdetektorskim γ -spektrometrom PRIPJAT-2M u integralnom i nekoincidentnom režimu rada mogu vršiti ekspresna mjerenja ^{137}Cs i ^{40}K , pri čemu, bez obzira na izabrani energetski opseg, nekoincidentni režim nešto je povoljniji od integralnog režima rada [55]. Ovo pogoduje rješenju istovremene detekcije četiri ovdje razmatrana radionuklida, o čemu će biti riječi u jednom od narednih poglavlja.

5. KOINCIDENTNI METOD MJERENJA RADIJUMA-226

Razvoj koincidentnog metoda mjerenja ^{226}Ra pokazao se kao moguć nakon odgovarajućih modifikacija spektrometra PRIPJAT-2M, uključujući modifikaciju softvera PRIP (tj. mogućnost razdvajanja koincidencija različitih višestrukosti). Sa ovim u vezi, potrebno je bilo izvršiti konačan izbor kaskadnih γ -prelaza i koincidencija, odrediti efikasnosti detekcije i minimalne detektibilne aktivnosti radijuma u različitim režimima rada, te odrediti optimalni režim mjerenja [56], koji će se koristiti za mjerenje ^{226}Ra u uzorcima iz životne sredine i dalja specifična istraživanja.

Kao što je poznato, mjerenja aktivnosti ^{226}Ra su od uopšte ekološkog (na primjer, [57-59]), a i radioekološkog značaja. Ako se govori o ljudima, među izotopima radona, njegov potomak ^{222}Rn (član niza ^{238}U , i potomak ^{226}Ra) je od najvećeg (radioekološkog) značaja, jer oko 50 % srednje godišnje efektivne doze koju ljudska populacija primi od svih prirodnih izvora zračenja, potiče upravo od njegovog udisanja [60].

5.1. Selekcija kaskadnih prelaza i koincidencija

Razmatranje šeme raspada ^{226}Ra i njegovih potomaka (poglavlje 2 – 2.1), pokazalo je da samo γ -zranci iz kaskadnih prelaza koji prate β^- -raspad ^{214}Bi imaju energije i intenzitete podesne za laku detekciju spektrometrom PRIPJAT-2M u koincidentnom režimu rada. Ovo stoga što (posmatrajući dominantne raspade):

- alfa raspad ^{226}Ra (do ^{222}Rn) praćen je emisijom 7 γ -zraka (ali samo jedan ima intenzitet $> 1\%$: 186.211 keV, 3.59 %), a ^{222}Rn do ^{218}Po – jednim γ -zrakom (511 keV, 0.076 %);
- polonijum-218 raspada se do ^{214}Pb putem α^- , a ^{214}Pb do ^{214}Bi – putem β^- -raspada. Pet γ -zraka sa intenzitetima većim od 1 % javlja se u zadnjem raspadu (najintenzivniji: 351.932 keV, 37.6 %);
- beta minus raspad ^{214}Bi (do ^{214}Po) praćen je emisijom velikog broja γ -zraka, i većina od njih su u različitim kaskadama (dvostruke, tro(i više)struke). Ove γ -linije su najintenzivnije u lancu raspada ^{226}Ra (sa stanovišta koincidentne detekcije);
- intenzivni γ -zranci ne javljaju se u α -raspadu ^{214}Po (do ^{210}Pb), β^- -raspadu ^{210}Pb (do ^{210}Bi) i ^{210}Bi (do ^{210}Po), i α -raspadu ^{210}Po (do stabilnog ^{206}Pb).

S obzirom na (trenutne) karakteristike spektrometra PRIPJAT-2M, samo γ -kaskade iz β^- -raspada ^{214}Bi mogu biti lako i precizno detektovane. Radi se o kaskadama sa istim drugim prelazom – sa pobudenog nivoa 609.316 keV do osnovnog stanja ^{214}Po , s relativnim intenzitetom 46.1 %. Najintenzivniji ($I > 1 \%$) γ -zraci ^{214}Po dati su u tabeli 5.1.1.

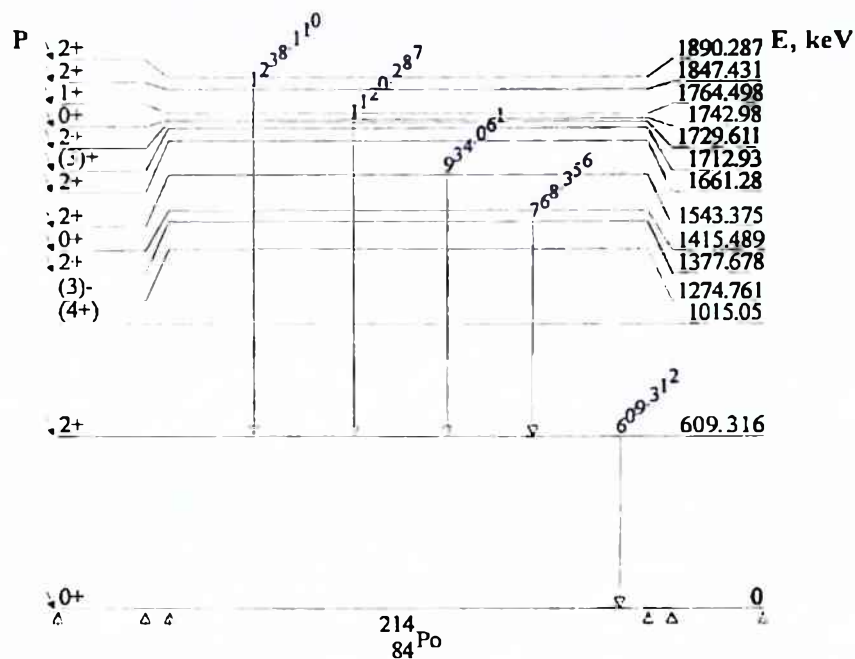
Tabela 5.1.1. Intenzivni γ -zraci ^{214}Po .

E_γ [keV]	E_{nk00} [keV]	I [%]
609.312	609.316	46.1
1764.494	1764.498	15.4
1120.287	1729.611	15.1
1238.110	1847.431	5.79
2204.21	2204.13	5.08
768.356	1377.675	4.94
1377.669	1377.675	4.00
934.061	1543.375	3.03
1729.595	1729.611	2.92
1407.98	2017.30	2.15
1509.228	2118.552	2.11
1847.420	1847.431	2.11
1155.19	1764.498	1.63
2447.86	2447.70	1.57
665.453	1274.761	1.46
1280.96	1890.287	1.43
1401.50	2010.81	1.27
806.174	1415.489	1.22
1661.28	1661.28	1.15
2118.55	2118.552	1.14

Iako su intenzivni γ -zraci: 1407.98 keV, 1509.228 keV, 1115.19 keV, 665.453 keV, 1280.96 keV, 1401.50 keV, 806.174 keV i 2118.55 keV, takode u kaskadi sa 609.312 keV, kao i mnogi drugi fotoni (ukupno ima oko 69 dvostrukih kaskada sa γ -zrakom energije 609.312 keV [41]), najintenzivnije dvostruke kaskade su (slika 5.1.1):

1120.287 keV (15.1 %) + 609.312 keV (46.1 %),³⁰
 1238.110 keV (5.79 %) + 609.312 keV,
 768.356 keV (4.94 %) + 609.312 keV,
 934.061 keV (3.03 %) + 609.312 keV.

³⁰ Intenziteti γ -prelaza dati su u zagradama.



Slika 5.1.1. Intenzivne dvostruke kaskade gama zraka ^{214}Po .

Neke od mnogobrojnih trostrukih kaskada fotona koje prate β^- -raspad ^{214}Bi su [56]:

388.88 keV (0.37 %) + 1120.287 keV + 609.312 keV,

386.77 keV (0.31 %) + 768.356 keV + 609.312 keV,

1069.96 keV (0.275 %) + 768.356 keV + 609.312 keV,

752.84 keV (0.13 %) + 1120.287 keV + 609.312 keV, itd.;

a četverostruke:

683.22 keV (0.081 %) + 386.77 keV (0.31 %) + 768.356 keV + 609.312 keV,

847.16 keV (0.026 %) + 469.76 (0.129 %) + 768.356 keV + 609.312 keV,

752.84 keV (0.13 %) + 454.77 keV (0.30 %) + 665.453 keV (1.46 %) + 609.312 keV,

501.96 keV (0.018 %) + 348.92 keV (0.12 %) + 806.174 keV (1.22 %) + 609.312 keV, itd.

S obzirom na navedeno, ako je radijum u nekom uzorku u radioaktivnoj ravnoteži sa potomcima, osim u integralnom i nekoincidentnom režimu rada, njegova detekcija (tj. mjerenje njegove aktivnosti) moguća je i preko fotopika na energiji 609 keV (koji se najviše koristi i za

određivanje aktivnosti radijuma u različitim uzorcima iz životne sredine pomoću poluprovodničkih detektora) – u spektru dvostrukih, trostrukih i četverostrukih koincidencija.

Važno je napomenuti da ovaj metod može biti primijenjen samo ako gasoviti potomak radijuma (^{222}Rn) ne emanira iz uzorka (tj. emanacija ^{222}Rn će uticati na samo mjerenje ^{226}Ra , kao i na minimalnu detektibilnu aktivnost).

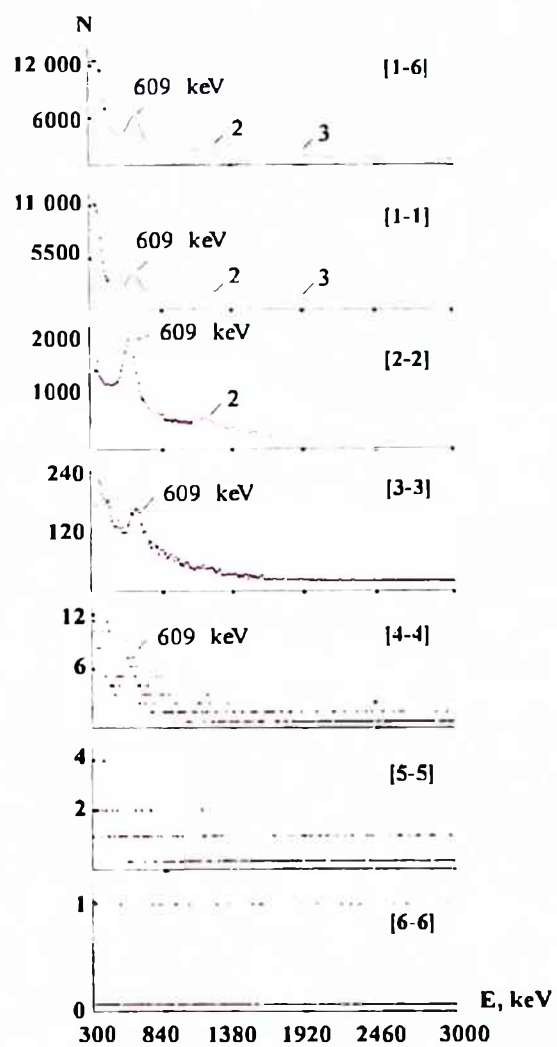
5.2. Efikasnost detekcije i minimalna detektibilna aktivnost ^{226}Ra

Izvor ^{226}Ra (opisan u poglavlju 4) postavljen je u centar detekcione komore spektrometra PRIPJAT-2M i mjereno 50 s, 100 s, 500 s, 1000 s, 1800 s, 3600 s, 5400 s, 7200 s, 10 800 s, 14 400 s i 18 000 s (realno vrijeme mjerenja). Sumarni spektri dobijeni za 500 s (živo vrijeme: 282.7 s – u integralnom ([1-6]), i 281.9 s – u nekoincidentnom ([1-1]) i koincidentnim režimima ([2-2]...[6-6])), u energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV (od 2. do 255. kanala), predstavljeni su na slici 5.2.1 [56]. Spektri fona snimani su tokom jednakih (realnih) vremena, a oni dobijeni za 3600 s (živo vrijeme: 3570.1 s – u integralnom, i 3570.6 s – u nekoincidentnom i koincidentnim režimima) predstavljeni su na slici 5.2.2. Ukupne brzine brojanja fona u pojedinim režimima rada, za dato realno vrijeme mjerenja, već su navedene u poglavlju 3 (3.3).

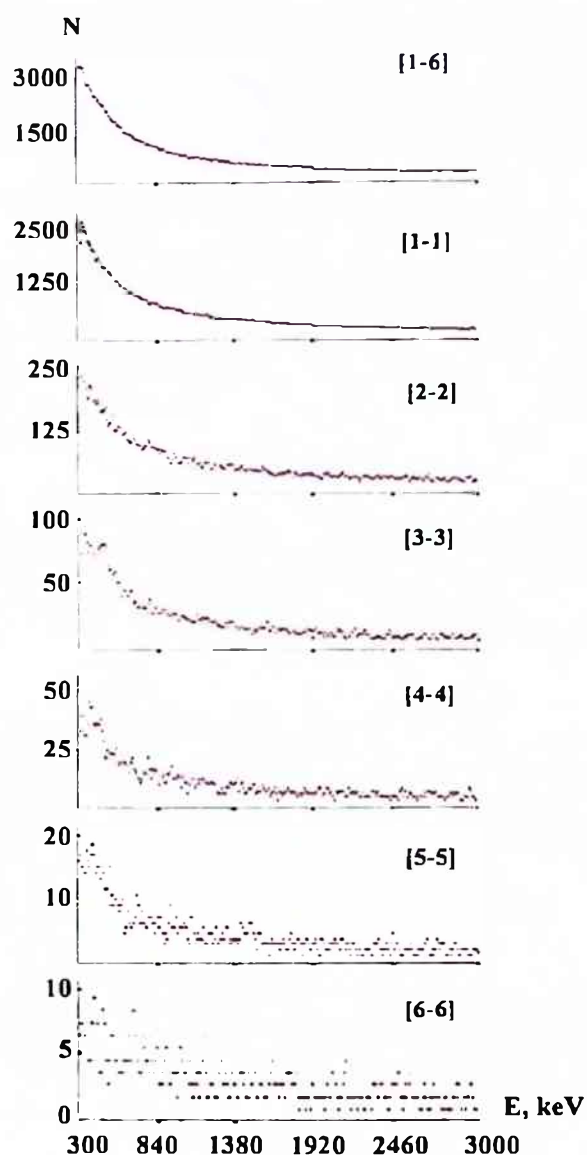
Treba napomenuti da su, tokom obrade spektara, od spektara radijuma snimanih tokom 500 s oduzeti fonski spektri snimani isto toliko vremena (kao što je urađeno i u slučaju ostalih spektara, snimanih tokom različitih vremena mjerenja), tako da fluktuacije u brzini brojanja fona ne utiču na dalje analize.

Pikovi označeni kao 2 i 3 (i pominjani u poglavlju 4) imaju centroide na oko 1200 keV i 1800 keV, respektivno.

Pik 2 predstavlja *preklopljene* pikove γ -zraka sa energijama 1120.287 keV i 1238.110 keV, koje sistem PRIPJAT-2M ne može da razdvoji. Moguće je da ovom piku doprinosi i sumiranje kaskadnih gama zraka (na primjer, 609.312 keV i 665.453 keV, registrovani kao jedan pik, sa energijom koja je jednaka sumi energija pojedinačnih fotona). Na primjer, za realno vrijeme mjerenja 1000 s, brzina brojanja u ovom energetsom regionu u spektru izvora bila je 125.9 imp/s (a u odgovarajućem fonskom spektru: 3.51 imp/s) – u integralnom režimu mjerenja. U nekoincidentnom i režimu dvostrukih koincidencija, brzina brojanja je bila: 76.8 imp/s (fon: 2.99 imp/s), i 41.9 imp/s (fon: 0.35 imp/s), respektivno.



Slika 5.2.1. Sumarni spektri ^{226}Ra u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M (500 s realnog vremena).



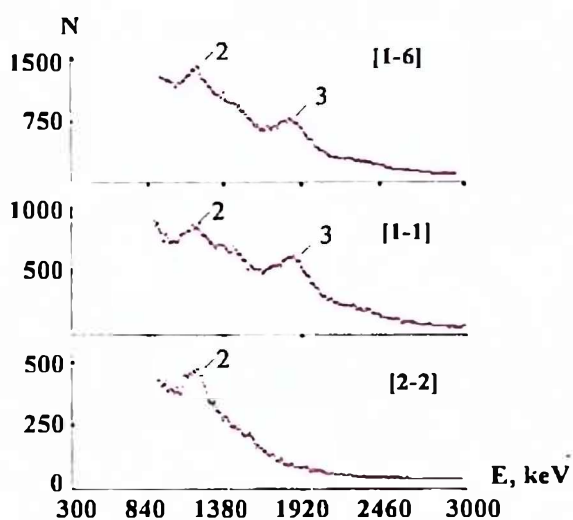
Slika 5.2.2. Sumarni spektri fona u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M (3600 s realnog vremena).

Pik 3 koji se javlja u integralnom ([1-6]) i nekoincidentnom ([1-1]) spektru, uglavnom predstavlja γ -zrak energije 1764.494 keV, *preklopljen* pikom koji kreiraju γ -zruci energije 1847.420 keV³¹. Brzina brojanja u ovom energetskom regionu u spektru izvora (za realno vrijeme mjerenja 1000 s), u integralnom i nekoincidentnom režimu, bila je 84.4 imp/s i 82.9

³¹ I još neki zruci relativno bliskih energija.

imp/s, respektivno, dok je u odgovarajućoj oblasti fonskog spektra ona bila 2.33 imp/s i 2.28 imp/s, respektivno.

Sumarni spektri u integralnom, nekoincidentnom i režimu dvostrukih koincidencija su zumirani (od 57. do 255. kanala), sa ciljem da se bolje predstavljaju ovi regioni spektra (slika 5.2.3) [56].



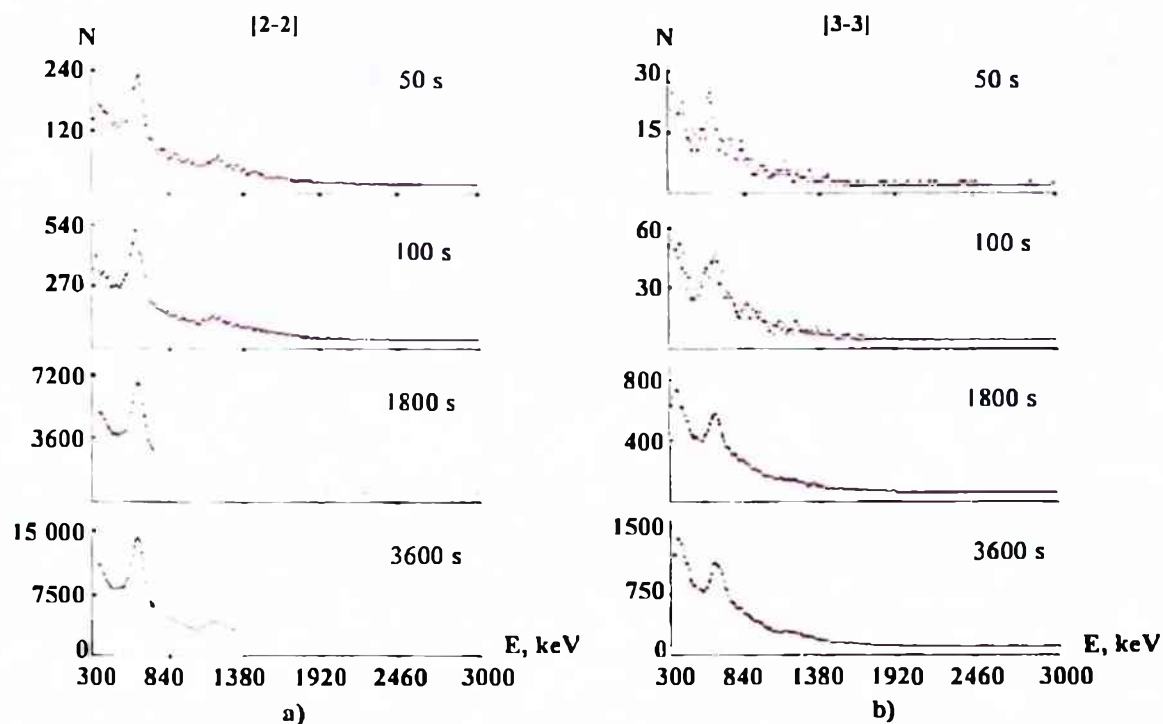
Slika 5.2.3. Regioni 2 i 3 u različitim režimima rada spektrometra.

Fotopik na energiji 609 keV najintenzivniji je u spektru dvostrukih koincidencija (što je vidljivo i u spektru koji je sniman 50 s realnog vremena), i PRIPJAT-2M takođe registruje fotone energije 609 keV u režimu trostrukih koincidencija ([3-3]). Sumarni spektri dobijeni za 50 s, 100 s, 1800 s i 3600 s realnog vremena (živo vrijeme: 32.1 s, 65.4 s, 932.3 s, i 1934.8 s, respektivno), u režimu dvostrukih koincidencija (a) i režimu trostrukih koincidencija (b), predstavljeni su na slici 5.2.4.

Ovaj fotopik u spektru četverostrukih koincidencija nije jasno izdvojen za gore navedena vremena mjerenja. Istraživanja su pokazala da je neophodno vrijeme mjerenja 5400 s i duže (slika 5.2.5).

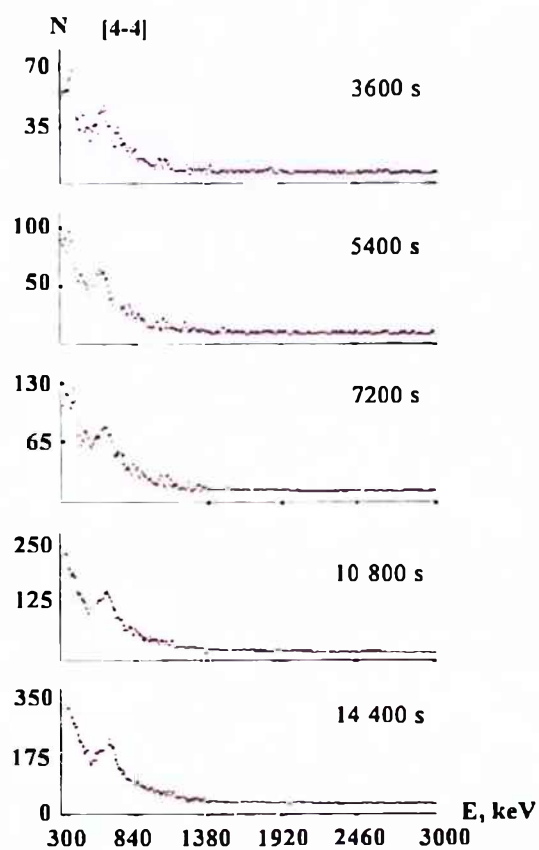
U svim slučajevima, predstavljeni su spektri od kojih je, u procesu obrade, oduzet fon.

Odnosi brzina brojanja pod fotopikom u spektru izvora (dobijenom za 500 s) i u odgovarajućem energetsom regionu u spektru fona, dati su u tabeli 5.2.1 [56]. Približno isti odnosi dobijeni su i za ostala vremena mjerenja (razlike su, uglavnom, manje od 5 %)³².



Slika 5.2.4. Sumarni spektri dvostrukih i trostrukih koincidencija dobijeni tokom različitih vremena mjerenja.

³² Nešto veća odstupanja u pojedinim režimima rada pokazali su spektri snimani 1000 s realnog vremena.



Slika 5.2.5. Spektri četverostrukih koincidencija.

Tabela 5.2.1. Odnosi brzina brojanja u spektru izvora i u spektru fona (500 s realnog vremena).

Režim rada	Odnos ukupnih brzina brojanja: izvor ^{226}Ra /fon	Odnos brzina brojanja u oblasti fotopika 609 keV: izvor ^{226}Ra /fon	Odnos brzina brojanja u oblasti pika 2: izvor ^{226}Ra /fon	Odnos brzina brojanja u oblasti pika 3: izvor ^{226}Ra /fon
[1-6]	35.49	38.26	33.91	34.25
[1-1]	30.23	29.08	24.02	33.52
[2-2]	103.59	174.90	70.72	—
[3-3]	23.03	37.95	—	—
[4-4]	1.92	3.19*	—	—
[5-5]	0.48	—	—	—
[6-6]	0.56	—	—	—

*Dobijeno za spektre koji su snimani 5400 s realnog vremena.

Konačno, efikasnosti detekcije γ -zraka energije 609 keV u fotopiku (nakon oduzimanja fona, korekcija zbog Kompton i *suming* efekta³³), u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M, kao i minimalne detektibilne aktivnosti ²²⁶Ra procijenjene pomoću formule (4.1), date su u tabeli 5.2.2 [56].

Tabela 5.2.2. Efikasnosti detekcije i minimalne detektibilne aktivnosti ²²⁶Ra u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M.

Režim rada	N_f [s ⁻¹]	ϵ	A_{min} [Bq]
[1-6]	7.3	0.286	1.12
[1-1]	5.9	0.173	1.67
[2-2]	0.61	0.103	0.90
[3-3]	0.26	0.0086	7.06
[4-4]	0.107*	0.0003**	40.64

*Dobijeno iz fonskog spektra: 5400 s realnog vremena (živo vrijeme: 5360.9s). **Dobijeno iz radijumskog spektra: 5400 s realnog vremena (živo vrijeme: 2879.5 s).

U poređenju sa integralnim režimom rada, efikasnost detekcije fotopika na energiji 609 keV u režimu dvostrukih koincidencija smanjuje se 2.7 puta, dok se, u isto vrijeme, brzina brojanja fona smanjuje 12 puta. Ovo znači bolji odnos signal/šum, a stoga i bolju osjetljivost spektrometra PRIPJAT-2M u režimu dvostrukih koincidencija. U poređenju sa nekoincidentnim režimom, efikasnost detekcije je manja 1.7 puta, a brzina brojanja fona – oko 9.7 puta.

Brzina brojanja fona u regionu fotopika 609 keV u režimu dvostrukih koincidencija je za faktor 2 (a efikasnost detekcije – za faktor 12) veća nego u režimu trostrukih koincidencija, zbog čega minimalna detektibilna aktivnost (procijenjena pomoću formule (4.1)) raste u režimu trostrukih koincidencija.³⁴

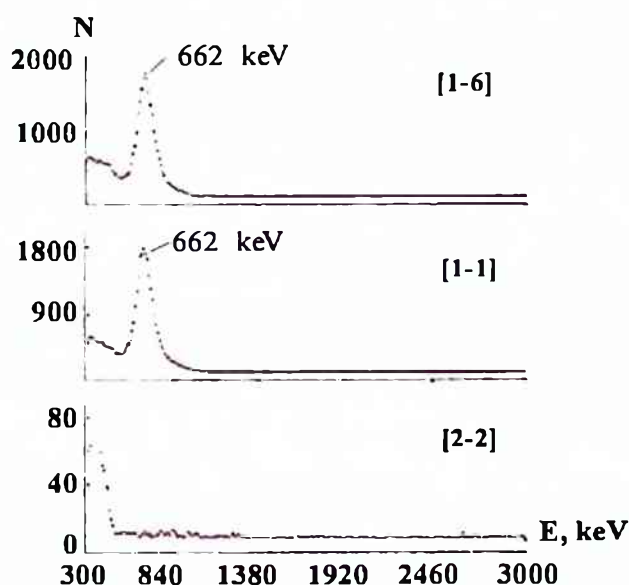
Ovo nedvosmisleno potvrđuje da je optimalni režim za mjerenje aktivnosti ²²⁶Ra spektrometrom PRIPJAT-2M – režim dvostrukih koincidencija (kako je to slijedilo i iz početnih analiza), iako ona može biti određivana i preko fotopika na energiji 609 keV u integralnom i nekoincidentnom režimu rada (i u režimu trostrukih i četvorostrukkih koincidencija, ali to nijesu optimalne varijante).

³³ i koristeći mogućnosti softvera PRIP

³⁴ Posebno – u režimu četvorostrukkih koincidencija, kada se efikasnost detekcije fotopika smanjuje 343 puta, a brzina brojanja fona se smanjuje samo 6 puta.

Minimalna detektibilna aktivnost u režimu dvostrukih koincidencija za realna vremena mjerenja 1800 s i 3600 s (živa vremena: 932.3 s i 1934.8 s, respektivno) manja je, i iznosi 0.50 i 0.34 Bq, respektivno.³⁵

Važno je napomenuti da ovaj (koincidentni) metod dozvoljava mjerenje aktivnosti ^{226}Ra i njegovih potomaka (pomoću višedetektorskog spektrometra sa natrijum-jodidnim detektorima) i u uzorcima koji su kontaminirani cezijumom-137, i to bez narušavanja i pogoršanja osjetljivosti [56]. Stoga, korišćenje ovog metoda u zonama sa radioaktivnom kontaminacijom ima značajne prednosti u odnosu na korišćenje standardnih metoda, budući da je moguće isključiti doprinos ^{137}Cs (koji je monoenergetski γ -izvor i ne registruje se u regionu od interesa u koincidentnim spektrima). Na slici 5.2.6 vidi se da fotopik ^{137}Cs (662 keV) ne postoji u spektru dvostrukih koincidencija dobijenom pomoću spektrometra PRIPJAT-2M, dok se u integralnom i nekoincidentnom spektru ovaj fotopik ne može razdvojiti od radijumskog fotopika na energiji 609 keV (o čemu će biti riječi kasnije).



Slika 5.2.6. Sumarni spektri ^{137}Cs (720 Bq) – PRIPJAT-2M (200 s realnog vremena).

³⁵ Pri početnim analizama (poglavlje 4 – 4.2), za režime [1-6], [1-1], [2-2] i [3-3], realno vrijeme mjerenja 1000 s i energetski opseg (300-3000) keV, minimalna detektibilna aktivnost procijenjena je na 0.59 Bq, 0.85 Bq, 0.58 Bq i 5.16 Bq, respektivno; a konačno, za (na primjer) 2600 s mjerenja, minimalna detektibilna aktivnost u nekoincidentnom režimu iznosi 0.65 Bq, a u režimu dvostrukih koincidencija – 0.47 Bq.

Iz cjelokupne prethodne analize slijedi da razvijeni metod može biti primijenjen na ostale 4π gama spektrometre sa NaI(Tl) detektorima, ali će efikasnost detekcije fotopika na energiji 609 keV (tj. fotoefikasnost), kao i minimalna detektibilna aktivnost radijuma, zavisiti od broja detektora koji su uključeni u sistem, njihovih individualnih efikasnosti detekcije, fonskih uslova (tj. brzine brojanja fona) i izabranog režima rada.

5.2.1. Testiranje metoda i poređenje sa standardnim (HPGe) metodom

Jedna od mogućih primjena razvijenog metoda jeste određivanje aktivnosti radijuma u uzorcima iz životne sredine. Stoga, uzorak zemljišta (mase 0.731 kg) koji je uzet iz površinskog (0–5) cm sloja na crnogorskom primorju (lokacija Arza) bio je smješten u plastičnu Marineli posudu od 1 L (visine 10.8 cm i dijametra 14.6 cm) i hermetički zatvoren. Analiziran je spektrometrom PRIPJAT-2M u različitim režimima rada, i to nakon uspostavljanja radioaktivne ravnoteže između ^{226}Ra i njegovih potomaka. Rezultati mjerenja (za 1000 s realnog vremena), tj. aktivnost (A) i koncentracija aktivnosti (A_k), dati su u tabeli 5.2.3 [56].

Tabela 5.2.3. Aktivnost radijuma u uzorku zemljišta sa Arze.

Živo vrijeme mjerenja [s]	Režim rada spektrometra PRIPJAT-2M	A [Bq]	A_k [Bq kg ⁻¹]
897.7	[1-6]	80.16±8.93	109.65±12.22
897.4	[1-1]	87.36±9.65	119.51±13.20
897.4	[2-2]	83.86±8.87	114.72±12.13

Zbog poređenja, isti uzorak je izmjeren koaksijalnim HPGe detektorom (ORTEC – 30185-S, relativne efikasnosti – 35%, FWHM – 1.72 keV na 1.33 MeV, FWHM – 700 eV na 122 keV, 609 keV fotoefikasnost – 0.01585), u Centru za ekotoksikološka ispitivanja u Podgorici. Rezultati dobijeni za 10 002.9 s (aktivnost radijuma određena preko pika na energiji 609 keV – (82.57±9.37) Bq, tj. (112.95±12.82) Bq kg⁻¹), pokazali su dobru saglasnost sa rezultatima dobijenim pomoću spektrometra PRIPJAT-2M (razlike među rezultatima manje su od 6 %). Za vrijeme mjerenja od 10 002.9 s, minimalna detektibilna koncentracija aktivnosti radijuma za HPGe spektrometar, procijenjena pomoću 3MDA metoda [61], bila je $A_{\min} = 2.03 \text{ Bq kg}^{-1}$, dok za režim dvostrukih koincidencija spektrometra PRIPJAT-2M ona iznosi 0.68 Bq kg⁻¹ (za živo vrijeme mjerenja od 897.4 s).

Dakle, poređenja pokazuju da je, u odnosu na HPGe spektrometar, detekcija radijuma pomoću spektrometra PRIPJAT-2M moguća za značajno kraće vrijeme (više nego za red veličine). Istovremeno, osjetljivost spektrometra PRIPJAT-2M u režimu dvostrukih koincidencija značajno je veća (tj. minimalna detektibilna aktivnost je za oko 3 puta manja), kao i efikasnost detekcije u fotopiku na energiji 609 keV (0.01585 u slučaju HPGe spektrometra, i 0.103 u slučaju spektrometra PRIPJAT-2M).

Važno je napomenuti da je Marineli posuda korišćena zbog toga što je mjerenje uzorka vršeno i na koaksijalnom HPGe detektoru. S druge strane, kao što je već rečeno, velika detekciona komora spektrometra PRIPJAT-2M, geometrija bliska 4π i karakteristike softvera, dozvoljavaju mjerenja uzoraka proizvoljnog oblika i relativno velike zapremine (do 5 dm³).

5.3. Primjena koincidentnog metoda mjerenja radijuma-226 u radioekologiji³⁶

Nakon razvoja koincidentnog metoda mjerenja ²²⁶Ra, PRIPJAT-2M spektrometrom je izvršena serija mjerenja, tj. određivanje koncentracija njegove aktivnosti u ranije uzorkovanom zemljištu (14 uzoraka) sa crnogorskog primorja (površinski sloj zemljišta iz Herceg Novog, Kotora, Tivta, Budve, Bara, kao i Sutomora, Petrovca, Svetog Stefana, Miločera i Igala; mase: između 0.7 i 0.9 kg; realno vrijeme mjerenja – 1800 s), ali i pijesku – plaže u Ulcinju (3), Baru, Sutomoru, Petrovcu (2), Svetom Stefanu, Miločeru (2), Budvi (3), Herceg Novom.

Srednja vrijednost koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra u uzorcima pijeska bila je 9.5 Bq kg⁻¹, sa standardnom devijacijom 3.6 Bq kg⁻¹, i medijanom 9 Bq kg⁻¹; dok su ove vrijednosti za uzorke zemljišta bile 34.6 Bq kg⁻¹, 35.7 Bq kg⁻¹ i 25.9 Bq kg⁻¹, respektivno. Minimum ²²⁶Ra aktivnosti bio je 4.3 Bq kg⁻¹, tj. (4.3±0.3) Bq kg⁻¹ – u uzorku pijeska iz Budve (plaža Mogren), a maksimum 157 Bq kg⁻¹, tj. (157±4) Bq kg⁻¹ – u uzorku zemljišta iz Tivta (Krašići). Uopšte govoreći, rezultati su pokazali da je aktivnost ²²⁶Ra u pijesku relativno niska (maksimum od (19±1.8) Bq

³⁶Prema Međunarodnoj radioekološkoj uniji (International Union of Radioecology: <http://www.iur-uir.org>; Radioecology in 2012 – Current research directions and trends for the future), radioekologija je: „A multidisciplinary scientific discipline: biology, chemistry, physiology, ecology, biogeochemistry, geophysics, ecotoxicology, mathematics (models, statistics), metrology,...“

kg^{-1} – u uzorku sa plaže u Igalu), kao uostalom i u uzorcima zemljišta – minimum od (16.8 ± 0.72) Bq kg^{-1} određen je u uzorku iz Bečića (a u ostalim uzorcima, osim u uzorku iz Krašića, koncentracija aktivnosti ^{226}Ra bila je manja od 40 Bq kg^{-1}) [56].

Ova mjerenja pokazala su da se relativno brzo (za nekih 14 sati mjerenja) može uraditi svojevrsan monitoring radijumske aktivnosti, za kakav bi, u slučaju korišćenja HPGe spektrometra, bilo potrebno značajno duže vrijeme (najmanje 80 do 100 sati).

Ovo jesu bila prva sistematska mjerenja radijuma u uzorcima zemljišta i pijeska u regionu primorja Crne Gore, ali budući da tačne pozicije (tj. koordinate) uzorkovanja nijesu bile poznate (tj. zabilježene), istraživanja koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u marinskoj životnoj sredini južnog Jadranskog mora iskorišćena su i za dodatna ispitivanja uzoraka pijeska i zemljišta iz gradova sa primorja Crne Gore.

Kao što je poznato, ^{226}Ra i produkti njegovog raspada mjereni su do sada, koristeći različite tehnike, u marinskoj životnoj sredini [62-67], kao i u nekim vrstama riba [68, 69]. Međutim, prva mjerenja aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima iz južnog Jadranskog mora – površinskom sedimentu, morskoj travi, mulju sa detritusom, u cijelim jedinkama vrste cipola *Liza aurata* (Risso, 1810) (kao i u njenom mišiću – kao jestivom dijelu), izvršena su u saradnji sa biologom/ekologom (koji je izvršio pripremu, a i selekciju vrsta uzoraka – s obzirom na paralelna i buduća istraživanja)³⁷, koristeći koincidentni metod i režim dvostrukih koincidencija³⁸ na spektrometru PRIPJAT-2M [70].

Uzorci zemljišta iz gradova na crnogorskom primorju, kao i pijesak sa izabраних plaža, takode su analizirani na isti način (dodatno je, iako izvan ove doktorske disertacije, izvršen i odgovarajući proračun i direktno mjerenje doza [70]).

Treba napomenuti da je medijana srednjih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u zemljištu širom svijeta u opsegu od 17 Bq kg^{-1} do 60 Bq kg^{-1} , sa srednjom vrijednošću 35 Bq kg^{-1} [71].

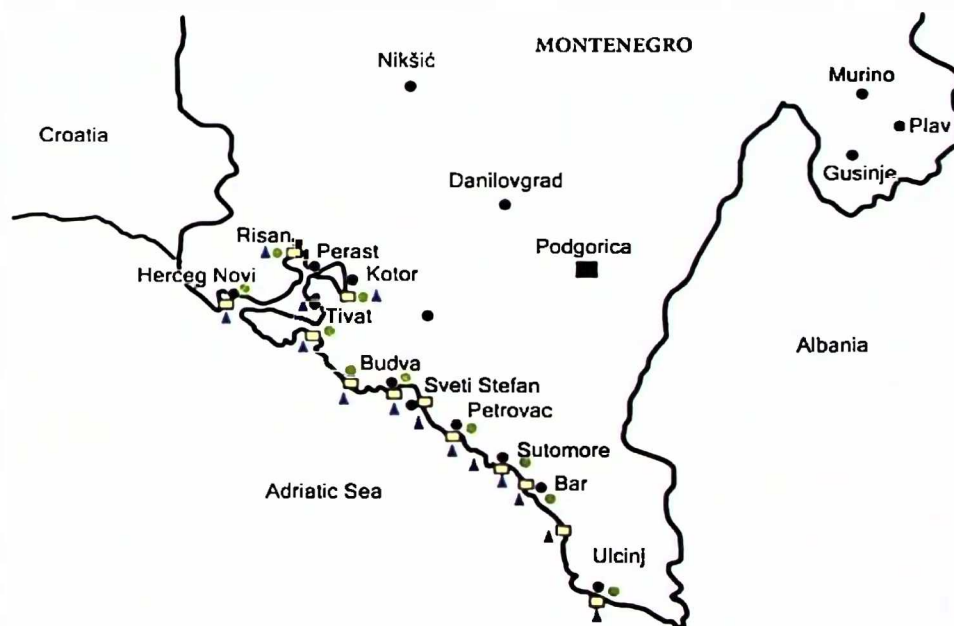
³⁷ Treba napomenuti i da su i razvoj koincidentnog metoda mjerenja radijuma i njegova modifikacija, vršeni tako da bi isti mogao biti široko primijenjen u radioekologiji i zaštiti životne sredine.

³⁸ Kako se vrši mjerenje radijuma u uzorcima iz životne sredine, koje karakteriše i sadržaj (aktivnost) torijuma i cezijuma, biće objašnjeno u narednim poglavljima. Svi rezultati dobijeni su uzimajući u obzir tu činjenicu.

5.3.1. Uzorci i mjerenje

5.3.1.1. Zemljište i pijesak

Uzorci zemljišta uzeti su iz 10 gradova sa primorja Crne Gore (Ulcinj, Bar, Sutomore, Petrovac, Budva, Jaz – Budva, Tivat, Kotor, Risan, Herceg Novi). Na slici 5.3.1. data je mapa na kojoj su naznačene lokacije. Na svakom mjernom mjestu uzorkovan je površinski sloj (do 5 cm) – korišćen u ovoj analizi; ali i uzorci sa dubine od 5 cm do 10 cm, i od 10 cm do 15 cm – zbog ostalih planiranih analiza. Nakon sušenja na sobnoj temperaturi, uzorci su homogenizovani u standardnoj proceduri [72] (zbog toga što je, sa ciljem kompletnog poređenja i drugih analiza, naknadno urađeno i mjerenje svih uzoraka i HPGe detektorima u Centru za ekotoksikološka ispitivanja u Podgorici), hermetički zatvoreni u Marineli posude zapremine 1 L, i nakon toga (tj. nakon uspostavljanja radioaktivne ravnoteže između ^{226}Ra i njegovih potomaka) snimani pomoću spektrometra PRIPJAT-2M u režimu dvostrukih koincidencija tokom 2000 s realnog vremena (živo vrijeme mjerenja bilo je od 1698.2 s do 1973.7 s). Mase uzoraka date su u tabeli 5.3.1.



Slika 5.3.1. Mjesta uzorkovanja: ● - zemljište, □ - pijesak, ▲ - morska voda.

Tabela 5.3.1. Aktivnost ^{226}Ra u uzorcima zemljišta sa crnogorskog primorja.

Uzorak	Koordinate	Masa [kg]	$A(^{226}\text{Ra})$ [Bq]	$A_k(^{226}\text{Ra})$ [Bq kg ⁻¹]
Ulcinj	N 41°54' 58.5" E 19°15' 02.6"	1.285	16.54±0.62	12.87±0.48
Bar	N 42°06' 63.5" E 19°05' 36.8"	1.140	28.11±0.95	24.66±0.83
Sutomore	N 42°08' 57.7" E 19°02' 11.1"	0.877	19.03±0.66	21.70±0.76
Petrovac	N 41°54' 58.5" E 19°15' 02.6"	1.299	30.91±1.09	23.79±0.84
Budva	N 42°17' 14.9" E 18°51' 13.9"	1.109	16.52±0.66	15.44±0.61
Jaz	N 42°16' 9.93" E 18°48' 13.0"	1.050	24.90±0.85	23.72±0.81
Tivat	N 42°23' 28.6" E 18°40' 9.10"	1.219	256.43±8.28	210.31±6.79
Kotor	N 42°24' 9.92" E 18°45' 7.52"	1.205	26.86±0.90	22.30±0.74
Risan	N 42°30' 6.28" E 18°41' 7.63"	1.080	30.52±1.12	28.25±1.04
Herceg Novi	N 42°27' 29.4" E 18°33' 0.11"	1.200	17.89±0.72	14.91±0.60

Uzorci pijeska uzeti su sa 20 plaža u: Ulcinju (Velika plaža, Mala plaža), Baru (Šušanj, Čanj, Utjeha), Sutomoru, Petrovcu (grad i Buljarica), Budvi (Sveti Stefan, Kraljičina plaža, Pržno, Bečići, Slovenska plaža, Mogren, Jaz, Kamenovo), Kotoru, Tivtu (Plavi horizonti), Risnu, Herceg Novom (Njivice). Osušeni su na sobnoj temperaturi, izmjerene su im mase (tabela 5.3.2), zatvoreni su u Marineli posude, i takode (nakon uspostavljanja ravnoteže između ^{226}Ra i njegovih potomaka) snimani 2000 s realnog vremena. Živa vremena mjerenja bila su od 1954.5 s do 1989.7 s.³⁹

Početnog poredenja radi, aktivnost ^{226}Ra u uzorku zemljišta iz Kotora i pijeska iz Petrovca (grad) određena je i pomoću HPGe jednodetektorskog spektrometra (koaksijalni, ORTEC – GEM – 40190, relativne efikasnosti – 40%, FWHM – 1.80 keV na 1.33 MeV, FWHM – 840 eV na 122 keV; fon – 1.23 imp/s; Softveri – Gamma Vision 32 A66-B32 V 4.12 i Gamma Vision 32 A66-B32 V 5.2; Nuclide Navigator V 1.01) u Centru za ekotoksikološka ispitivanja. Efikasnost detekcije pika na energiji 609 keV u slučaju uzorka zemljišta bila je – 0.015859, za živo vrijeme mjerenja od 89 363.8 s, dok je u slučaju pijeska iz Petrovca efikasnost detekcije pika na energiji 609 keV bila 0.015847, za živo vrijeme mjerenja od 73 150.32 s.

³⁹ I svi ovi uzorci su naknadno izmjereni pomoću HPGe detektora u Centru za ekotoksikološka ispitivanja – zbog budućih analiza i poredenja.

Tabela 5.3.2. Aktivnost ^{226}Ra u uzorcima pijeska sa plaža crnogorskog primorja.

Uzorak	Koordinate	Masa [kg]	$A(^{226}\text{Ra})$ [Bq]	$A_k(^{226}\text{Ra})$ [Bq kg ⁻¹]
Velika plaža	N 41°54.474' E 19°14.987'	1.486	16.30±0.57	10.97±0.38
Mala plaža	N 41°55.442' E 19°12.264'	1.689	13.71±0.48	8.11±0.28
Utjeha	N 42°00.616' E 19°09.052'	1.714	28.38±0.94	16.56±0.55
Šušanj	N 42°06.691' E 19°05.086'	1.589	15.72±0.55	9.88±0.35
Sutomore	N 42°08.282' E 19°03.003'	1.592	9.51±0.36	5.97±0.23
Čanj	N 42°09.614' E 19°00.004'	1.667	15.48±0.54	9.28±0.33
Buljarica	N 42°11.675' E 18°57.814'	1.745	5.15±0.21	2.95±0.12
Petrovac	N 42°12.242' E 18°56.586'	1.500	8.90±0.31	5.93±0.21
Kamenovo	N 42°16.478' E 18°63.276'	1.500	11.79±0.42	7.86±0.28
Kraljičina plaža	N 42°15.673' E 18°53.572'	1.500	10.21±0.40	6.80±0.26
Pržno	N 42°16.109' E 18°53.554'	1.500	7.54±0.28	5.02±0.19
Sveti Stefan	N 42°15.357' E 18°53.669'	1.531	5.23±0.20	3.49±0.13
Bečići	N 42°16.866' E 18°52.539'	1.600	13.87±0.49	8.67±0.31
Slovenska plaža	N 42°17.109' E 18°51.134'	1.500	9.35±0.35	6.24±0.23
Mogren	N 42°16.634' E 18°49.970'	1.701	2.39±0.17	1.41±0.10
Jaz	N 42°16.947' E 18°48.153'	1.600	2.68±0.10	1.67±0.06
Plavi horizonti	N 42°23.152' E 18°40.943'	1.500	10.55±0.38	7.04±0.25
Kotor	N 42°25.781' E 18°46.080'	1.600	10.55±0.43	6.59±0.27
Risan	N 42°30.597' E 18°41.779'	1.600	13.24±0.53	8.27±0.33
Njivice	N 42°26.049' E 18°31.033'	1.661	16.17±0.54	9.74±0.32

5.3.1.2. Uzorci iz južnog Jadranskog mora

Uzorci površinske morske vode uzeti su sa 16 lokacija – Ulcinj (Velika plaža, Mala plaža), Bar (Luka, Šušanj, Čanj, Utjeha), Sutomore, Petrovac, Budva (Kamenovo, Pržno, Jaz), Tivat

(grad, Plavi horizonti), Kotor, Risan, Herceg Novi – u blizini plaža gdje je bio uzorkovan pijesak. Dva uzorka morske vode (po 6 L) uzeti su sa dubine od oko (6.5-7) m, u zalivu Boka Kotorska, u Dobroti (blizu Instituta za biologiju mora) i u oblasti Sveti Stasije. Na još nekim lokacijama, zbog dodatnih analiza, izvršeno je uzorkovanje površinske morske vode (po 30 L).

Uzorci morske trave – *Posidonia oceanica* (Posidoniaceae) koja je rasprostranjena u južnom Jadranskom moru i endemična je vrsta u Sredozemnom moru, uzeti su u zalivu Boka Kotorska – Dobrota i Sveti Stasije (morska trava 1 i 2, respektivno), kao i 2 uzorka površinskog sedimenta (sediment 1 i 2, respektivno). Mulj sa detritusom je takođe uzorkovan u oblasti Sveti Stasije.

Kao što je prethodno rečeno, spektrometar PRIPJAT-2M dozvoljava mjerenje uzoraka proizvoljnog oblika i zapremine do 5 dm³, bez njihove prethodne pripreme i kalibracionih mjerenja za različite geometrije uzoraka, uključujući uzorke vode [36]. Stoga, uzorci vode (svaki po 1 L) smješteni su u Marineli posude i mjereni po 10 000 s živog vremena. Sediment, morska trava i mulj sa detritusom osušeni su na sobnoj temperaturi, a zatim hermetički zatvoreni u Marineli posude i mjereni spektrometrom PRIPJAT-2M tokom 5000 s realnog vremena (morska trava) i 2000 s (sediment i mulj sa detritusom).

S druge strane, za mjerenja pomoću HPGe spektrometra, uzorci moraju biti pripremljeni (na standardni način za ovaj tip γ -spektrometrije), zbog čega su uzorci vode uzeti sa dubine od oko (6.5 – 7) m (Dobrota i Sveti Stasije) upareni do 1 L, a zatim (nakon hermetizacije) mjereni pomoću HPGe spektrometra i spektrometra PRIPJAT-2M. Radi poređenja, i uzorak vode (1 L) iz Ulcinja (Mala plaža), takođe je mjeran pomoću oba spektrometra. Sediment 1, morska trava 1 i mulj sa detritusom, bili su homogenizovani i pripremljeni prije mjerenja HPGe spektrometrom (mase – 1.25, 0.068 i 0.968 kg, respektivno).

Svi uzorci su bili zatvoreni više od 35 dana prije mjerenja.

5.3.1.2.1. *Liza aurata*

Uz pomoć biologa, jedinke vrste cipola (Mugilidae) *L. aurata* ulovljene u zalivu Boka Kotorska (oblast Tivta) izdvojene su na osnovu taksonomskih karakteristika [73]. U ove analize uključeno je sedam jedinki.

Nakon pranja i uklanjanja prljavštine, četiri uzorka (2, 3, 4 i 5) hermetički su zatvorena u plastične posude i mjerena (nakon uspostavljanja radioaktivne ravnoteže između radijuma i njegovih potomaka) po 5000 s realnog vremena spektrometrom PRIPJAT-2M, u režimu dvostrukih koincidencija.

Uzorak 1 mjereno je istim spektrometrom bez bilo kakve pripreme i bez uspostavljanja radioaktivne ravnoteže između radijuma i njegovih potomaka, što znači da se pomoću fotopika na energiji 609 keV može odrediti samo aktivnost ^{214}Bi . Zatim je isti uzorak homogenizovan (samljeven), smješten u Marineli posudu i mjereno (nakon 38 dana) pomoću HPGe i spektrometra PRIPJAT-2M.

Dva uzorka (6 i 7 – ukupnih dužina 31.9 cm i 34.6 cm, i masa 0.231 kg i 0.265 kg, respektivno), takode su mjerena spektrometrom PRIPJAT-2M – da bi se odredila aktivnost ^{214}Bi , a zatim je (od strane biologa) urađena disekcija – da bi se (uz ostale organe korišćene u drugim istraživanjima) izdvojili i mišići. Uzorci mišića mjereni su po 10 000 s živog vremena – da bi se odredila koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u njima. Izvan okvira ove disertacije, dobijene koncentracije aktivnosti (kao osnove za detaljniju procjenu bioloških efekata) su, između ostalog, iskorišćene i za proračun doze zračenje koju primi odrastao čovjek, unoseći 10 kg ove vrste ribe godišnje [70].

5.3.2. Rezultati i diskusija

5.3.2.1. Zemljište i pijesak

Aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima zemljišta dati su u tabeli 5.3.1, a u uzorcima pijeska – u tabeli 5.3.2. Rezultati statističkih analiza vezanih za koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u različitim uzorcima, predstavljeni su u tabeli 5.3.3.

Poređenja rezultata za zemljište iz Kotora i pijesak iz Petrovca (dobijenih pomoću HPGe i PRIPJAT-2M spektrometra) pokazuju njihovu dobru saglasnost (tabela 5.3.4), iako je vrijeme mjerenja u slučaju spektrometra PRIPJAT-2M bilo značajno kraće.

Tabela 5.3.3. Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u različitim uzorcima.

Uzorak	Broj uzoraka (mjerjenja)	Minimalna aktivnost ^{226}Ra [Bq kg ⁻¹]	Maksimalna aktivnost ^{226}Ra [Bq kg ⁻¹]	Aritmetička sredina [Bq kg ⁻¹]	Standardna devijacija [Bq kg ⁻¹]	Medijana [Bq kg ⁻¹]
Zemljište	10	12.87	210.31	39.81	60.10	23.11
Pijesak	20	1.41	16.56	7.12	3.47	6.92
Voda	13*	0.08**	0.15**	0.10**	0.02**	0.1**
<i>L. aurata</i>	5	0.58	1.97	1.28	0.66	1.29

*Ra je detektovan u 13 (od ukupno 16) uzoraka. ** U Bq L⁻¹.

Tabela 5.3.4. Rezultati dobijeni pomoću PRIPJAT-2M i HPGe spektrometra.

Uzorak	PRIPJAT Živo vrijeme mjerjenja [s]	PRIPJAT Aktivnost ^{226}Ra [Bq kg ⁻¹]	HPGe Živo vrijeme mjerjenja [s]	HPGe Aktivnost ^{226}Ra [Bq kg ⁻¹]
Zemljište – Kotor	1929.4	22.30±0.74	89 363.8	24.11±0.56
Pijesak – Petrovac	1985.6	5.93±0.21	73 150.32	5.47±0.19
Morska voda Mala plaža*	10 000	0.10±0.02**	81 680	< 0.13**
Morska voda - Dobrota***	10 000	0.04±0.02**	82 740	0.04±0.01**
Morska voda - Sveti Stasije***	10 000	-	84 452	< 0.02**
Morska trava I	4951.8	4.08±0.58	68 940	4.10±0.60
Sediment I	1997.8	9.57±1.01	126 784	9.03 ±0.43
Mulj sa detritusom	1941.4	10.35±1.66	62 900	11.07±0.56
<i>L. aurata</i> I	4977.9	0.58±0.11	72 009	0.62±0.09

* 1 L vode bez bilo kakve pripreme. ** U Bq L⁻¹. *** Voda uparena do 1 L.

Ovdje predstavljeni rezultati za koncentraciju aktivnosti radijuma u zemljištu pokazuju medijanu nižu od srednje na globalnom nivou. S druge strane, maksimalna izmjerena aktivnost (u uzorku iz Tivta) značajno je veća. Ipak, izmjerene aktivnosti su u opsegu rezultata dobijenih za druge zemlje u južnoj Evropi (Hrvatska, Kipar, Grčka, Portugalija, Slovenija, Španija – sa srednjim koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra od 54 Bq kg⁻¹, 17 Bq kg⁻¹, 25 Bq kg⁻¹, 44 Bq kg⁻¹, 41 Bq kg⁻¹, 32 Bq kg⁻¹, respektivno; i opsegom rezultata individualnih mjerjenja: (21-77) Bq kg⁻¹, (0-120) Bq kg⁻¹, (1-240) Bq kg⁻¹, (8-65) Bq kg⁻¹, (2-210) Bq kg⁻¹, (6-50) Bq kg⁻¹, respektivno) [71].

Izmjerene aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima pijeska sa plaža niže su od onih koje su dobijene za neke druge regione (na primjer, 21.1 Bq kg⁻¹ – u uzorcima sa obale Crvenog mora u Egiptu

[74]), dok su neke od njih uporedive sa, na primjer, 7.6 Bq kg^{-1} do 17.2 Bq kg^{-1} – u uzorcima pijeska iz *Rizhao* u Kini [75].

5.3.2.2. Uzorci iz južnog Jadranskog mora – voda, sediment, morska trava, mulj sa detritusom i *L. aurata*

Rezultati mjerenja uzoraka iz južnog Jadranskog mora, dobijeni pomoću spektrometra PRIPJAT-2M, dati su u tabelama 5.3.5, 5.3.6 i 5.3.7.

Tabela 5.3.5. Rezultati mjerenja uzoraka morske vode.

Uzorak vode, 1 L	$A(^{226}\text{Ra})$ [Bq]
Velika plaža	0.09 ± 0.03
Mala plaža	0.10 ± 0.02
Utjeha	0.09 ± 0.03
Bar – luka	–
Šušanj	0.09 ± 0.03
Sutomore	0.10 ± 0.04
Canj	0.11 ± 0.02
Petrovac	–
Kamenovo	0.15 ± 0.02
Pržno	0.08 ± 0.01
Jaz	0.08 ± 0.02
Plavi horizonti	0.13 ± 0.01
Tivat – grad	0.10 ± 0.03
Kotor	0.13 ± 0.05
Risan	0.11 ± 0.01
Herceg Novi	–

U 13 (od 16) uzoraka vode ^{226}Ra je bio iznad minimalne detektibilne aktivnosti (tabela 5.3.5). Voda sa Male plaže (1 L) mjerena je pomoću oba spektrometra (tabela 5.3.4), ali ^{226}Ra nije detektovan HPGe spektrometrom (bio je ispod minimalne detektibilne aktivnosti koja je izračunata koristeći 3MDA metod). S druge strane, poređenja rezultata dobijenih pomoću dva spektrometra, za uzorke vode iz Dobrote i Svetog Stasija, koji su bili pripremljeni na odgovarajući način (za poluprovodničku γ -spektrometriju), pokazuju njihovu dobru saglasnost (tabela 5.3.4).

Uopšte govoreći, mjerenja su pokazala relativno nizak nivo aktivnosti ^{226}Ra u vodi južnog Jadranskog mora, osobito u uzorcima koji su uzeti sa dubine od oko (6.5 – 7) m. Dobijeni

rezultati su u saglasnosti sa, na primjer, rezultatima dobijenim za Arapsko more ($< 0.4 \text{ Bq L}^{-1}$) [65]. I neka prethodna istraživanja takode su pokazala nedostatak porasta ^{230}Th (izotopa iz niza ^{238}U , koji se raspada do ^{226}Ra) sa dubinom [76].

Rezultati mjerenja aktivnosti ^{226}Ra (PRIPJAT-2M) u sedimentu, morskoj travi i mulju sa detritusom, dati su u tabeli 5.3.6, dok je poređenje sa rezultatima dobijenim pomoću HPGe spektrometra dato prethodno, u tabeli 5.3.4 (i ono pokazuje njihovu dobru saglasnost, uz napomenu da za mjerenja pomoću PRIPJAT-2M spektrometra nije potrebno prethodno pripremati uzorke).

Tabela 5.3.6. ^{226}Ra u sedimentu, morskoj travi i mulju sa detritusom.

Uzorak	Masa [kg]	$A(^{226}\text{Ra})$ [Bq]	$A_L(^{226}\text{Ra})$ [Bq kg $^{-1}$]
Sediment 1	1.339	12.82 ± 1.35	9.57 ± 1.01
Sediment 2	1.390	9.97 ± 0.97	7.17 ± 0.69
Morska trava 1	0.120	0.49 ± 0.07	4.08 ± 0.58
Morska trava 2	0.100	0.18 ± 0.02	1.80 ± 0.21
Mulj sa detritusom	1.078	11.16 ± 1.34	10.35 ± 1.66

Istovremeno, izmjerene aktivnosti u dva uzorka površinskog sedimenta pokazuju nizak nivo radijuma, niži nego, na primjer, u slučaju Pacifika (21.4 Bq kg^{-1} [77]), Irskog mora (23.9 Bq kg^{-1} [78]) ili Indijskog okeana (13.8 Bq kg^{-1} [79]).

Dobijeni rezultati sugerišu da je nastavak istraživanja neophodan, uključujući i uzorkovanje sedimenta, morske trave i mulja sa detritusom (i drugih uzoraka različite prirode) duž obale Crne Gore, da bi se dobila kompletnija slika nivoa aktivnosti ^{226}Ra u ovoj marinskoj životnoj sredini.

Važno je istaći da su ovo prva mjerenja ^{226}Ra u jedinkama cipola *L. aurata*, i rezultati su pokazali da je nivo njegove aktivnosti u ovoj vrsti ribe relativno nizak ($< 2 \text{ Bq kg}^{-1}$ – tabela 5.3.7). Ipak, izmjerene aktivnosti su uglavnom veće od onih koje su pronađene u nekim drugim vrstama riba (na primjer, u cijelim jedinkama ribe iz *Puget Sound, Washington, USA*, maksimalna izmjerena aktivnost radijuma bila je 0.75 Bq kg^{-1} [80]).

Minimalna vrijednost aktivnosti ^{226}Ra (0.12 Bq) detektovana je u uzorku 2, a maksimalna (0.34 Bq) – u uzorku 3. Iako je datom prilikom mjereno samo pet uzoraka, izračunate su aritmetička sredina, standardna devijacija i medijana (0.21 Bq , 0.08 Bq i 0.2 Bq , respektivno).

Tabela 5.3.7. ^{226}Ra u cipolu *L. aurata* iz južnog Jadranskog mora.

<i>L. aurata</i>	Dužina jedinke [cm]	Masa (svježeg uzorka) [kg]	Zivo vrijeme mjerenja [s]	$A(^{226}\text{Ra})$ [Bq]	$A_k(^{226}\text{Ra})$ [Bq kg ⁻¹]
1	35.6	0.258	4977.9	0.15±0.03	0.58±0.11
2	29.6	0.182	4969.9	0.12±0.01	0.66±0.05
3	29.5	0.194	4971.6	0.34±0.08	1.97±0.46
4	30.1	0.185	4978.5	0.24±0.02	1.29±0.11
5	23.5	0.105	4972.8	0.20±0.03	1.90±0.28

Kao što je prethodno rečeno, uzorak 1 mjeren je pomoću spektrometra PRIPJAT-2M bez bilo kakve pripreme (i uspostavljanja ravnoteže između radijuma i njegovih potomaka), tako da je određena aktivnost ^{214}Bi (0.43 ± 0.09) Bq kg⁻¹. Isti uzorak je nakon toga homogenizovan, hermetički zatvoren u Marineli posudu i (nakon uspostavljanja pomenute ravnoteže) mjeren pomoću HPGe i ovog spektrometra (dobijeni rezultati su predstavljeni prethodno, u tabeli 5.3.4).

U slučaju uzoraka 6 i 7, aktivnost ^{214}Bi bila je (0.33 ± 0.03) i (0.22 ± 0.05) Bq, tj., (1.43 ± 0.13) i (0.83 ± 0.18) Bq kg⁻¹, respektivno. U mišiću uzorka 6 (masa svježeg uzorka – 0.0334 kg), aktivnost ^{226}Ra bila je (2.39 ± 0.37) Bq kg⁻¹, dok je u mišiću uzorka 7 (masa svježeg uzorka – 0.0374 kg) – (2.14 ± 0.87) Bq kg⁻¹, što znači srednju koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra oko 2.3 Bq kg⁻¹. Ova koncentracija radijumske aktivnosti veća je nego u slučaju nekih drugih vrsta riba (0.057 Bq kg⁻¹ – u mesu riba iz Baltičkog mora [81], ili 0.26 Bq kg⁻¹ – u mišiću ribe iz *Cauvery River* – Indija [82], i 1.4 Bq kg⁻¹ – u mišiću haringe iz *Quirke Lake* u Kanadi [83]). S druge strane, u nekim organima (osobito u kostima) drugih riba i drugih akvatičnih (ili semi-akvatičnih) vrsta, detektovane su značajno veće koncentracije aktivnosti radijuma (na primjer, 466.6 Bq kg⁻¹ – u vidri *Lutra canadensis* [84]).

5.4. Razmatranje mogućnosti detekcije drugih produkata raspada ^{238}U

U poglavlju 2 dat je pregled prirodnih nizova, a u tabeli 2.1.2 dati su intenzivni γ -zruci koji bi se mogli iskoristiti za određivanje aktivnosti ^{238}U i njegovih potomaka.

Pošto je izotop radona (^{222}Rn) u gasovitom stanju, niz ^{238}U bi se (uslovno govoreći) mogao podijeliti na dva dijela i to: prvi dio koji čine izotopi od ^{238}U do ^{226}Ra , i drugi – koji čine izotopi od ^{226}Ra do ^{206}Pb .

S obzirom da je drugi dio niza detaljnije razmatran prethodno, kako u poglavlju 2, tako i u poglavlju 5, trebalo bi posebno/dodatno razmotriti mogućnost detekcije ^{234}Th , ^{234}Pa , ^{234}U i ^{230}Th (radionuklida iz prvog dijela niza).

Jezgro ^{234}Th nastaje (α) raspadom ^{238}U , deekscituje uz emisiju dva γ -zraka, niskih energija i veoma niskih relativnih intenziteta, transformišući se zatim (β^- -raspadom) u jezgro protaktinijuma. Zruci koji prate raspad ^{234}Th (slika 2.1.2) su energija značajno ispod 200 keV (najintenzivniji je zrak energije 63.29 keV, čiji je intenzitet 4.8 %) i, iako postoje dvostruke, trostruke i četvorostroke kaskade, nije ih moguće detektovati spektrometrom tipa PRIPJAT.

Jezgro ^{234}U , nastalo transformacijom ^{234}Pa i $^{234\text{m}}\text{Pa}$, deekscituje uz emisiju velikog broja γ -zraka (513). Dva zraka koja prate β^- -raspad ^{234}Pa (nastaje od $^{234\text{m}}\text{Pa}$, s vjerovatnoćom koja iznosi samo 0.16 %) imaju relativni intenzitet veći od 10 % (tabela 2.1.2, poglavlje 2 – 2.1), a detekcija jednog od njih (946 keV) mogla bi biti predmet budućih istraživanja (kao i detekcija zraka energije 883.24 keV i intenziteta 9.6 %). S druge strane, intenzivniji gama zruci koji prate raspad $^{234\text{m}}\text{Pa}$ navedeni su u tabeli 5.4.1.

Tabela 5.4.1. Intenzivniji gama zruci koji prate raspad $^{234\text{m}}\text{Pa}$ u ^{234}U .

Energija zraka [keV]	I [%]
1001.03	0.837
766.38	0.294
742.81	0.080

Što se jezgra ^{230}Th tiče, kako je to naglašeno u poglavlju 2, tokom njegove deekscitacije (slika 2.1.3) emituje se ukupno devet zraka, od kojih zrak energije 53.2 keV ima najveći relativni intenzitet (0.123 %) – što znači da njegova detekcija spektrometrom PRIPJAT-2M nije moguća.

Zbog intenziteta koji su reda veličine 10^{-6} %, ni ostali zraci (iako neki energija većih od 200 keV), nijesu pogodni za detekciju spektrometrom PRIPJAT-2M (s njegovim trenutnim karakteristikama).

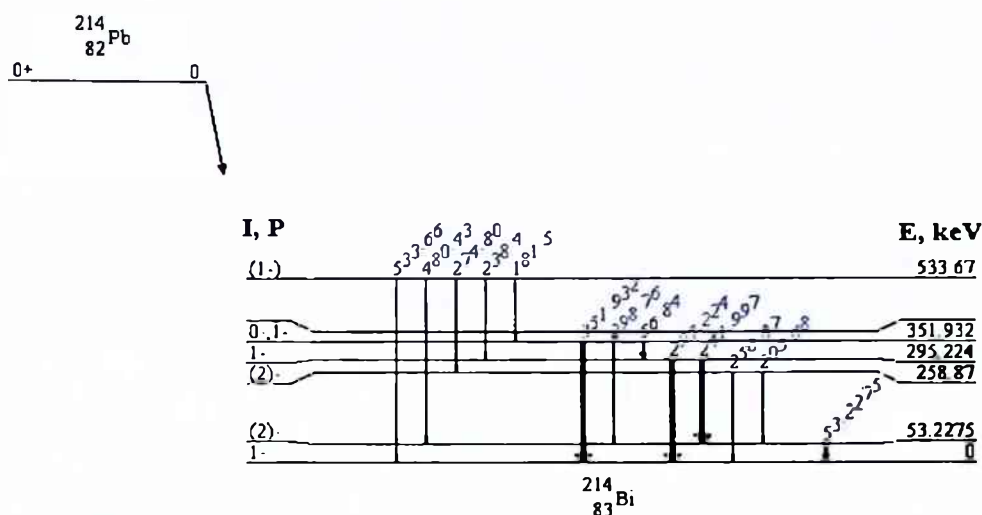
Iako su energije zraka koji prate raspad ^{230}Th do ^{226}Ra (slika 2.1.4) do 620 keV, i u šemi raspada se uočavaju kaskade različitih višestrukosti (do četvorostrukih), najveći intenzitet ima zrak energije 67.67 keV (zadnji prelaz – u osnovno stanje), ali on iznosi svega 0.377 %.

Predmet budućih istraživanja (i s tim u vezi daljih usavršavanja sistema) bi moglo biti razmatranje mogućnosti registracije nekih od navedenih zraka (najprije teorijski, a zatim eksperimentalno), u prvom redu iz raspada protaktinijuma (946 keV – 13.4 %, i drugi, manje intenzivni zraci). Na primjer, (s obzirom na omogući energetski opseg, i druge do sada uradene analize), potrebno je dalje razmatrati mogućnost detekcije gama zraka energije 1001.03 keV (tabela 5.4.1). Tim prije što se fotopik koji kreiraju zraci navedene energije u standardnoj (HPGe) γ -spektrometriji koristi za mjerenje aktivnosti ^{238}U (tj. aktivnosti izotopa iz njegovog niza). Osim toga, tj. osim zraka koji prate raspad protaktinijuma, u standardnoj γ -spektrometriji (uz zrake koji prate raspad ^{214}Bi u ^{214}Po , razmatrane prethodno – u poglavlju 5), najčešće se koriste zraci koji prate β^- -raspad ^{214}Pb u ^{214}Bi [85]. U tabeli 5.4.2 navedeni su najintenzivniji među njima, dok je šema raspada predstavljena na slici 5.4.1.

Tabela 5.4.2. Intenzivni gama zraci koji prate raspad ^{214}Pb u ^{214}Bi .

E_γ [keV]	I [%]
351.932	37.6
295.224	19.3
241.997	7.43
53.2275	1.2
785.96	1.07

Dakle, što se tiče drugog dijela niza (nakon gasovitog radona), radionuklidi čiji gama zraci se lako detektuju (standardnom, poluprovodničkom γ -spektrometrijom) su ^{214}Pb i ^{214}Bi .



Slika 5.4.1. Dio šeme raspada ^{214}Pb .

Sa slike 5.4.1, a razmatrajući moguće koincidencije, vidi se da se ne radi o kaskadnim prelazima (osim kada se govori o zraku energije 241.997 keV, pri čemu je drugi gama zrak onaj energije 53.2275 keV i intenziteta 1.2 %), što znači da u budućim istraživanjima detekciju treba razmatrati u integralnom i nekoincidentnom režimu rada spektrometra PRIPJAT-2M.

U prilog tome, kao što je već rečeno u poglavlju 4, region I na slici 4.2.1 – vidljiv u integralnom i nekoincidentnom spektru, najvećim dijelom predstavlja upravo (*preklopljene*) pikove na energijama 351.932 keV (37.6 %), 295.224 keV (19.3 %) i 241.997 keV (7.43 %). Odnosno, iako se dominantno radi o registraciji fotona energije 351.932 keV, moglo bi se reći da će region dijelom puniti i (makar) foton energije 295.224 keV.

Za detekciju ovih fotona, dalje bi trebalo razmatrati opseg od 200 keV do 3000 keV (na primjer), uz sve potrebne analize i provjere, kao i odgovarajuće proračune i korekcije. Takođe, uz analize vezane za eventualnu detekciju zraka energije 785.96 keV.

6. KOINCIDENTNI METOD MJERENJA TORIJUMA-232

U okviru magistarskog rada koji je na Prirodno-matematičkom fakultetu Univerziteta Crne Gore odbranjen 2007. godine [37], započet je razvoj koincidentnog metoda mjerenja ^{232}Th i njegovih produkata raspada, korišćenjem režima izdvojenih dvostrukih koincidencija i energetskog opsega od 200 keV do 2000 keV. Još ranije je započela modifikacija sistema PRIPJAT (i softvera PRIP). U istraživanjima u okviru ove doktorske disertacije razmatrane su i ostale koincidencije, a nakon dodatnih (različitih) analiza (dijelom predstavljenih u poglavlju 4), metod dvostrukih koincidencija je u potpunosti razvijen, a zatim i korišćen u radioekološkim istraživanjima.

6.1. Selekcija kaskadnih prelaza i koincidencija

Većina raspada u torijumskom nizu praćena je emisijom γ -zraka niskih relativnih intenziteta (poglavlje 2). Alfa raspad ^{232}Th do ^{228}Ra , ^{228}Th do ^{224}Ra , ^{224}Ra do ^{220}Rn , ^{220}Rn do ^{216}Po , ^{216}Po do ^{212}Pb , kao i β^- -raspad ^{228}Ra do ^{228}Ac , praćeni su emisijom γ -zraka čiji su relativni intenziteti manji od 5 %. Postoji 12 γ -zraka koji prate β^- -raspad ^{212}Pb do ^{212}Bi , ali samo 2 imaju relativni intenzitet veći od 1 % (238.632 keV – 43.3% i 300.087 keV – 3.28%). Dodatno, ^{212}Bi se raspada na dva načina: 64.06 % u ^{212}Po (β^- -raspad) i 35.94% u ^{208}Tl (α -raspad), ali nijedan prateći γ -zrak, a ukupno ih je 26, nema relativni intenzitet veći od 10 %. Najintenzivniji među njima ima energiju 727.33 keV i relativni intenzitet 6.58 %.

Važno je istaći da se, iako γ -zranci energije 238.632 keV imaju relativno veliki intenzitet, ovaj pik ne može iskoristiti za analizu, pošto *leži* na donjoj granici detekcije, i dijelom je odsječen.

Pažljivo posmatranje i analiziranje šema raspada pokazalo je da, u nizu raspada ^{232}Th , intenzivne γ -linije javljaju se samo u raspadima ^{228}Ac i ^{208}Tl . Ipak, postoji tek nekoliko gama kaskada sa prelazima takvim da su im i energije i relativni intenziteti pogodni za laku detekciju pomoću NaI(Tl) detektora i spektrometra PRIPJAT-2M (nivoi koji leže blizu detekcionog praga spektrometra moraju biti isključeni). Svi oni prate β^- -raspad ^{208}Tl .

Među svim γ -prelazima koji prate β^- -raspad ^{228}Ac (poglavlje 2), pri deekscitaciji ^{228}Th , najintenzivniji prelaz odgovara energiji 911 keV (25.8 %), dok ostali imaju značajno niže relativne intenzitete. Gama zraci sa ovom energijom se najčešće koriste za određivanje aktivnosti torijuma (na primjer, standardna procedura pri detekciji torijuma pomoću poluprovodničkih detektora). Registracija γ -zraka energije 911 keV spektrometrom PRIPJAT-2M moguća je u dva režima rada — integralnom i nekoincidentnom.

Beta minus raspad ^{208}Tl u ^{208}Pb praćen je emisijom 29 γ -zraka (najintenzivniji su: 2614.533 keV, 583.191 keV, 510.77 keV, 860.564 keV, 277.351 keV i 763.13 keV), i moguća je njihova određena detekcija u koincidentnim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M (kako slijedi iz početnih istraživanja predstavljenih u poglavlju 4).

Među mnoštvom dvostrukih, trostrukih i četvorostrukih kaskada, intenzivne su prikazane na slici 6.1.1. Najintenzivnije dvostruke kaskade su [86]:

583.191 keV (84.5 %) + 2614.533 keV (99 %),

860.564 keV (12.42 %) + 2614.533 keV;

trostruke:

510.77 keV (22.6 %) + 583.191 keV + 2614.533 keV;

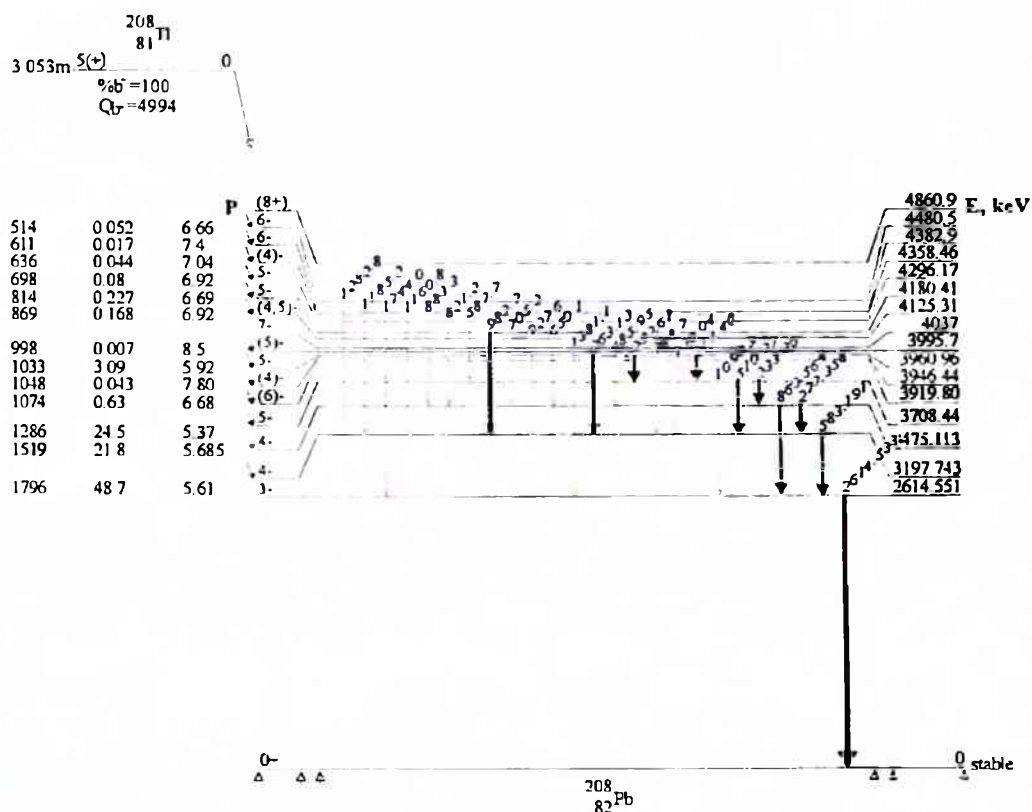
277.351 keV (6.31 %) + 583.191 keV + 2614.533;

i četvorostruke:

252.61 keV (0.69 %) + 510.77 keV + 583.191 keV + 2614.533 keV;

211.40 keV (0.178 %) + 510.77 keV + 583.191 keV + 2614.533 keV.

U početku razvoja koincidentnog metoda za mjerenje torijuma pomoću spektrometra PRIPJAT-2M [37], korišćen je energetski opseg od 200 keV do 2000 keV, a aktivnost torijuma određivana je preko fotopika na energiji 583 keV u spektru dvostrukih koincidencija. Ovo stoga što u mnogobrojnim gama kaskadama koje prate β^- -raspad ^{208}Tl jedan prelaz ima energiju 583.191 keV. Kao što je rečeno u poglavlju 3 (3.5.3), ovaj fotopik nije razdvojen od fotopika na energiji 510.77 keV, ali je doprinos γ -zraka energije 583.191 keV značajno veći.



Slika 6.1.1. Gama raspad ^{208}Pb , sa naznačenim intenzivnim kaskadnim prelazima.

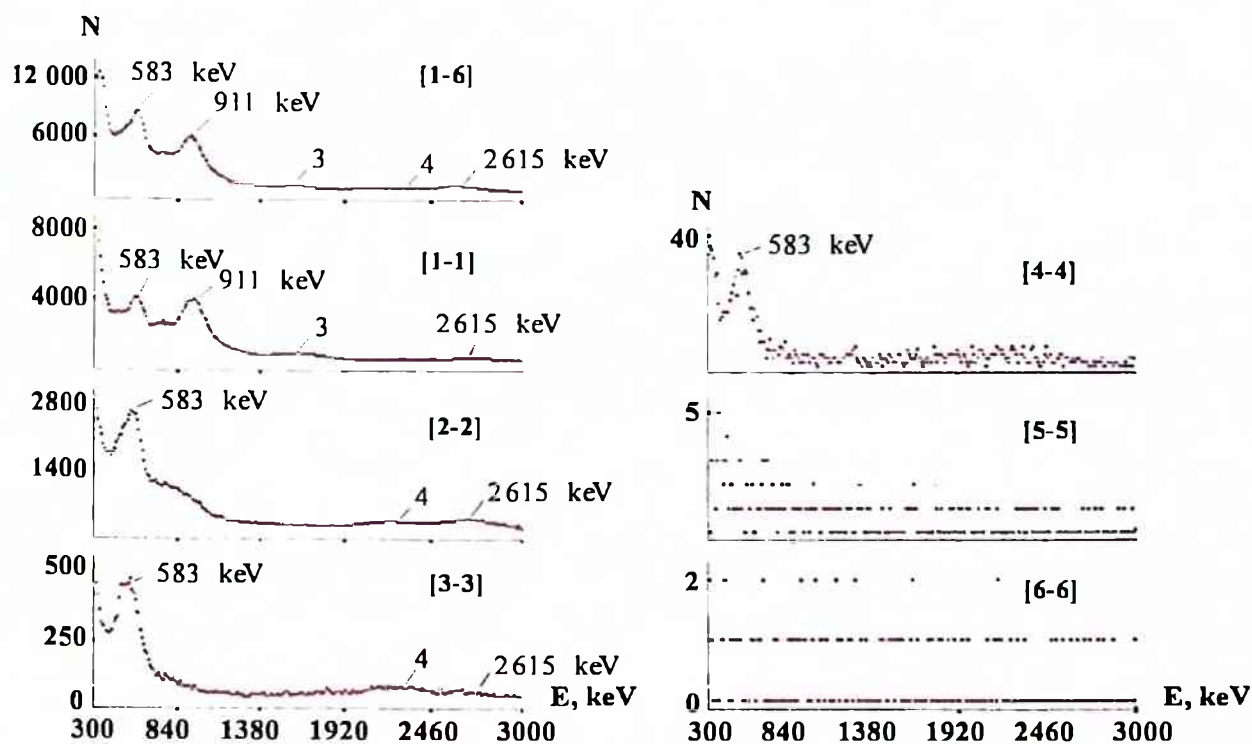
Nakon konačne modifikacije sistema, postalo je moguće da se izabere energetski opseg od 300 keV do 3000 keV, i tako odredi aktivnost torijuma preko fotopika na energiji 2615 keV (tj. 2614.533 keV). Ovaj γ -zrak (emitovan sa pobuđenog nivoa energije 2614.551 keV – za prelaz u osnovno stanje ^{208}Pb) ima veću energiju nego svi ostali u torijumskom nizu.

Stoga, ako je torijum u radioaktivnoj ravnoteži sa potomcima, koristeći spektrometar PRIPJAT-2M u energetskom opsegu od 300 keV do 3000 keV, aktivnost torijuma, kao i aktivnost njegovih produkata raspada, može se odrediti preko fotopika na energiji 911 keV u integralnom i nekoincidentnom spektru (režimu rada), i preko fotopikova na energijama 583 keV i 2615 keV – u integralnom, nekoincidentnom i u spektru koincidencija.

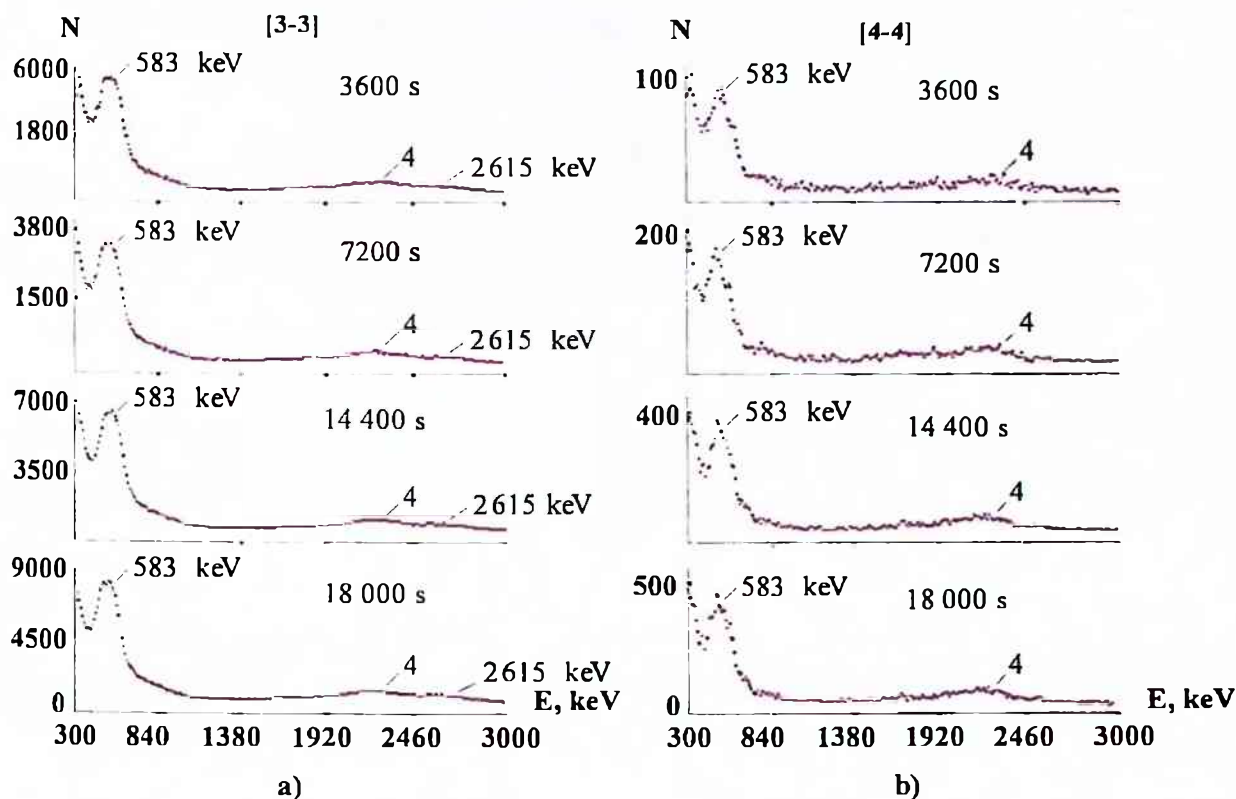
6.2. Efikasnost detekcije i minimalna detektibilna aktivnost ^{232}Th

Izvor torijuma poznate aktivnosti (opisan u poglavlju 4), smješten je u centar detekcione komore spektrometra PRIPJAT-2M, i sniman (tokom različitih vremena mjerenja) u različitim režimima rada: integralnom, nekoincidentnom i koincidentnim režimima višestrukosti od 2 do 6. Energetski opseg bio je od 300 keV do 3000 keV (od 2. do 255. kanala).

Spektri dobijeni za 1000 s realnog vremena mjerenja (živo vrijeme: 764.2 s – u integralnom režimu rada i 723.4 s – u ostalim režimima), nakon oduzimanja odgovarajućeg fona, prikazani su na slici 6.2.1, dok su spektri trostrukih i četvostrukih koincidencija, dobijeni tokom različitih realnih vremena mjerenja – 3600 s, 7200 s, 14 400 s, 18 000 s (živa vremena: 2604.5 s, 5207.7 s, 11 181 s, 13 783.1 s, respektivno), prikazani na slici 6.2.2 [86].



Slika 6.2.1. Sumarni spektri izvora ^{232}Th u različitim režimima rada (1000 s realnog vremena).



Slika 6.2.2. Sumarni spektri za različita realna vremena mjerenja: trostruke koincidencije (a), četvostruke koincidencije (b).

Treba napomenuti da su ukupne brzine brojanja fona u energetsom opsegu (300-3000) keV, u različitim režimima rada (realno vrijeme mjerenja je 1000 s, a živo vrijeme mjerenja 992.3 s – u integralnom režimu rada, a 991.7 s – u ostalim režimima rada), navedene u poglavlju 3. U integralnom i nekoincidentnom režimu rada brzine brojanja fona bile su značajno veće od brzina brojanja u koincidentnim režimima.

Kao što se može vidjeti na slikama 6.2.1 i 6.2.2, fotopik na energiji 583 keV najizraženiji je u integralnom i režimu dvostrukih, trostrukih i četvostrukih koincidencija, dok petostruke i šestostruke koincidencije sa ovim gama zrakom nijesu registrovane (tokom navedenih vremena mjerenja). Fotopik na energiji 2615 keV može se vidjeti u integralnom i nekoincidentnom spektru, kao i u spektrima dvostrukih i trostrukih koincidencija, dok se fotopik na energiji od 911 keV uočava u integralnom i nekoincidentnom spektru (gdje je izraženiji nego fotopik na energiji 583 keV).

Oblast označena brojem 3 (pominjana u poglavlju 4, gdje je bila označena brojem 4) u integralnom i nekoincidentnom spektru (centroida je na oko 1600 keV) uglavnom predstavlja γ -zrake ^{228}Ac , energija 1588.19 keV (3.22 %) i 1630.627 keV (1.51 %), koji se *preklapaju* i čine jedan pik.

Oblast ovdje označena brojem 4 (u poglavlju 4 bila je označena brojem 5), predstavlja region od oko 1980 keV do oko 2350 keV, sa centroidom na oko 2200 keV. Pojavljuje se u spektrima u integralnom režimu, režimu dvostrukih, trostrukih i četvorostrukih koincidencija. Dok je ovaj pik u režimu dvostrukih koincidencija minoran, u spektru trostrukih koincidencija je više izražen nego fotopik na energiji 2615 keV (jasno se može vidjeti kada se spektar zumira; na primjer, kada se posmatra samo oblast ograničena 95. i 255. kanalom). Iako se fotoni sa sličnim energijama pojavljuju u lancu raspada torijuma (svi oni prate β^- -raspad ^{228}Ac), oni imaju vrlo niske relativne intenzitete. Dakle, najvjerovatnije, odbroji u ovoj oblasti potiču od Kompton rasijanja fotona energije 2615 keV i sumarnih pikova kaskadnih γ -zraka (^{228}Th i ^{208}Pb). Odnosi između brzina brojanja u spektru izvora torijuma i u spektru fona (u istoj energetskej oblasti), dobijeni analizama spektara prikazanih na slikama 6.2.1 i 6.2.2, dati su u tabeli 6.2.1 [86].

Tabela 6.2.1. Odnosi brzina brojanja (izvor sniman 1000 s).

Režim rada	Odnos ukupnih brzina brojanja: izvor/fon	Odnos brzina brojanja u oblasti 583 keV: izvor/fon	Odnos brzina brojanja u oblasti 911 keV: izvor/fon	Odnos brzina brojanja u oblasti 2615 keV: izvor/fon	Odnos brzina brojanja u oblasti 3: izvor/fon	Odnos brzina brojanja u oblasti 4: izvor/fon
[1-6]	18.89	18.99	34.40	27.64	11.69	16.38
[1-1]	13.67	13.58	26.49	17.06	9.84	–
[2-2]	59.28	77.22	–	86.60	–	61.76
[3-3]	19.54	26.20	–	25.64*	–	30.66*
[4-4]	2.46	3.02**	–	–	–	4.2***
[5-5]	0.71	–	–	–	–	–
[6-6]	0.73	–	–	–	–	–

* Dobijeno iz spektra koji je sniman 7200 s. ** Dobijeno iz spektra koji je sniman 3600 s. *** Dobijeno iz spektra koji je sniman 14 400 s.

Konačno, efikasnosti detekcije (dobijene nakon korekcija, tj. nakon što je oduzet fon i izvršene korekcije na Kompton i *suming* efekat; i koristeći mogućnosti softvera PRIP) u različitim režimima rada, kao i minimalne detektibilne aktivnosti ^{232}Th procijenjene pomoću formule (4.1), date su u tabeli 6.2.2 [86].

Tabela 6.2.2. Efikasnost detekcije fotopikova (ϵ) i minimalna detektibilna aktivnost (A_{\min}) na nivou povjerenja $P = 0.95$ (dobijeno iz spektra snimanog 1000 s; živo vrijeme snimanja: izvor – 764.2 s u integralnom, i 723.4 s u ostalim režimima rada, a fon – 992.3 s u integralnom, i 991.7 s u ostalim režimima rada).

E_γ [keV]	Režim rada	N_b [s ⁻¹]	ϵ	A_{\min} [Bq]
583 keV	[1-6]	10.08	0.226	0.89
	[1-1]	5.08	0.081	1.77
	[2-2]	0.91	0.082	0.74
	[3-3]	0.44	0.013	3.24
	[4-4]	0.20*	0.0007*	21.04
911 keV	[1-6]	4.44	0.592	0.23
	[1-1]	4.05	0.415	0.31
2615 keV	[1-6]	1.24	0.034	2.08
	[1-1]	0.94	0.016	3.85
	[2-2]	0.16	0.013	1.95
	[3-3]	0.058**	0.0015**	3.77

* Dobijeno iz spektra snimanog 3600 s (živo vrijeme snimanja: izvor – 2604.5 s, fon – 3570.6 s). ** Dobijeno iz spektra snimanog 7200 s (živo vrijeme snimanja: izvor – 5207.7 s, fon – 7200)

Iz analiza dobijenih spektara i podataka datih u tabeli 6.2.1 i tabeli 6.2.2 slijedi:

- o da je integralni režim rada optimalan za određivanje aktivnosti torijuma preko fotopika na energiji 911 keV;
- o da je režim dvostrukih koincidencija najbolji izbor za određivanje aktivnosti torijuma preko fotopikova na energijama od 583 i 2615 keV (iako se i integralni i nekoincidentni režim mogu koristiti za njihovu detekciju, a čak i režim trostrukih koincidencija, posebno u slučaju fotopika na energiji 583 keV).

Za realno vrijeme mjerenja 2600 s, minimalna detektibilna aktivnost iznosi 1.12 Bq u nekoincidentnom i 0.73 Bq u režimu dvostrukih koincidencija (preko fotopika na energiji 583

keV), 0.18 Bq u nekoincidentnom režimu (preko fotopika na energiji 911 keV), 2.02 Bq u nekoincidentnom i 1.82 Bq u režimu dvostrukih koincidencija (preko fotopika na energiji 2615 keV).⁴⁰

6.2.1. Određivanje aktivnosti ²³²Th u uzorku zemljišta

Uzorak zemljišta uzet je u blizini aerodroma Podgorica⁴¹. Ova lokacija je izabrana zato što je zemljište na tom mjestu pomiješano sa ostacima spaljenih avionskih motora, koji u svom sastavu imaju leguru koja sadrži torijum (tj. sadržaj torijuma značajno je veći nego sadržaj ostalih radionuklida). Uzorak mase 0.591 kg je hermetički zatvoren u Marineli posudu zapremine 0.5 L, visine 9.9 cm i unutrašnjeg prečnika 6 cm. Izvršeno je mjerenje tokom 896.1 s – u integralnom, i 896.4 s – u nekoincidentnom i koincidentnim režimima rada. Rezultati mjerenja su prikazani u tabeli 6.2.3 i na slici 6.2.3 [86].

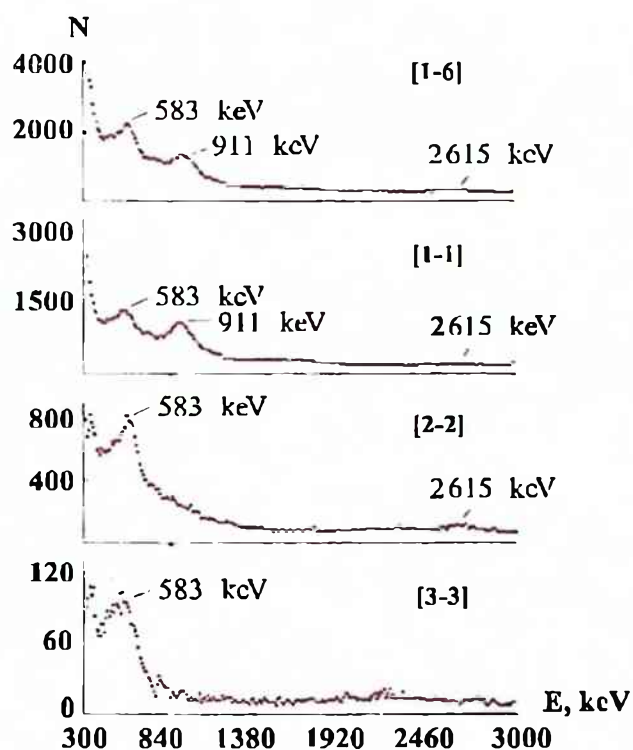
Radi poređenja, isti uzorak je mjereno pomoću HPGe spektrometra (GEM – 30185-S; efikasnost 35 %, FWHM = 1.72 keV na 1.33 MeV ⁶⁰Co, *Peak shape* = 1.89, FWHM = 700 eV na 122 keV za ⁵⁷Co). Rezultat (aktivnost torijuma određena preko fotopika na energiji 911 keV) je (226.96±7.37) Bq, odnosno (384.03±12.47) Bq kg⁻¹, i pokazuje dobro slaganje sa rezultatima dobijenim spektrometrom PRIPJAT-2M (razlika u rezultatima manja je od 7 %, dok je vrijeme mjerenja HPGe spektrometrom bilo 49 831.04 s).

⁴⁰Pri početnim analizama (poglavlje 4), za režime [1-6], [1-1], [2-2] i [3-3], realno vrijeme mjerenja 1000 s i energetski opseg (300-3000) keV, minimalna detektibilna aktivnost torijuma preko fotopika na energiji 583 keV, procijenjena je na 0.89 Bq, 1.4 Bq, 0.83 Bq i 3.96 Bq, respektivno; nešto kasnije, za 500 s mjerenja, to je bilo 1.37 Bq, 2.85 Bq, 1.31 Bq i 5.3 Bq, respektivno; preko fotopika na energiji 911 keV, u integralnom i nekoincidentnom režimu mjerenja, za vrijeme 1000 s i energetski opseg (300-3000) keV, minimalne detektibilne aktivnosti bile su 0.25 Bq i 0.27 Bq, respektivno (za 500 s: 0.44 Bq i 0.48 Bq, respektivno); preko fotopika na energiji 2615 keV, u režimima [1-6], [1-1] i [2-2] i energetskom opsegu od 300 keV do 3000 keV, za 1000 s: 2.01 Bq, 2.92 Bq i 1.96 Bq, respektivno (za 500 s: 3.01 Bq, 4.87 Bq i 3 Bq, respektivno).

⁴¹ I u okviru pominjanog magistarskog rada [37], kada je aktivnost torijuma određivana preko fotopika na energiji 583 keV, i uz korišćenje energetskog opsega (200-2000) keV, za testiranje metoda bili su izabrani uzorci sa visokim sadržajem/aktivnošću torijuma, ali su pri tome provjeravani prisustvo radijuma (u spektru dvostrukih koincidencija, ali i u preostala dva spektra – integralnom i nekoincidentnom) i cezijuma (u integralnom i nekoincidentnom spektru) – na osnovu pikova i regiona koji se javljaju u energetskom opsegu od 200 keV i 2000 keV. Kako se, nakon konačnog razvoja metoda, vrši mjerenje u uzorcima iz životne sredine, koje karakteriše sadržaj (aktivnost) radijuma, torijuma i cezijuma, biće objašnjeno u sljedećim poglavljima. Svi rezultati primjene metoda (tj. za uzorke iz životne sredine), dobijeni su uzimajući u obzir tu činjenicu.

Tabela 6.2.3. Aktivnost ^{232}Th u uzorku zemljišta, određena pomoću spektrometra PRIPJAT-2M.

E_γ [keV]	Režim rada	A [Bq]	A_k [Bq kg ⁻¹]
583 keV	[1-6]	222.10±8.56	375.80±14.48
	[1-1]	235.62±9.63	398.68±16.29
	[2-2]	224.91±7.01	380.56±11.86
	[3-3]	218.29±8.35	369.36±14.12
911 keV	[1-6]	218.86±8.11	370.32±13.72
	[1-1]	239.98±9.89	406.05±16.73
2615 keV	[1-6]	212.26±6.17	359.15±10.44
	[1-1]	221.61±6.61	374.97±11.18
	[2-2]	212.29±6.36	359.20±10.76



Slika 6.2.3. Sumarni spektri uzorka zemljišta uzorkovanog u blizini aerodroma u Podgorici (u različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M).

6.3. Mjerenje torijuma u uzorcima različite gustine

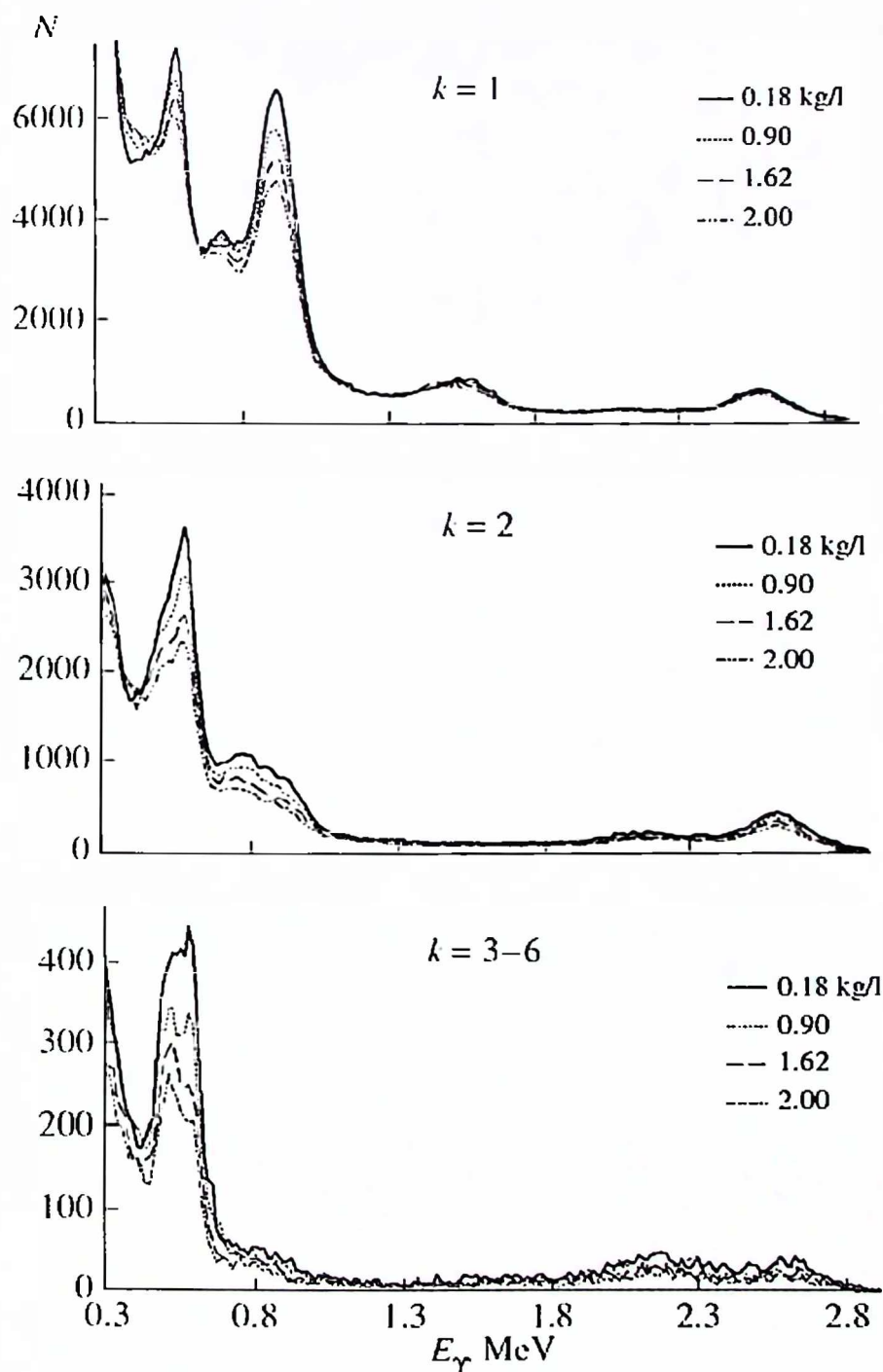
Modifikovani spektrometar PRIPJAT (u Laboratoriji za nuklearnu spektroskopiju Instituta za fiziku Akademije nauka Bjelorusije u Minsku) korišćen je za mjerenja izvora torijuma različite gustine [51]. Energetska rezolucija detektora u sistemu, za fotone ^{137}Cs (662 keV), iznosi (8-12) %. Kod ovog spektrometra, fotoefikasnost za isti zrak iznosi 0.25 (u nekoincidentnom režimu rada) – za tačkasti izvor, i varira (za različite pozicije unutar komore) ne više od 10 %. Sistem karakteriše visoka osjetljivost, a analize su pokazale da je, na primjer (za manje od 1 minuta mjerenja), moguće detektovati cezijum u vodi na nivou od oko 10 Bq L^{-1} [51].

Uzorci (rastvori torijuma aktivnosti 800 Bq : 0.18 kg L^{-1} , 0.9 kg L^{-1} , 1.62 kg L^{-1} i 2 kg L^{-1}) pakovani su u plastične posude koje su hermetički zatvarane, a zatim mjereni tokom 1000 s. Sumarni spektri (u nekoincidentnom režimu, režimu dvostrukih koincidencija i režimu rada koincidencija višestrukosti od 3 do 6, bez razdvajanja) predstavljeni su na slici 6.3.1, dok su sumarni spektri fona u istim režimima rada (dobijeni tokom 4968 s) prikazani na slici 6.3.2. Ilustracije radi, spektar uzorka koji sadrži ^{137}Cs (aktivnosti 203.4 Bq), snimljen pomoću ovog spektrometra tokom 2000 s (u istim režimima rada), predstavljen je na slici 6.3.3 [51].

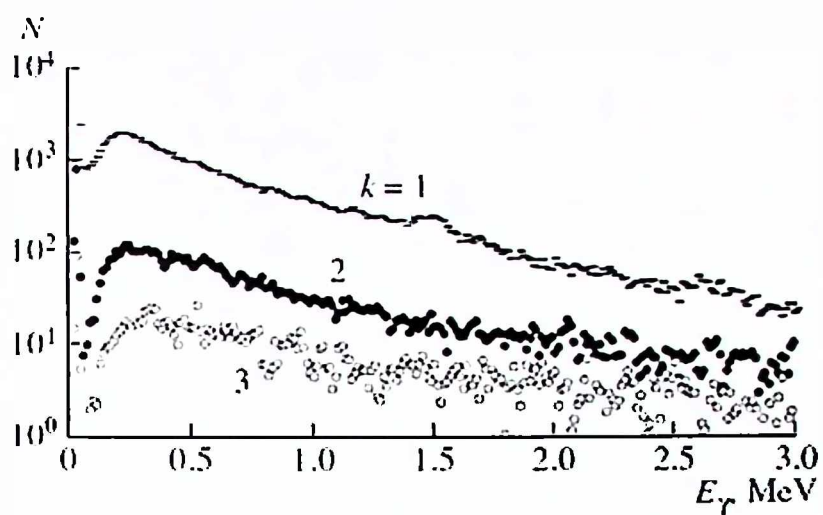
Analize spektara (koje su pomogle i konačan razvoj metoda pomoću spektrometra PRIPJAT-2M) pokazale su da su pozicije fotopikova uglavnom iste (bez obzira na gustinu uzorka), te da važe isti zaključci, tj. režim dvostrukih koincidencija optimalan je za određivanje aktivnosti torijuma preko fotopikova na energiji 583 keV i 2615 keV, uz mogućnost korišćenja fotopika na energiji 911 keV – u nekoincidentnom režimu rada.

Za fotopik na energiji 583 keV u režimu dvostrukih koincidencija, u odnosu na nekoincidentni režim, efikasnost je veća (oko 1.16 puta), dok je minimalna detektibilna aktivnost torijuma (Bq kg^{-1}) manja (oko 4.5 puta); a u odnosu na režim [3-6] – minimalna detektibilna aktivnost manja je oko 2.2 puta, dok je efikasnost veća 5 puta (tj. 5.1 put) [51].

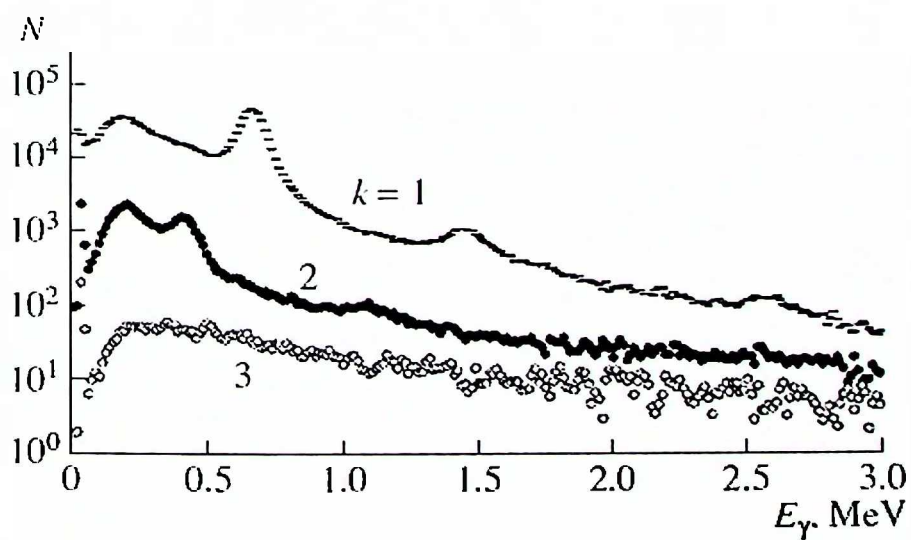
U isto vrijeme, posmatrajući fotopik na energiji 2615 keV, u režimu dvostrukih koincidencija, u odnosu na nekoincidentni režim, minimalna detektibilna aktivnost torijuma (Bq kg^{-1}) manja je oko 1.1 put (a efikasnost je manja 2.3 puta), dok je u odnosu na režim [3-6] – minimalna detektibilna aktivnost manja 8.3 puta, a efikasnost detekcije veća 8.7 puta [51].



Slika 6.3.1. Spektri referentnih uzoraka ^{232}Th različitih gustina (aktivnosti 800 Bq).



Slika 6.3.2. Spektri fona izmjereni spektrometrom tipa PRIPJAT (Minsk) u režimima rada: nekoincidentnom ($k = 1$), dvostrukih koincidencija (2) i koincidencija višestrukosti od 3 do 6 (3).



Slika 6.3.3. Spektri izvora koji sadrži ^{137}Cs (Minsk): u nekoincidentnom ($k = 1$), režimu dvostrukih koincidencija (2) i koincidencija višestrukosti od 3 do 6 (3).

6.4. Primjena koincidentnog metoda mjerenja torijuma-232 u ispitivanju marinske životne sredine

Torijum-232, kao prirodni radionuklid, prisutan je u stijenama, zemljištu, pijesku, kao i biljkama i životinjama (tj. u lancu ishrane), zbog čega je, između ostalog, zajedno sa njegovim produktima raspada, mjereno i u različitim marinskim životnim sredinama (koristeći različite metode i tehnike [62-67]), a takođe i u nekim vrstama riba.

Što se tiče Crne Gore, po prvi put su, u saradnji sa biologom/ekologom, mjerenja torijuma u marinskoj sredini južnog Jadranskog mora urađena primjenjujući prethodno opisani, koincidentni metod i spektrometar PRIPJAT-2M [87].⁴² Odnosno, primjenjujući integralni režim (i fotopik na energiji 911 keV), a zatim i režim dvostrukih koincidencija, tj. fotopikove na energijama 2615 keV i 583 keV (najprije za većinu, a zatim i za sve uzorke) – pri čemu je ovaj prvi (2615 keV) korišćen za određivanje aktivnosti, nivo ^{232}Th analiziran je u uzorcima zemljišta iz gradova na crnogorskom primorju (10), uzorcima pijeska sa plaža (20), te uzorcima morske vode (16) (mesta uzorkovanja predstavljena su na slici 5.3.1) – već opisanim u poglavlju 5 (5.3). U istom poglavlju opisana je priprema uzoraka, a navedena su i vremena mjerenja. Radi se, dakle, o istim uzorcima (pa je i opis identičan), a mjerenja su izvršena istim spektrometrima. Stoga je korišćen i posve identičan pristup analizi i diskusiji (da bi se, između ostalog, u kasnijoj analizi mogli izvesti zaključci i izvršiti određena poređenja među metodima, rezultatima, itd.). Iako izvan okvira ove disertacije, takođe su izvršeni proračuni i mjerenja doza, tj. jačina doza [87]. Takođe, još jedan uzorak morske vode iz Herceg Novog mjereno je pomoću oba spektrometra⁴³ (30 L, upareno do 1 L).

Prvi put su (u vezi sa aktivnošću torijuma) analizirani i uzorci površinskog sedimenta, mulja sa detritusom i morske trave (uzorkovanje i ostali detalji dati su u 5.3.1.2, gdje su navedena i vremena mjerenja), kao i vrste cipola (Mugilidae) *Mugil cephalus* (Linnaeus, 1758) – koja se koristi u ljudskoj ishrani. Treba istaći da se radi o kosmopolitskoj vrsti ribe [88].

U prvoj seriji, jedanaest jedinki ove vrste ulovljeno je u zalivu Boka Kotorska. Nakon što su oprane i očišćene od prljavštine, šest jedinki je (nakon mjerenja dužina i masa) hermetički

⁴² Treba napomenuti da je detekcija torijuma izvršena preko njegovih produkata raspada i navedeni nivoi aktivnosti se u prvom redu odnose na aktivnosti potomaka ^{228}Ra (tj. ^{228}Th) – jer je pretpostavka o ravnoteži između ^{232}Th i svih njegovih potomaka problematična, pogotovu kada se radi o biotskim uzorcima.

⁴³ Jedan od prethodno (u 5.3.1.2) pomenutih uzoraka...

zatvoreno u plastične posude i snimano na spektrometru PRIPJAT-2M tokom 5000 s realnog vremena (živo vrijeme mjerenja bilo je u opsegu od 4950.3 do 4971.4 s).

Jedinka označena brojem 7 (ukupne dužine 30.8 cm i mase 0.238 kg) snimana je bez prethodne pripreme, kao i prethodno navedenih šest jedinki, i bez hermetizacije, što za posledicu ima da se detekcijom γ -zraka na energijama 583 keV i 2615 keV može odrediti samo aktivnost ^{208}Tl . Isti uzorak je nakon toga homogenizovan, hermetički zatvoren u Marineli posudu i mjeran pomoću HPGe i spektrometra PRIPJAT-2M. Treba napomenuti da je po jedan uzorak svake vrste (ne samo ribe, već i zemljišta, pijeska, vode, sedimenta, morske trave i mulja sa detritusom) takode mjeran pomoću HPGe spektrometra (opisano u 5.3). Na primjer, pri mjerenju uzoraka zemljišta iz Kotora i pijeska iz Petrovca, efikasnost detekcije fotopika na energiji 911 keV (preko koga se ovim poluprovodničkim detektorom uglavnom detektuje torijum) bila je 0.011856 i 0.011848, respektivno (za živa vremena mjerenja od 89 363.8 s i 73.159.32 s, respektivno).

Četiri uzorka (8, 9, 10 i 11, ukupnih dužina jedinki: 39.2 cm, 30.2 cm, 29.8 cm i 30.5 cm; i masa: 0.551 kg, 0.228 kg, 0.218 kg i 0.248 kg, respektivno) izmjerena su spektrometrom PRIPJAT-2M, a nakon toga je⁴⁴ izvršena njihova disekcija i izdvojeni su⁴⁵ mišići koji su hermetički zatvarani u plastične posude i mjereni (10 000 s živog vremena), da bi se odredila aktivnost ^{232}Th u ovom – jestivom dijelu. Dobijene koncentracije aktivnosti torijuma su, između ostalog (i izvan okvira ove doktorske disertacije), iskorišćene i za procjenu doze zračenje – koju (zbog prisutnog torijuma) primi odrastao čovjek, unoseći 10 kg ove vrste ribe godišnje [87].

6.4.1. Rezultati i diskusija

U tabeli 6.4.1 prikazane su aktivnosti ^{232}Th u uzorcima zemljišta, a u tabeli 6.4.2 – aktivnosti ^{232}Th u uzorcima pijeska sa plaža. Dobijeni rezultati iz spektara integralnog režima rada (analiziran fotopik na energiji 911 keV) i iz spektara dvostrukih koincidencija (analiziran fotopik na energiji 2615 keV) se veoma dobro poklapaju (razlike su do 6 %).

⁴⁴ od strane biologa

⁴⁵ uz ostale organe, namijenjene za druga istraživanja

Tabela 6.4.1. Aktivnost ^{232}Th u uzorcima zemljišta sa primorja Crne Gore.

Uzorak	Koordinate	Masa [kg]	$A(^{232}\text{Th})$ [Bq]	$A_k(^{232}\text{Th})$ [Bq kg ⁻¹]
Ulcinj	N 41°54.585' E 19°15.026'	1.285	25.02±1.02	19.47±0.80
Bar	N 42°06.635' E 19°05.368'	1.140	39.37±1.39	34.54±1.22
Sutomore	N 42°08.577' E 19°02.111'	0.877	30.87±1.14	35.20±1.30
Petrovac	N 41°54.585' E 19°15.026'	1.299	39.96±1.54	30.76±1.18
Budva	N 42° 17.149' E 18° 51.139'	1.109	26.36±1.12	24.63±1.05
Jaz	N 42°16.993' E 18°48.130'	1.050	51.68±1.79	49.22±1.71
Tivat	N 42°23.286' E 18°40.910'	1.219	127.96±4.34	104.95±3.56
Kotor	N 42°24.992' E 18°45.752'	1.205	59.15±1.99	49.11±1.65
Risan	N 42°30.628' E 18°41.763'	1.080	29.08±1.36	26.92±1.26
Herceg Novi	N 42° 27.294' E 18° 33.011'	1.200	34.24±1.39	28.53±1.16

Aktivnosti ^{232}Th u površinskom sloju zemljišta pokazale su minimum, maksimum, srednju vrijednost, standardnu devijaciju i medijanu u iznosu od 25.02 Bq, 127.96 Bq, 46.34 Bq, 30.68 Bq i 36.8 Bq, respektivno.

Medijana koncentracija aktivnosti ^{232}Th za uzorke površinskog sloja zemljišta na primorju Crne Gore je neznatno iznad svjetskog prosjeka (medijana srednjih vrijednosti: 30 Bq kg⁻¹ [71]).

Važno je napomenuti da uzorak zemljišta iz Tivta pokazuje najveću aktivnost potomaka ^{232}Th . U ostalim uzorcima aktivnost je u opsegu od 19.47 Bq kg⁻¹ do 49.22 Bq kg⁻¹. Prethodno ispitivanje radioaktivnosti, pomoću *in situ* gama spektrometrije, pokazalo je da oblast oko Tivta (lokacija Krašići) ima najveće prirodno zračenje (terestrijalnog porijekla) na primorju Crne Gore [89]. Ipak, dobijene i ovdje predstavljene koncentracije aktivnosti ^{232}Th u opsegu su vrijednosti koje su izmjerene u drugim zemljama južne Evrope (Albanija, Hrvatska, Grčka, Portugalija, Slovenija, Španija – sa srednjom koncentracijom aktivnosti torijuma: 24 (4-160) Bq kg⁻¹, 45 (12-65) Bq kg⁻¹, 21 (1-190) Bq kg⁻¹, 51 (22-100) Bq kg⁻¹, 35 (2-90) Bq kg⁻¹, 33 (2-210) Bq kg⁻¹, respektivno [71]).

Tabela 6.4.2. Aktivnost ^{232}Th u uzorcima pijeska sa plaža Crne Gore.

Uzorak	Koordinate	Masa [kg]	$A(^{232}\text{Th})$ [Bq]	$A_L(^{232}\text{Th})$ [Bq kg ⁻¹]
Velika plaža	N 41°54.474' E 19°14.987'	1.486	22.35±0.87	15.04±0.59
Mala plaža	N 41°55.442' E 19°12.264'	1.689	16.82±0.67	9.95±0.40
Utjeha	N 42°00.616' E 19°09.052'	1.714	1.16±0.21	0.68±0.12
Šušanj	N 42°06.691' E 19°05.086'	1.589	15.02±0.63	9.45±0.40
Sutomore	N 42°08.282' E 19°03.003'	1.592	6.50±0.44	4.08±0.27
Čanj	N 42°09.614' E 19°00.004'	1.667	18.34±0.74	11.00±0.44
Buljarica	N 42°11.675' E 18°57.814'	1.745	3.12±0.25	1.79±0.14
Petrovac	N 42°12.242' E 18°56.586'	1.500	4.09±0.27	2.72±0.18
Kamenovo	N 42°16.478' E 18°63.276'	1.500	7.74±0.43	5.16±0.28
Kraljičina plaža	N 42°15.673' E 18°53.572'	1.500	4.18±0.39	2.78±0.26
Pržno	N 42°16.109' E 18°53.554'	1.500	3.54±0.30	2.36±0.20
Sveti Stefan	N 42°15.357' E 18°53.669'	1.531	3.24±0.22	2.16±0.14
Bečići	N 42°16.866' E 18°52.539'	1.600	13.64±0.58	8.52±0.36
Slovenska plaža	N 42°17.109' E 18°51.134'	1.500	5.58±0.34	3.72±0.23
Mogren	N 42°16.634' E 18°49.970'	1.701	2.14±0.28	1.26±0.16
Jaz	N 42°16.947' E 18°48.153'	1.600	3.02±0.20	1.89±0.12
Plavi horizonti	N 42°23.152' E 18°40.943'	1.500	6.17±0.39	4.12±0.26
Kotor	N 42°25.781' E 18°46.080'	1.600	2.13±0.40	1.33±0.25
Risan	N 42°30.597' E 18°41.779'	1.600	4.62±0.46	2.89±0.29
Njivice	N 42°26.049' E 18°31.033'	1.661	5.31±0.25	3.19±0.15

U 20 uzoraka pijeska sa plaža, izmjerene aktivnosti ^{232}Th su niske. Dobijeni minimum, maksimum, srednja vrijednost, standardna devijacija i medijana iznose: 1.16 Bq, 22.35 Bq, 7.43 Bq, 6.21 Bq i 4.96 Bq, respektivno.

Rezultati statističkih analiza (za sve uzorke) dati su u tabeli 6.4.3. Rezultati mjerenja uzorka zemljišta iz Kotor i pijeska iz Petrovca pomoću HPGe i spektrometra PRIPJAT-2M, pokazali su dobru saglasnost (tabela 6.4.4). Razlike između rezultata su manje od 9 %.⁴⁶

Tabela 6.4.3. Koncentracije aktivnosti ^{232}Th .

Vrsta uzorka	Broj mjerenja (uzoraka)	Minimalna izmjerena aktivnost ^{232}Th [Bq kg ⁻¹]	Maksimalna izmjerena aktivnost ^{232}Th [Bq kg ⁻¹]	Aritmetička sredina [Bq kg ⁻¹]	Standardna devijacija [Bq kg ⁻¹]	Mediana [Bq kg ⁻¹]
Zemljište	10	19.47	104.95	40.33	24.68	32.65
Pijesak sa plaža	20	0.68	15.04	4.70	3.93	3.04
Morska voda	16	0.06 [*]	0.22 [*]	0.11 [*]	0.04 [*]	0.09 [*]
<i>M. cephalus</i>	6	0.63	1.67	1	0.38	0.96

^{*} U Bq L⁻¹.

Koncentracije aktivnosti ^{232}Th izmjerene u uzorcima pijeska sa plaža (vrijednosti se kreću od 0.68 Bq kg⁻¹ do 15.04 Bq kg⁻¹) nešto su niže od onih koje su prethodno dobijene za neke lokacije u svijetu – na primjer, za obalu Crvenog mora (12.4 Bq kg⁻¹) [74] i oblast *Rizhao* u Kini (od 7.8 Bq kg⁻¹ do 25.1 Bq kg⁻¹) [75], ali su i značajno niže od onih koje su dobijene za plaže u jugoistočnom Brazilu (od 48 Bq kg⁻¹ do 239 Bq kg⁻¹) [90].

⁴⁶ Iako je vrijeme mjerenja na spektrometru PRIPJAT-2M bilo značajno kraće.

Tabela 6.4.4. Poređenje rezultata dobijenih pomoću spektrometra PRIPJAT-2M i HPGe spektrometra.

Vrsta uzorka	PRIPJAT Živo vrijeme mjerjenja [s]	PRIPJAT Izmjerena aktivnost ^{232}Th [Bq kg ⁻¹]	HPGe Živo vrijeme mjerjenja [s]	HPGe Izmjerena aktivnost ^{232}Th [Bq kg ⁻¹]
Zemlja – Kotor	1929.4	49.11±1.65	89 363.8	52.35±2.89
Pijesak – Petrovac	1985.6	2.72±0.18	73 150.32	2.98±0.12
Morska voda Mala plaža*	10 000	0.15±0.05**	81 680	< 0.26**
Morska voda - Dobrota***	10 000	0.07±0.02**	82 740	0.06±0.01**
Morska voda - Sveti Stasije***	10 000	0.03±0.01**	84 452	< 0.05**
Morska trava I	4951.8	9.83±1.16	68 940	9.87±2.24
Sediment I	1997.8	8.91±0.34	126 784	9.23±0.41
Mulj sa detritusom	1941.4	11.71±0.50	62 900	12.03±0.95
<i>Mugil cephalus</i> 7	4951	1.11±0.26	65 760	1.18±0.12

*1 L – uzorak bez pripreme. **U Bq L⁻¹. ***Voda uparena do 1 L.

6.4.1.1. Uzorci iz južnog Jadranskog mora – voda, sediment, morska trava, mulj sa detritusom, *M. cephalus*

Rezultati mjerenja aktivnosti ^{232}Th u uzorcima iz južnog Jadranskog mora, dobijeni pomoću spektrometra PRIPJAT-2M, dati su u tabelama 6.4.5, 6.4.6 i 6.4.7. Ovaj radioizotop detektovan je u svim uzorcima. U tabeli 6.4.4 dati su rezultati za uzroke koji su mjereni pomoću oba spektrometra (HPGe i PRIPJAT-2M).

Morska voda uzorkovana kod Male plaže u Ulcinju (1 L) mjerena je pomoću oba spektrometra, kako je to navedeno u poglavlju 5 (5.3). U slučaju HPGe spektrometra, i aktivnost torijuma (uz radijumsku aktivnost) bila je ispod minimalne detektibilne aktivnosti. Za uzroke morske vode koji su uzeti sa dubine (6.5 – 7) m (lokacije Dobrota i Sveti Stasije – u zalivu Boka Kotorska), koji su upareni do 1 L i takođe mjereni pomoću oba spektrometra, rezultati su prikazani u tabeli 6.4.4. Uopšteno, mjerenja su pokazala da je aktivnost ^{232}Th u vodi južnog Jadrana relativno niska (pogotovu – mjerenja uzoraka iz zaliva Boka Kotorska, sa dubine od oko

6.5 m do 7 m), mada su u 8 slučajeva aktivnosti torijuma veće od, na primjer, onih koji su dobijene za Arapsko more, gdje je mjeren ^{228}Ra (potomak ^{232}Th) ($< 0.1 \text{ Bq L}^{-1}$) [65].

Tabela 6.4.5. Rezultati mjerenja uzoraka površinske morske vode (PRIPJAT-2M).

Morska voda 1 L	$A(^{232}\text{Th})$ [Bq]
Velika plaža	0.22 ± 0.05
Mala plaža	0.15 ± 0.05
Utjeha	0.08 ± 0.02
Bar – luka	0.12 ± 0.03
Šušanj	0.09 ± 0.02
Sutomore	0.08 ± 0.02
Čanj	0.11 ± 0.03
Petrovac	0.06 ± 0.02
Kamenovo	0.11 ± 0.02
Pržno	0.08 ± 0.04
Jaz	0.09 ± 0.02
Plavi horizonti	0.13 ± 0.03
Tivat	0.10 ± 0.03
Kotor	0.09 ± 0.02
Risan	0.10 ± 0.04
Herceg Novi	0.09 ± 0.02

U uzorku površinske morske vode iz Herceg Novog (30 L upareno do 1 L), aktivnost ^{232}Th izmjerena spektrometrom PRIPJAT-2M bila je $(0.11 \pm 0.005) \text{ Bq L}^{-1}$, a HPGe spektrometrom – $(0.12 \pm 0.003) \text{ Bq L}^{-1}$.

Što se ostalih uzoraka tiče, treba istaći da nijesu postojali podaci o prethodnim ispitivanjima ^{232}Th u sedimentu, morskoj travi ili mulju sa detritusom sa priobalja Crne Gore. Postojali su samo rezultati ispitivanja teških metala u sedimentu Boke Kotorske [91]. Rezultati mjerenja aktivnosti ^{232}Th spektrometrom PRIPJAT-2M u sedimentu, morskoj travi i mulju sa detritusom dati su u tabeli 6.4.6, dok je poređenje rezultata dobijenih pomoću višedetektorskog

spektrometra i jednodetektorskog poluprovodničkog spektrometra dato u tabeli 6.4.4. Rezultati su pokazali veoma dobro slaganje, i potvrdili da analize uzoraka pomoću spektrometra PRIPJAT-2M, ne samo da ne zahtijevaju posebnu pripremu uzoraka, već i omogućuju značajno kraće (za red veličine) vrijeme mjerenja. S druge strane, izmjerene aktivnosti torijuma u dva uzorka sedimenta su relativno niske, niže od nivoa ^{232}Th i njegovih produkata raspada (^{228}Ra , na primjer) u slučaju sedimenta Irskog mora (36.7 Bq kg^{-1}) [78], Indijskog okeana (26.7 Bq kg^{-1}) [79] ili Arapskog mora (od 11.72 Bq kg^{-1} do 33.94 Bq kg^{-1}) [65, 66].

Tabela 6.4.6. Aktivnost ^{232}Th u sedimentu, morskoj travi i mulju sa detritusom.

Vrsta uzorka	Masa [kg]	$A(^{232}\text{Th})$ [Bq]	$A_k(^{232}\text{Th})$ [Bq kg^{-1}]
Sediment 1	1.339	11.93 ± 0.45	8.91 ± 0.34
Sediment 2	1.390	8.40 ± 0.28	6.04 ± 0.20
Morska trava 1	0.120	1.18 ± 0.14	9.83 ± 1.16
Morska trava 2	0.100	0.88 ± 0.16	8.80 ± 1.63
Mulj sa detritusom	1.078	12.62 ± 0.54	11.71 ± 0.50

Tabela 6.4.7. Aktivnost ^{232}Th u cijelim jedinkama cipola *M. cephalus* iz južnog Jadranskog mora.

Uzorak <i>M. cephalus</i>	Ukupna dužina [cm]	Masa [kg]	$A(^{232}\text{Th})$ [Bq]	$A_k(^{232}\text{Th})$ [Bq kg^{-1}]
1	29.2	0.163	0.11 ± 0.03	0.67 ± 0.18
2	27.5	0.190	0.12 ± 0.03	0.63 ± 0.16
3	37.9	0.530	0.48 ± 0.11	0.90 ± 0.21
4	26	0.177	0.18 ± 0.05	1.02 ± 0.28
5	27.7	0.197	0.33 ± 0.10	1.67 ± 0.51
6	27.6	0.188	0.21 ± 0.05	1.11 ± 0.26

Aktivnost ^{232}Th u ribama koje se mogu naći u Jadranskom moru Crne Gore do sada nije ispitivana, mada dobijeni i ovdje predstavljeni rezultati (tabela 6.4.7) pokazuju da je nivo aktivnosti torijuma u cipelima (tj. u vrsti *M. cephalus*) relativno nizak ($< 1.7 \text{ Bq kg}^{-1}$).

Najmanja izmjerena vrijednost bila je 0.11 Bq u uzorku 1, dok je najveća izmjerena vrijednost aktivnosti torijuma bila u uzorku 3 (0.48 Bq). Iako je samo šest cijelih jedinki mjereno

(bez homogenizovanja), aritmetička sredina je izračunata i iznosi 0.24 Bq, uz standardnu devijaciju od 0.14 Bq i medijanu od 0.19 Bq.

Kao što je prethodno rečeno, uzorak 7 mjeran je pomoću spektrometra PRIPJAT-2M bez prethodne pripreme. Koncentracija aktivnosti ^{232}Th dobijena preko pratećih gama zraka ^{228}Ac bila je $(1.02 \pm 0.22) \text{ Bq kg}^{-1}$. Isti uzorak je takode mjeran HPGe spektrometrom, nakon što je bio homogenizovan i hermetički zatvoren (u Marineli posudu) – tabela 6.4.4.

Izmjerena koncentracija aktivnosti ^{228}Ac u četiri uzorka koji su označeni kao 8, 9, 10 i 11, iznosila je $(0.52 \pm 0.11) \text{ Bq kg}^{-1}$, $(0.76 \pm 0.15) \text{ Bq kg}^{-1}$, $(1.28 \pm 0.36) \text{ Bq kg}^{-1}$ i $(0.92 \pm 0.16) \text{ Bq kg}^{-1}$, respektivno. Koncentracija aktivnosti ^{232}Th u njihovim mišićima (0.05286 kg, 0.01943 kg, 0.03612 kg i 0.02577 kg, respektivno) takode je izmjerena i iznosi $(1.04 \pm 0.09) \text{ Bq kg}^{-1}$, $(1.57 \pm 0.22) \text{ Bq kg}^{-1}$, $(1.06 \pm 0.11) \text{ Bq kg}^{-1}$ i $(1.32 \pm 0.22) \text{ Bq kg}^{-1}$, respektivno, sa srednjom vrijednošću od 1.25 Bq kg^{-1} . Takode, na primjer, ribe iz jezera blizu *Eliot Lake* u Kanadi, pokazale su koncentracije aktivnosti ^{232}Th ispod 20 Bq kg^{-1} [92].

7. ISTOVREMENA DETEKCIJA RADIJUMA I TORIJUMA SPEKTROMETROM PRIPJAT-2M

Prethodno je naglašeno da se aktivnost ^{232}Th (ako je u radioaktivnoj ravnoteži sa potomcima) spektrometrom PRIPJAT-2M može odrediti preko fotopikova na energijama 583 keV i 2615 keV – u režimu dvostrukih koincidencija. U početnim istraživanjima (dijelom predstavljenim u poglavlju 4), uz detekciju (pojedinačnu) radijuma i torijuma, rješavan je (i ubrzo riješen) problem njihove istovremene detekcije u istom uzorku. Nešto kasnije (s obzirom da je bilo neophodno uraditi dodatne analize i provjere), riješen je i problem istovremene detekcije ovih radionuklida i ^{137}Cs (o čemu će biti riječi u sljedećem poglavlju).⁴⁷

Problem koji je trebalo u potpunosti riješiti u vezi sa detekcijom radijuma i torijuma bio je naglašen i u već pominjanom magistarskom radu [37]. Naime, zbog karakteristika NaI(Tl) detektora koji čine spektrometar PRIPJAT-2M, fotopikovi na energijama 583 keV (^{232}Th) i 609 keV (^{226}Ra) ne mogu biti razdvojeni. Dakle, ako uzorak sadrži ^{226}Ra i ^{232}Th , to utiče na tačnost mjerenja (u zavisnosti od njihovog međusobnog odnosa). Upravo polazeći od toga što je u zaključku magistarskog rada sugerisano [37]:⁴⁸ „...potrebno je razmotriti i režim trostrukih koincidencija (iako je u tom slučaju osjetljivost spektrometra slabija), u prvom redu zbog toga što se u mnogim uzorcima pored torijuma istovremeno javlja i ^{226}Ra , čija se aktivnost (u režimu dvostrukih koincidencija) određuje preko fotopika energije 609 keV (u koincidenciji sa mnogim γ -linijama koje sa njom čine dvostruke kaskade), tj. linije koja u datom spektru neće biti razdvojena od linije 583 keV“; te, nadalje, „Pošto torijum ima relativno intenzivne trostruke kaskade, a radijum ih ima manje, a i čine ih linije manjih intenziteta, spektar trostrukih koincidencija može poslužiti za razne provjere...“, i nakon što su urađene sve potrebne analize, navedeni problem je riješen.

Naime, u polaznim istraživanjima, tokom 2000 s realnog mjerenja, u režimu dvostrukih koincidencija, u opsegu (300-3000) keV, efikasnosti detekcije fotopika na energiji 583 keV i 2615 keV, „ručno“ su određene kao 0.097 i 0.014, respektivno. Konačno, nakon što je metod razvijen,

⁴⁷ Iako je i u početnim istraživanjima razmatrano prisustvo cezijuma, u spektrima integralnog i nekoincidentnog režima rada.

⁴⁸ Kada je metod testiran mjerenjem uzoraka sa povećanim sadržajem/aktivnošću torijuma...

efikasnosti registracije ovih gama zraka u fotopiku, u režimu dvostrukih koincidencija, određena je kao 0.082 i 0.013, respektivno⁴⁹. U isto vrijeme, efikasnost detekcije gama zraka energije 609 keV u fotopiku, u istom režimu (dvostrukih koincidencija), za realno vrijeme mjerenja 2000 s (živo vrijeme mjerenja: 1324.5 s), određena je kao 0.1031, tj. 0.103 (što je potvrđeno i serijom mjerenja).

Kao što je već rečeno, osim preko fotopika na energiji 911 keV (u integralnom i nekoincidentnom spektru), ako je uzorak mjeren u režimu dvostrukih koincidencija, aktivnost ²³²Th moguće je određivati preko fotopika na energiji 2615 keV (uzimajući u obzir karakteristike raspada radionuklida u ²³²Th nizu) i onda, uzimajući u obzir efikasnost detekcije fotopika, odrediti doprinos γ -zraka energije 583 keV (tj. ²³²Th) oblasti zajedničkog radijum-torijumskog pika (583 keV + 609 keV). Ukupna brzina brojanja treba da bude korigovana na ovaj doprinos⁵⁰, da bi se nakon toga (i to pomoću korigovane brzine brojanja, relativnog intenziteta γ -zraka energije 609 keV i efikasnosti njegove detekcije) odredila aktivnost ²²⁶Ra [93]. Pri analizi spektara i izračunavanju aktivnosti (koncentracija aktivnosti), softver PRIP „pita“ – da li u analizu uključivati ²²⁶Ra, tj. ²¹⁴Pb, itd.

7.1. Uzorci zemljišta i vegetacije

Aktivnosti ²²⁶Ra i ²³²Th određene su u uzorcima zemljišta iz pet gradova sa sjevera Crne Gore (Kolašin, Mojkovac, Bijelo Polje, Berane i Rožaje) [93]. Sa svakog mjernog mjesta (koordinate – u tabeli 7.1.1) uzeta su po tri uzorka. Prvi uzorak sa dubine do 5 cm, drugi sa dubine (5–10) cm, i treći–uzorak sa dubine (10–15) cm. Uzorci su osušeni na sobnoj temperaturi, homogenizovani (mase uzoraka bile su od 0.81 kg do 1.235 kg). Nakon toga, uzorci su stavljeni u Marineli posude koje su bile hermetički zatvorene najmanje 38 dana, da bi se uspostavila radioaktivna ravnoteža između radijuma i njegovih potomaka, a zatim su mjereni pomoću spektrometra PRIPJAT-2M i poluprovodničkog HPGe spektrometra (GEM – 40190, relativne efikasnosti 40 %).

⁴⁹ Na primjer, potvrđeno i iz spektra snimljenog tokom 1589.3 s živog vremena (i iz ostalih spektara).

⁵⁰ uz ostale korekcije

Tabela 7.1.1. Lokacije na kojima je uzorkovano zemljište.

Lokacija	Koordinate
Kolašin	N 42°49.447' E 19°31.584'
Mojkovac	N 42°57.084' E 19°34.285'
Bijelo Polje	N 43°01.360' E 19°43.990'
Berane	N 42°51.317' E 19°52.068'
Rožaje	N 42°56.296' E 20°12.402'

U saradnji sa biologom, izabrano je pet različitih biljnih uzoraka (vrsta) uzorkovanih na sjeveru Crne Gore, i to: stablo kupine (*Rubus fruticosus*), lišće smreke (*Picea abies*), kora bukve (*Fagus sylvatica*) – uzorkovani u Rožajama, te cvekla (*Beta vulgaris*) i šargarepa (*Daucus carota*) – uzorkovane u Kolašinu [93].⁵¹

Uzorci su oprani (od cvekla i šargarepe su uzeti samo jestivi dijelovi), zatim su osušeni na sobnoj temperaturi. Masa od 0.172 kg stabla kupine (ukupna uzorkovana masa bila je 1.5 kg) stavljena je u Marineli posudu zapremine 0.5 L i hermetički zatvorena. Uzorak lišća (četina) smreke je takode stavljen u Marineli posudu zapremine 0.5 L (0.203 kg), kao i uzorak kore bukve (0.135 kg). Uzorci cvekla (0.849 kg) i šargarepe (0.882 kg) su stavljeni u Marineli posude od 1 L. Nakon što je uspostavljena radioaktivna ravnoteža, svi uzorci su mjereni pomoću spektrometra PRIPJAT-2M, a nakon dodatnih priprema uzoraka i ponovnog uspostavljanja radioaktivne ravnoteže, mjerenje je izvršeno i HPGe spektrometrom.

Kao što je poznato, upotreba HPGe spektrometra zahtijeva prethodnu pripremu uzoraka, tako da su uzorci vegetacije pripremani u standardnoj proceduri [72]. Stablo kupine (1.5 kg) je spaljeno na 300 °C, homogenizovano, izvagano (0.025 kg) i hermetički zatvoreno u plastičnu posudu (50 mL). Kora bukve i lišće smreke su homogenizovani i stavljeni u posude od 250 mL, dok su cvekla i šargarepa smješteni u Marineli posude od 1 L.

Rezultati mjerenja predstavljeni su u tabeli 7.1.2 (zemljište) i tabeli 7.1.3 (biljni uzorci). Kao ilustracija, na slici 7.1.1 prikazan je sumarni spektar dvostrukih koincidencija uzorka

⁵¹ Ova ispitivanja bila su polazna osnova za dalje specifične (radioekološke i radiobiološke) analize.

zemljišta iz Berana (dubina: (5-10) cm), gdje je izmjerena najmanja aktivnost ^{226}Ra (22.92 Bq kg^{-1}).

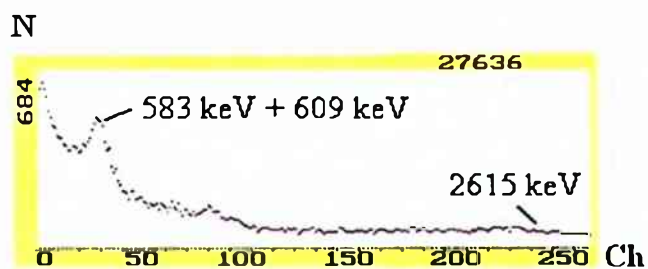
Tabela 7.1.2. Aktivnost radijuma i torijuma u uzorcima zemljišta.

Dubina [cm]	Lokacija	Živo vrijeme mjerenja [s]	^{226}Ra [Bq kg^{-1}]	A_{\min} (^{226}Ra) [Bq kg^{-1}]	^{232}Th [Bq kg^{-1}]	A_{\min} (^{232}Th) [Bq kg^{-1}]
PRIPJAT-2M						
0-5	Kolašin	1930.3	26.50±2.27	0.22	36.37±2.89	0.33
	Mojkovac	1928	29.27±2.26	0.23	42.73±3.08	0.29
	B. Polje	1929.3	28.76±3.76	0.23	48.50±3.73	0.31
	Berane	1930.4	26.64±2.15	0.25	37.03±2.10	0.39
	Rožaje	1929.9	26.54±2.25	0.21	38.50±2.63	0.29
5-10	Kolašin	1928.8	28.77±2.97	0.19	35.35±1.92	0.31
	Mojkovac	1928.3	24.11±4.24	0.26	47.34±5.80	0.39
	B. Polje	1928.6	40.57±2.57	0.21	52.78±3.54	0.30
	Berane	1930	22.92±2.07	0.23	37.34±2.85	0.29
	Rožaje	1928.6	26.45±2.88	0.22	35.97±3.50	0.41
10-15	Kolašin	1929.3	26.54±2.51	0.20	37.35±1.98	0.33
	Mojkovac	1926.8	26.30±1.74	0.20	42.14±2.87	0.31
	B. Polje	1928	25.04±2.51	0.25	48.60±3.61	0.35
	Berane	1929.5	29.38±2.64	0.21	43.47±2.84	0.33
	Rožaje	1926	24.79±3.83	0.22	34.57±2.34	0.37
HPGe						
0-5	Kolašin	20 480.58	25.73±0.96	0.69	38.43±1.56	1.26
	Mojkovac	40 650.72	28.97±1.01	0.59	43.71±1.61	1.08
	B. Polje	67 682.80	30.08±1.01	0.46	51.08±1.77	0.98
	Berane	46 360.60	26.35±0.91	0.47	40.48±1.46	0.90
	Rožaje	36 040.70	28.92±1.00	0.51	39.79±1.47	0.94
5-10	Kolašin	20 538.94	27.38±1.01	0.71	38.70±1.57	1.33
	Mojkovac	40 820.90	22.76±0.86	1.30	50.10±1.87	1.30
	B. Polje	67 200.40	39.16±1.31	0.50	56.43±1.94	0.94
	Berane	40 860.52	23.38±0.81	0.49	39.13±1.43	0.95
	Rožaje	27 100.30	24.79±0.89	0.61	39.38±1.38	0.99
10-15	Kolašin	44 661.64	26.93±0.93	0.50	40.86±1.49	0.98
	Mojkovac	51 390.26	27.85±0.95	0.51	47.50±1.66	0.85
	B. Polje	34 608.22	27.01±1.10	0.73	48.61±1.82	1.35
	Berane	40 990.68	29.54±1.02	0.53	42.38±1.56	1.09
	Rožaje	27 000.42	22.60±0.90	0.92	37.43±1.56	1.37

Treba napomenuti da su minimalne detektibilne aktivnosti radijuma i torijuma određivane pomoću 3MDA metoda – HPGe spektrometar, kao i na osnovu izraza već korišćenog u slučaju koincidentnih mjerenja pomoću spektrometra PRIPJAT-2M [36]:

$$A_{\min} = \frac{2.71 + 4.65\sqrt{N_b}}{\varepsilon I t}, \quad (7.1)$$

gdje je N_b broj odbroja koji potiču od fona i Kompton rasijanja u oblasti fotopika, a t je vrijeme mjerenja.



Slika 7.1.1. Sumarni spektar dvostrukih koincidencija uzorka zemljišta iz Berana (5–10) cm.

Tabela 7.1.3. Aktivnost radijuma i torijuma u uzorcima biljaka.

Vrsta uzorka	Živo vrijeme mjerenja [s]	^{226}Ra [Bq kg ⁻¹]	A_{\min} (^{226}Ra) [Bq kg ⁻¹]	^{232}Th [Bq kg ⁻¹]	A_{\min} (^{232}Th) [Bq kg ⁻¹]
PRIPJAT					
Kupina – stablo	4968	3.44±0.70	0.10	4.96±0.76	0.19
Smreka – lišće /četine/	4988.9	1.13±0.54	0.13	1.91±0.98	0.15
Bukva – kora	4975.7	1.04±0.66	0.11	2.97±1.33	0.16
Cvekla	4975.7	0.28±0.02	0.12	0.29±0.14	0.14
Šargarepa	4975	0.13±0.10	0.10	0.32±0.12	0.18
HPGe					
Kupina – stablo	73 321	4.03 ± 0.31	0.66	4.50 ± 0.64	1.13
Smreka – lišće /četine/	46 240.34	1.10 ± 0.12	0.61	–	1.22
Bukva – kora	150 179.54	0.99 ± 0.12	0.83	2.89 ± 0.84	1.66
Cvekla	84 070.6	0.27 ± 0.04	0.16	–	0.34
Šargarepa	63 912.92	–	0.17	–	0.37

Relativno visoke efikasnosti detekcije fotopikova, kao i dobri fonski uslovi, omogućavaju veću osjetljivost spektrometra PRIPJAT – u režimu dvostrukih koincidencija, što istovremeno znači nižu minimalnu detektibilnu aktivnost nego u slučaju HPGe sistema (uz značajno kraće vrijeme mjerenja).

Na osnovu rezultata dobijenih pomoću spektrometra PRIPJAT-2M, srednja aktivnost radijuma u (svim) uzorcima zemljišta je 28.17 Bq kg^{-1} (sa standardnom devijacijom i medijanom od 4.40 Bq kg^{-1} i 26.54 Bq kg^{-1} , respektivno), dok je srednja aktivnost torijuma 41.20 Bq kg^{-1} (sa standardnom devijacijom i medijanom od 5.80 Bq kg^{-1} i 38.50 Bq kg^{-1} , respektivno).

Poređenje s rezultatima dobijenim pomoću HPGe spektrometra pokazuje njihovu dobru međusobnu saglasnost (u slučaju mjerenja radijuma razlike su manje od 9 %, a u slučaju mjerenja torijuma – manje od 10 %).

S druge strane, aktivnosti radijuma i torijuma izmjerene u biljnim uzorcima veoma su niske (ispod 5 Bq kg^{-1}). Najveća aktivnost radijuma detektovana je u uzorku kupine – $(3.44 \pm 0.70) \text{ Bq kg}^{-1}$ – koristeći PRIPJAT-2M spektrometar, tj., $(4.03 \pm 0.31) \text{ Bq kg}^{-1}$ – koristeći HPGe spektrometar. Ovo je bila najveća razlika u rezultatima koji su ovom prilikom dobijeni pomoću dva navedena spektrometra.

Važno je naglasiti da su u nekim uzorcima biljaka aktivnosti radijuma i torijuma bile ispod minimalne detektibilne aktivnosti HPGe spektrometra (smreka, cvekla, šargarepa). U dva slučaja mjerenja torijuma (stablo kupine i kora bukve), rezultati dobijeni HPGe spektrometrom razlikuju se od onih koji su dobijeni spektrometrom PRIPJAT-2M za manje od 11 %.

7.2. Dalje radioekološke studije

Od velikog (radioekološkog i radiobiološkog) značaja za biološke sisteme je znati koncentracije radionuklida u njima, kao i kako te koncentracije na njih utiču, kako su distribuirane u pojedinim organima, i kojim mehanizmima ovi sistemi preuzimaju radioaktivnost iz životne sredine [94]. Različiti organizmi (ali i različiti djelovi istog organizma) različito akumuliraju radioaktivne izotope, što zavisi od fizioloških procesa, ali i od sadržaja radionuklida u njihovoj životnoj sredini [94].

Najčešće se, od gama emitera, razmatraju ^{40}K , izotopi uranijumskog (u prvom redu ^{226}Ra) i torijumskog niza, ali i ^{137}Cs – fisioni produkt, u životnu sredinu dospio usljed nuklearnih akcidenata i testiranja oružja.

Kada se govori o čovjeku i životinjskom svijetu, značajan način preuzimanja radionuklida predstavlja udisanje i ishrana (tj. unošenje hrane i pića koji sadrže određene količine radionuklida). Kod biljaka, preuzimanje (*uptake*) se vrši (na primjer) korjenskim sistemom, pa se transfer iz zemljišta početno procjenjuje tako što se nađe odnos koncentracija aktivnosti nekog konkretnog radionuklida u zemljištu i u samoj biljci (u korjenu, stablu,...), a dalje se razmatra odnos koncentracija aktivnosti izotopa u različitim djelovima biljke [94], itd.

Treba istaći da razvijeni koincidentni metodi mjerenja radionuklida imaju značajne prednosti u odnosu na druge metode, kada su u pitanju istraživanja te vrste. Naime, kao što je već naglašavano, osim relativno visoke efikasnosti detekcije i dobre osjetljivosti (tj. niske minimalne detektibilne aktivnosti radionuklida), koincidentne metode i spektrometar PRIPJAT-2M dozvoljavaju mjerenja biotskih uzoraka bez njihove prethodne pripreme (tj. u obliku i po sastavu kako se oni javljaju u životnoj sredini).

Stoga, razvijeni metodi mogu se intenzivno primjenjivati u različitim oblastima nauke, uključujući (u prvom redu) biologiju i ekologiju.

S tim u vezi, kao prvi korak u analizi preuzimanja, distribucije i bioakumulacije radionuklida, mogao bi se procjenjivati njihov transfer iz okoline u datu vrstu (iz zemljišta u biljku, na primjer) [94].

Kao ilustracija, mogu se uzeti podaci za stablo kupine, lišće smreke, koru bukve (Rožaje), cveklu i šargarepu (Kolašin); kao i za zemljište u tim gradovima, podrazumijevajući da je koncentracija aktivnosti radijuma i torijuma u zemljištu ispod biljke ista kao i u mjerenim uzorcima zemljišta iz tih gradova (podaci iz tabele 7.1.2), a uzimajući srednju koncentraciju aktivnosti na dubini do 15 cm, iako to može biti gruba aproksimacija, s obzirom da su dubine korijena različite.

Faktori transfera ovih radionuklida iz zemljišta, računati kao odnos [94]:

koncentracija aktivnosti radionuklida u suvom biljnom uzorku / koncentracija aktivnosti radionuklida u suvom uzorku zemlje,
predstavljeni su u tabeli 7.2.1 [94].

Tabela 7.2.1. Transfer radionuklida iz zemljišta u biljku.

Biljni uzorak	²²⁶ Ra [Bq kg ⁻¹]	Faktor transfera radijuma iz zemljišta	²³² Th [Bq kg ⁻¹]	Faktor transfera torijuma iz zemljišta
Kupina – stablo	3.44	0.12	4.96	0.14
Smreka – lišće	1.13	0.04	1.91	0.07
Bukva – kora	1.04	0.04	2.97	0.08
Cvekla	0.28	0.01	0.29	0.01
Šargarepa	0.13	0.005	0.32	0.01

Najniže faktore transfera radijuma i torijuma pokazuje šargarepa, kod kupine se uočava transfer radionuklida iz zemljišta značajniji nego kod ostalih (ovdje razmatranih) biljnih vrsta, pri čemu je, uopšte posmatrajući, faktor transfera torijuma nešto veći od faktora transfera radijuma (osim u slučaju cvekle, kod koje se uočava približno jednak transfer ova dva radionuklida).

Takode, iako se ispitivanje radioaktivnosti u ribama najčešće vršilo zbog procjene doza zračenja koje primaju ljudi konzumirajući ih, zbog čega je neophodno bilo znati aktivnosti radionuklida u njihovom jestivom dijelu, u naše vrijeme, a prateći savremene trendove u radioekologiji, neophodno je vršiti druga, raznovrsna istraživanja⁵². Na primjer, transfer radionuklida u tkiva ribe važan je za razumijevanje dinamike izotopa u akvatičnoj životnoj sredini [95]. Do sada istraživani koncentracioni faktori pokazali su sposobnost riba da akumuliraju neke radionuklide iz vode čak i onda kada se radi o njihovim veoma malim koncentracijama [96-98]. S druge strane, uprkos dosadašnjem proučavanju, preuzimanje radionuklida, distribucija i bioakumulacija u različitim vrstama riba, nijesu dobro poznati [97], i neophodna su opsežna istraživanja, a višedetektorska 4π gama spektrometrija u tome može značajno pomoći.

⁵² International Union of Radioecology: <http://www.iur-uir.org>; Radioecology in 2012 – Current research directions and trends for the future.

8. ISTOVREMENA DETEKCIJA CEZIJUMA, KALIJUMA RADIJUMA I TORIJUMA

8.1. Problemi pri mjerenju ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{232}Th u uzorku

S obzirom na karakteristike NaI(Tl) detektora i spektrometra PRIPJAT-2M, fotopikovi na energijama 583, 609 i 662 keV ne mogu biti razdvojeni. Zbog toga, ako ispitivani uzorak sadrži ^{137}Cs , ^{226}Ra i ^{232}Th , a mjerenje se vrši u nekoincidentnom (ili integralnom) režimu rada, to može da utiče na tačnost mjerenja. Takođe, kao što je rečeno u poglavlju 7, u režimu dvostrukih koincidencija, nemoguće je razdvojiti pikove na energijama 583 keV i 609 keV.

Fotopik na energiji 911 keV prisutan je u integralnom i nekoincidentnom spektru, ali je i to (kao što je rečeno u 3.5.3) pik nastao preklapanjem pikova više torijumskih γ -zraka – sa energijama 860.564 keV – γ -zrak ^{208}Pb (12.42 %), i 911.204 (25.8 %), 964.766 (4.99 %), 968.971 (15.8 %) keV – γ -zranci iz raspada ^{228}Th . Ipak, najveći doprinos ovom fotopiku daje γ -zrak energije 911.204 keV. S druge strane, ovoj energetske oblasti mogli bi doprinositi i γ -zranci radijuma (tačnije ^{214}Po) energije 934.061 keV (3.03 %), u zavisnosti od odnosa ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorku.

U poglavlju 6 ukazano je na prednosti koje ima korišćenje fotopika na energiji 2615 keV za određivanje aktivnosti torijuma. Stoga, mjerenje je neophodno vršiti u režimu [1-1]-[2-2]. U spektru dvostrukih koincidencija, aktivnost torijuma treba odrediti pomoću ovog fotopika (2615 keV), tako da je nakon toga moguće odrediti doprinos γ -zraka energije 583 keV zajedničkom radijum-torijum (583 keV + 609 keV) fotopiku, i tada (nakon korekcija na doprinos fotona 583 keV i drugih, ranije pominjanih korekcija) odrediti aktivnost radijuma. Na osnovu doprinosa fotopikova na energijama 583 keV i 609 keV – spektru snimljenom u nekoincidentnom režimu rada, odbroji (tj. brzina brojanja) u regionu nerazdvojenih fotopikova (583 keV, 609 keV i 662 keV) se koriguju, i isključuje se doprinos ^{232}Th i ^{226}Ra , prije nego što se odredi aktivnost ^{137}Cs [99]. Treba napomenuti da, pri analizi spektara i izračunavanju aktivnosti, softver traži potvrdu da li u analizu uključivati ^{214}Bi , kao i da li uključivati ^{137}Cs , itd.

Mjereći tokom 2600 s realnog vremena⁵³ izvore ^{137}Cs i ^{40}K (živo vrijeme: 2500.5 s i 2284.5 s, respektivno), te ^{226}Ra i ^{232}Th (živa vremena: 1673.3 s i 2065.9 s, respektivno), koristeći spektrometrijski sistem PRIPJAT-2M, uz već (prethodno) navedene efikasnosti registracije fotopikova (tabele 4.3.2, 5.2.2 i 6.2.2), određene su minimalne detektibilne aktivnosti radioizotopa (izraz (4.1)) za dato vrijeme mjerenja, kako je to navedeno u tabeli 8.1.1 [99].

Tabela 8.1.1. Minimalne detektibilne aktivnosti (2600 s realnog vremena mjerenja).

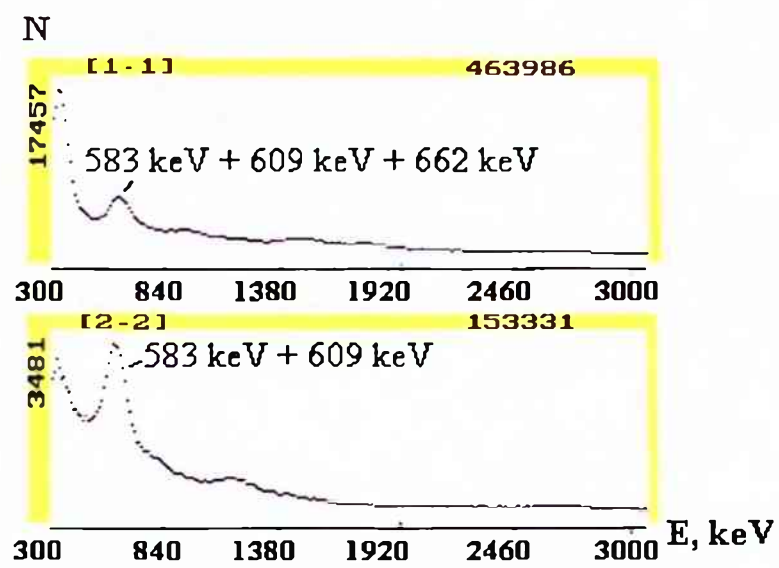
Fotopik [keV]	Režim rada	A_{\min} [Bq]
583	[1-1]	1.12
	[2-2]	0.73
609	[1-1]	0.65
	[2-2]	0.47
662	[1-1]	0.42
911	[1-1]	0.18
1460	[1-1]	0.46
2615	[1-1]	2.02
	[2-2]	1.82

8.1.1. Aktivnost ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorku zemljišta

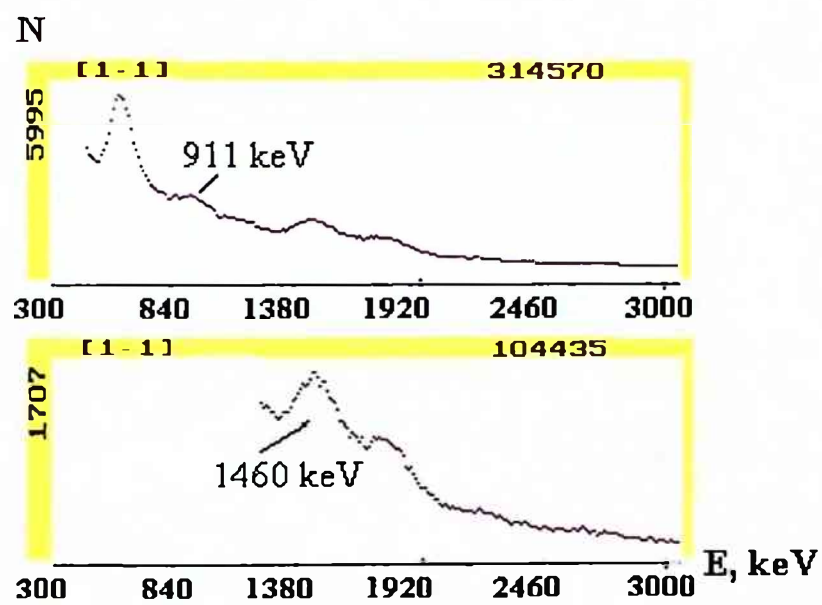
Uzorak zemljišta mase 1.088 kg uzet je sa dubine do 5 cm na poluostrvu Luštica (crnogorsko primorje, Herceg Novi). Uzorak je osušen na sobnoj temperaturi, homogenizovan u standardnoj proceduri, hermetički zatvoren u Marineli posudu zapremine 1 L, i nakon toga sniman pomoću spektrometra PRIPJAT-2M. Sumarni spektar dobijen za realno vrijeme mjerenja 2600 s (živo vrijeme: 2494.5 s), u nekoincidentnom i u režimu dvostrukih koincidencija (nakon što je oduzet odgovarajući fon), prikazan je na slici 8.1.1 [99].

Dobijeni spektri pokazuju prisustvo ^{226}Ra i ^{232}Th , kao i ^{137}Cs i ^{40}K (slika 8.1.1a). Neincidentni sumarni spektar je zumiran (od 462 keV do 3000 keV, i od 1207 keV do 3000 keV) i prikazan na slici 8.1.1b, dok su na slici 8.1.1c prikazane oblasti sumarnog spektra dvostrukih koincidencija – od 905 keV do 3000 keV, i od 2190 keV do 3000 keV.

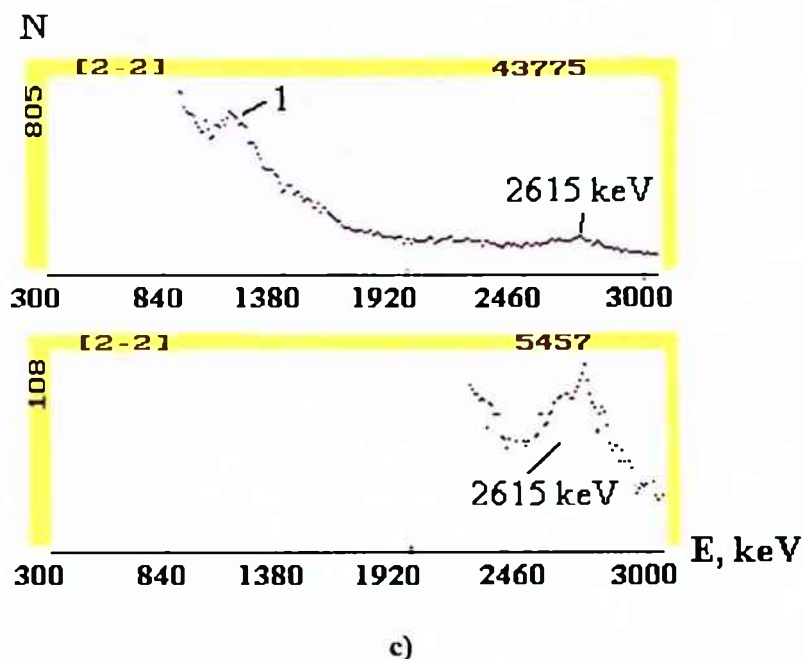
⁵³ u opsegu (300-3000) keV



a)



b)



Slika 8.1.1. Spektri uzorka zemljišta sa Luštice.

Torijum je određen preko fotopika na energiji 2615 keV u spektru dvostrukih koincidencija, i nakon toga, u istom spektru (dvostrukih koincidencija), određena je aktivnost radijuma preko fotopika energije 609 keV (nakon korekcije na torijum, tj. korekcije na doprinos fotona energije 583 keV). Aktivnost ^{137}Cs određena je preko fotopika energije 662 keV u nekoincidentnom spektru, nakon korekcija na doprinos radijuma i torijuma. Aktivnost kalijuma je određena preko fotopika na energiji od 1460 keV u nekoincidentnom spektru. Konačno, određena aktivnost ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th (tj. njihovih produkata raspada, u ravnoteži sa njima) bila je (19.85 ± 0.81) Bq, (602.17 ± 18.22) Bq, (321.79 ± 11.77) Bq i (91.66 ± 4.35) Bq, respektivno. Koncentracije aktivnosti radionuklida (A_k) date su u tabeli 8.1.2.

Isti uzorak izmjerjen je i pomoću koaksijalnog HPGe spektrometra (ORTEC – GEM – 40190, relativne efikasnosti 40 %). Rezultati dobijeni za 22 169.48 s realnog vremena (živo vrijeme: 22 000.58 s) su takođe dati u tabeli 8.1.2, i pokazuju dobru saglasnost sa rezultatima dobijenim pomoću spektrometra PRIPJAT-2M. Aktivnosti ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th određene su pomoću HPGe spektrometra analizom pikova na energijama 662 keV, 1460 keV, 609 keV i 911 keV, respektivno.

Tabela 8.1.2. Koncentracije aktivnosti ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th za uzorak zemljišta sa poluostrva Luštica.

Spektrometar	^{137}Cs [Bq kg ⁻¹]	^{40}K [Bq kg ⁻¹]	^{226}Ra [Bq kg ⁻¹]	^{232}Th [Bq kg ⁻¹]
PRIPJAT-2M	18.24±0.74	553.46±16.74	295.76±10.81	84.24±3.99
HPGe	18.61±0.72	524.63±17.75	306.86±9.93	90.87±3.35

8.1.2. Aktivnost ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorku kore bukve (*F. sylvatica*)

Da bi se provjerila primjenljivost metoda za različita radioekološka i radiobiološka istraživanja, urađena su i mjerenja u izabranim biotskim uzorcima. Na primjer, kora bukve *Fagus sylvatica* (Fagaceae) je uzorkovana u Pljevljima. Pažljivo je oprana da bi se odstranile nečistoće, osušena je na sobnoj temperaturi, homogenizovana, hermetički zatvorena u 250 mL cilindričnu plastičnu posudu. Uzorak mase 0.128 kg sniman je pomoću oba spektrometra (HPGe – živo vrijeme snimanja: 150 179.54 s, i PRIPJAT-2M – živo vrijeme: 4975.7 s). Dobijene aktivnosti za ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th bile su: (0.68±0.14) Bq, (10.48±1.6) Bq, (0.15±0.05) Bq i (0.40±0.18) Bq, respektivno; a u slučaju mjerenja pomoću HPGe spektrometra: (0.70±0.04) Bq, (10.62±0.50) Bq, (0.13±0.02) Bq i (0.39±0.11) Bq, respektivno. Njihove koncentracije aktivnosti (A_k) prikazane su u tabeli 8.1.3. Razlika u dobijenim rezultatima je oko 13 % – kod određivanja aktivnosti ^{226}Ra , dok je u ostalim slučajevima razlika manja od 10 % [99].

Važno je istaći da su ovo prva mjerenja ^{137}Cs i ^{40}K u ovoj biljnoj vrsti (*F. sylvatica*) u Crnoj Gori, kao što su i u prethodnim poglavljima predstavljena još neka, prvi put u Crnoj Gori urađena, radioekološka istraživanja.

Tabela 8.1.3. Koncentracija aktivnosti ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorku kore bukve (*F. sylvatica*).

Spektrometar	^{137}Cs [Bq kg ⁻¹]	^{40}K [Bq kg ⁻¹]	^{226}Ra [Bq kg ⁻¹]	^{232}Th [Bq kg ⁻¹]
PRIPJAT-2M	5.31±1.09	81.87±6.64	1.17±0.39	3.12±1.4
HPGe	5.46±0.31	82.29±3.9	1.01±0.15	3.05±0.85

8.1.3. Aktivnost ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorku ribe (*C. labrosus*)

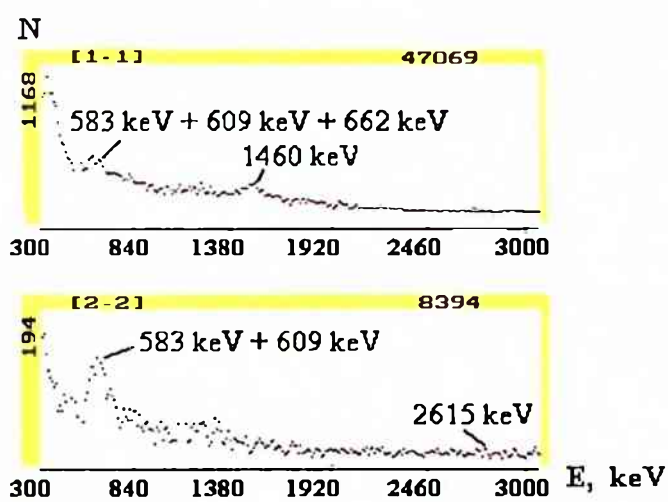
Prvo mjerenje radioaktivnosti u evro-mediteranskoj vrsti cipola (Mugilidae) *Chelon labrosus* (Risso, 1826), izvršeno je koristeći opisan metod i spektrometar PRIPJAT-2M. U uzorku od tri jedinke, prva je bila mase 0.45 kg i ukupne dužine 36 cm. Ona je samljevena i homogenizovana, hermetički zatvorena u Marineli posudu i snimana pomoću oba spektrometra (HPGe i PRIPJAT-2M). Živo vrijeme mjerenja spektrometrom PRIPJAT-2M iznosilo je 5000 s (sumarni nekoincidentni i spektar dvostrukih koincidencija prikazani su na slici 8.1.2), a HPGe spektrometrom – 176 480.6 s.

Dobijene vrijednosti za aktivnosti ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th su: (0.45±0.11) Bq, (19.12±2.02) Bq, (1.03±0.09) Bq i (0.55±0.08) Bq, respektivno. Rezultati pokazuju dobro slaganje sa rezultatima dobijenim pomoću HPGe spektrometra: (0.48±0.03) Bq, (20.81±1.06) Bq, (0.99±0.05) Bq i (0.60±0.07) Bq, respektivno; tj. razlike u rezultatima su manje od 9 %. Koncentracije aktivnosti date su u tabeli 8.1.4.

Mjerenja aktivnosti ^{137}Cs , ^{40}K , ^{214}Bi izvršena su i za preostale dvije jedinke, čije su ukupne dužine bile 38.3 cm i 41.6 cm, a mase 0.543 kg i 0.466 kg, respektivno. Cezijum-137 detektovan je samo u drugoj: (0.97±0.04) Bq kg⁻¹, a ^{40}K u obje – (94.34±3.82) Bq kg⁻¹ i (102.41±7.48) Bq kg⁻¹, respektivno. Koristeći fotopik na energiji 609 keV, određena je aktivnost (samo) ^{214}Bi (jer radioaktivna ravnoteža ^{226}Ra i njegovih potomaka nije bila uspostavljena) u iznosu (0.84±0.13) Bq kg⁻¹ i (0.87±0.18) Bq kg⁻¹, respektivno.

Tabela 8.1.4. Koncentracija aktivnosti ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorku ribe (*C. labrosus*).

Spektrometar	^{137}Cs [Bq kg ⁻¹]	^{40}K [Bq kg ⁻¹]	^{226}Ra [Bq kg ⁻¹]	^{232}Th [Bq kg ⁻¹]
PRIPJAT-2M	1.00±0.24	42.48±4.48	2.28±0.20	1.22±0.17
HPGe	1.06±0.06	46.24±2.35	2.2±0.11	1.33±0.15



Slika 8.1.2. Sumarni nekoincidentni i spektar dvostrukih koincidencija (*C. labrosus*).

9. RAZMATRANJE MOGUĆNOSTI DETEKCIJE PRODUKATA RASPADA ^{235}U

Izotopski sastav prirodnog uranijuma je: ^{234}U (0.0054 % – atomski udio, 48.9 % – aktivnost), ^{235}U (0.72 % – atomski udio, 2.2 % – aktivnost) i ^{238}U (99.275 % – atomski udio, 48.9 % – aktivnost) [100]. Zemljina kora, na primjer, ima u prosjeku oko 3 ppm (3 g/t) uranijuma, a morska voda – 3 ppb (3 mg/t). Treba napomenuti da, pored prirodnih izotopa uranijuma, postoje i vještački, i to: ^{232}U , ^{233}U , ^{236}U i ^{237}U .

Najčešće korišćene tehnike određivanja/mjerenja ^{235}U su masena spektrometrija [101], termalna jonizaciona masena spektrometrija (TIMS) [102], induktivno kuplovana plazmena masena spektrometrija (MC-ICPMS) [103], alfa spektrometrija [104] i gama spektrometrija [105].

Kao osnov za buduća istraživanja, razmatrana je mogućnost detekcije gama zraka iz niza raspada ^{235}U i spektrometrom PRIPJAT-2M [85, 106].

Za γ -spektrometrijsko određivanje aktivnosti radionuklida u uzorku, poželjno je da γ -zrak koji formira pik ima što veći relativni intenzitet, da se nalazi u povoljnom dijelu energetskog spektra, i da se oko njega nalazi što manje pikova koji potiču od drugih gama zraka. Karakteristike višedetektorskog spektrometra PRIPJAT-2M takve su da je donji energetski prag detekcije 200 keV. Poluprovodnički germanijumski detektori koji su korišćeni u istraživanjima u okviru ove doktorske disertacije imaju energetski opseg od 40 keV do 3000 keV.

Iz šema raspada ^{235}U i njegovih potomaka (poglavlje 2), zaključuje se da je samo 8 γ -zraka sa relativnim intenzitetom većim od 10 % (tabela 2.2.2). Svi oni se nalaze u „donjem” dijelu spektra (do 350 keV), a 2 imaju energiju ispod 40 keV (γ -zranci koji prate raspade ^{231}Th i ^{231}Pa), pa se ne mogu detektovati ni standardnim HPGe spektrometrom.

Prvi raspad u nizu (α -raspad ^{235}U do ^{231}Th) praćen je emisijom 71 gama zraka. U tabeli 9.1.1 navedeno je najintenzivnijih šest ($I > 1\%$). Pošto ovi γ -zranci imaju energije ≤ 200 keV, nijesu pogodni za detekciju pomoću spektrometra PRIPJAT-2M. S druge strane, prilikom detekcije i kvantitativnog određivanja ^{235}U u uzorku korišćenjem poluprovodničkih detektora, analiziraju se pikovi na energijama 143.764 keV, 163.358 keV i 205.309 keV. Pik na energiji

185 keV, iako ima najveći intenzitet, ne može se koristiti u analizi jer predstavlja dublet nerazdvojenih pikova.

Tabela 9.1.1. Najintenzivniji gama zraci koji prate raspad ^{235}U u ^{231}Th .

E_γ [keV]	I [%]
185.712	57.2
143.764	10.96
163.358	5.08
205.309	5.01
109.16	1.54
202.111	1.08

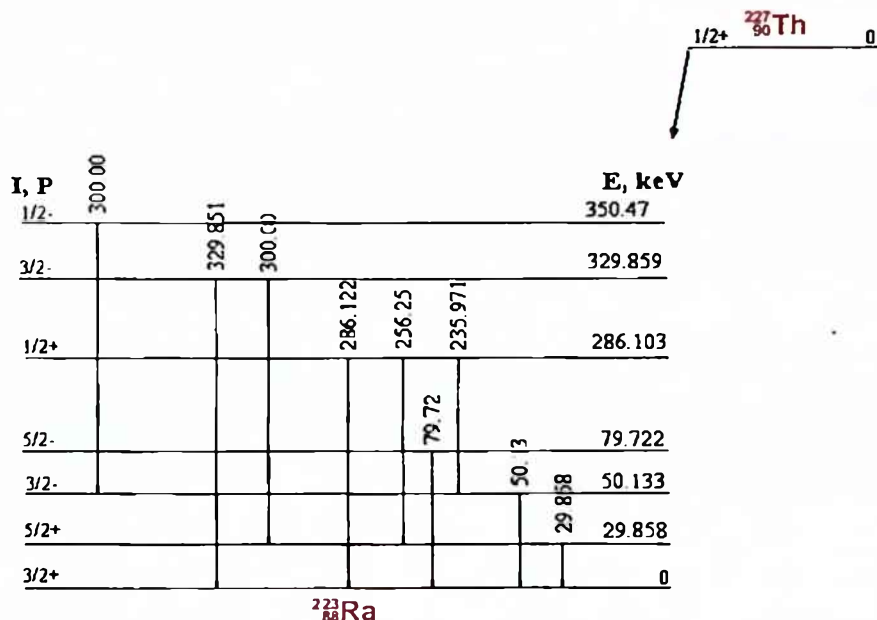
Navedeni raspad (slika 2.2.2) prati veliki broj dvostrukih, trostrukih i višestrukih kaskada fotona, ali se ne mogu iskoristiti za određivanje aktivnosti ^{235}U u uzorku pomoću spektrometra PRIPJAT-2M. Na primjer, dvostruki kaskadni prelazi su: 202.111 keV (1.08 %) + 185.712 keV (57.2 %) i 202.111 keV (1.08 %) + 143.764 keV (10.96 %).

Među 64 γ -zraka koji prate β^- -raspad ^{231}Th u ^{231}Pa , samo dva imaju relativni intenzitet veći od 1 %, a njihove energije su takve da se ne mogu detektovati pomoću NaI(Tl) detektora koji čine PRIPJAT-2M. Najintenzivniji zrak ima energiju 25.646 keV, tako da se ne može detektovati ni standardnim HPGe spektrometrom. Isti slučaj je i sa gama zrakom koji prati raspad ^{231}Pa u ^{227}Ac (27.3 keV, 10.3 %).

Takođe, gama zraci koji prate raspad ^{227}Ac u ^{227}Th i ^{223}Fr neupotrebljivi su u gama spektrometriji, pošto su im relativni intenziteti daleko ispod 1 %.

Najintenzivniji gama zraci koji prate raspad ^{227}Th u ^{223}Ra (slika 9.1.1) navedeni su u tabeli 9.1.2 [107]. Problem koji se javlja pri analizi gama zraka energije 235.971 keV (najvećeg relativnog intenziteta – 12.3 %), vezan je za činjenicu da se u gama spektru, dobijenom mjerenjem uzoraka iz životne sredine, javljaju i gama zraci energija 238.632 keV (43.3 %) koji prate raspad ^{212}Pb (niz ^{232}Th), i 241.997 keV (7.43 %) iz raspada ^{214}Pb (niz ^{238}U). Pikove ovih zraka NaI(Tl) detektori ne mogu razdvojiti, tako da se ne može dobiti informacija o aktivnosti ^{227}Th , odnosno ^{235}U (uz problem donjeg energetskog praga kod PRIPJAT-2M spektrometra). S druge strane, pik na energiji 300 keV (2.32 %), osim zraka bliskih energija iz istog raspada, „pune” gama zraci koji prate raspad ^{231}Pa (300.07 keV, 2.46 %; 302.65 keV, 2.2 %), kao i gama zrak koji prati raspad ^{212}Pb (300.087 keV, 3.28 %) (niz ^{232}Th). Gama zraci 50.13 keV, 79.72 keV, 93.93 keV i 210.65

keV (tabela 9.1.2) ne mogu poslužiti za određivanje aktivnosti ^{227}Th pomoću višedetektorskog spektrometra PRIPJAT-2M, dok eventualna detekcija gore/prethodno navedenih pikova zahtijeva dodatne analize.



Slika 9.1.1. Dio šeme raspada ^{227}Th (najintenzivniji γ -zraci).

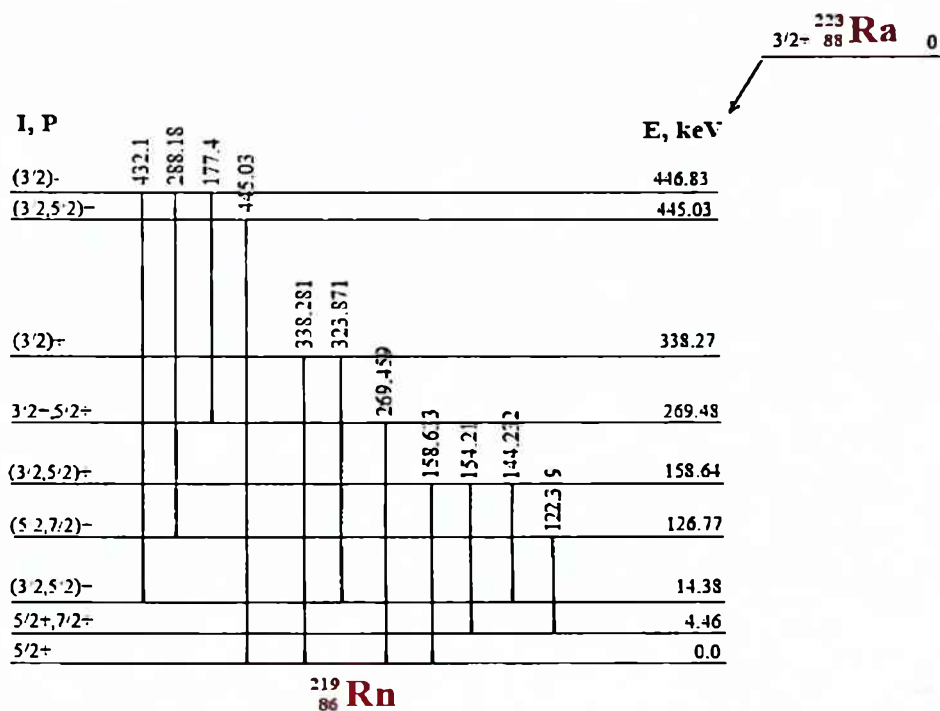
Tabela 9.1.2. Najintenzivniji gama zraci koji prate raspad ^{227}Th u ^{223}Ra .

E_γ [keV]	I [%]
235.971	12.3
50.13	8.0
256.25	7.0
329.851	2.7
300.00	2.32
79.72	1.89
286.122	1.54
93.93	1.37
304.519	1.2
210.65	1.11
334.381	1.05

Kao što je rečeno u poglavlju 2, ^{223}Fr se raspada na dva načina – uz emisiju velikog broja gama zraka ($138 + 4$), ali samo jedan ima intenzitet veći od 10 % (50.13 keV, 36 %) – neupotrebljiv u slučaju spektrometra PRIPJAT-2M.

Astatin-219 prelazi u ^{219}Rn (β^- -raspadom) i u ^{215}Bi (α -raspadom), koji se dalje transformiše u ^{215}Po . I ^{219}Rn se transformiše u ^{215}Po (a među pratećim γ -zracima, onaj energije 271.23 keV ima najveći intenzitet – 10.8 %). Polonijum-215 se β^- -raspadom transformiše u ^{215}At (vjerovatnoća raspada je svega $2.3 \cdot 10^{-4}$ %), i taj prelaz nije praćen emisijom gama zraka, dok je α -raspad u ^{211}Pb praćen emisijom jednog gama zraka. Gama zrak čijom emisijom deekscituje ^{211}Pb (energije 438.8 keV) ima nizak relativni intenzitet (0.04 %), te se on ne koristi za određivanje aktivnosti ^{235}U .

Iz šeme raspada ^{223}Ra u ^{219}Rn (slika 9.1.2) vidi se da 7 intenzivnih γ -zraka (tabela 9.1.3) ne čine kaskade [107]. Zraci energija 154.21 keV, 144.232 keV i 122.319 keV ne mogu biti detektovani spektrometrom PRIPJAT-2M. Osim toga, ovaj sistem ne može da razdvoji fotopikove γ -zraka čije su energije 323.871 keV i 338.281 keV (pa njihovo eventualno korišćenje zahtijeva dodatne analize). Dakle, za određivanje aktivnosti ^{223}Ra , odnosno ^{235}U , ostaju samo dva γ -zraka (energija 269.459 keV i 445.03 keV). Prvi gama zrak, kada se koristi energetski opseg od 200 keV do 2000 keV, *preklapa* se sa gama zrakom energije 270.245 keV (3.46 %) koji prati raspad ^{228}Ac (u nizu ^{232}Th). U energetskom opsegu od 300 keV do 3000 keV, gama zrak energije 269.459 keV ne može biti detektovan, a treba imati u vidu da zrak energije 445.03 keV ima relativno nizak intenzitet.

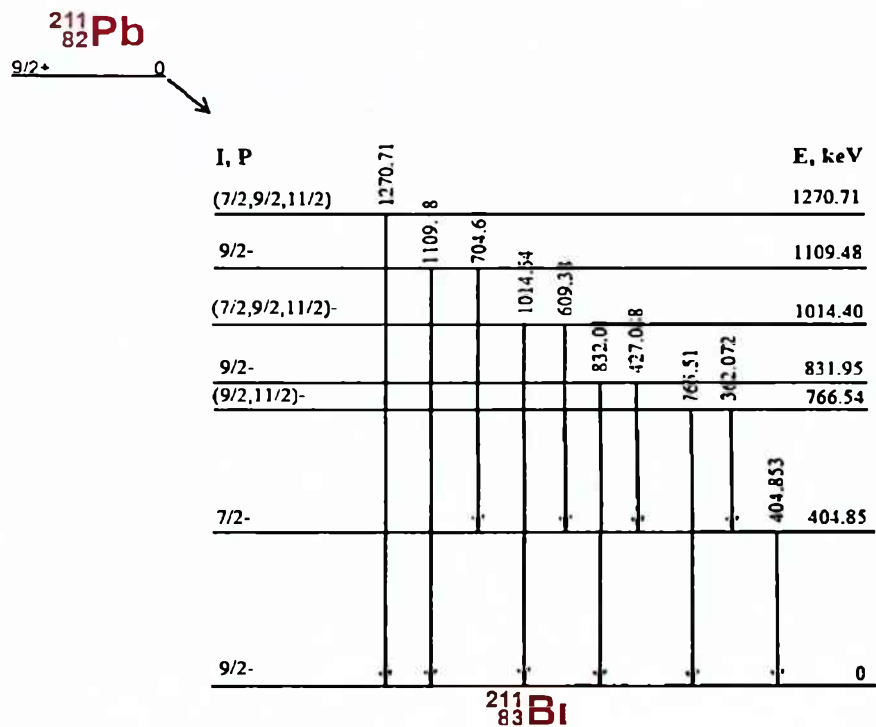


Slika 9.1.2. Dio šema raspada ^{223}Ra .

Tabela 9.1.3. Najintenzivniji gama zruci koji prate raspad ^{223}Ra u ^{219}Rn .

E_γ [keV]	I [%]
269.459	13.7
154.21	5.62
323.871	3.93
144.232	3.22
338.281	2.79
445.03	1.27
122.319	1.19

Astatin-215 se transformiše u ^{211}Bi , kao i ^{211}Pb , čiji raspad prati emisija gama zračenja (slika 9.1.3). U tabeli 9.1.4 navedeno je 6 najintenzivnijih gama zraka iz tog raspada.



Slika 9.1.3. Dio šeme raspada ^{211}Pb .

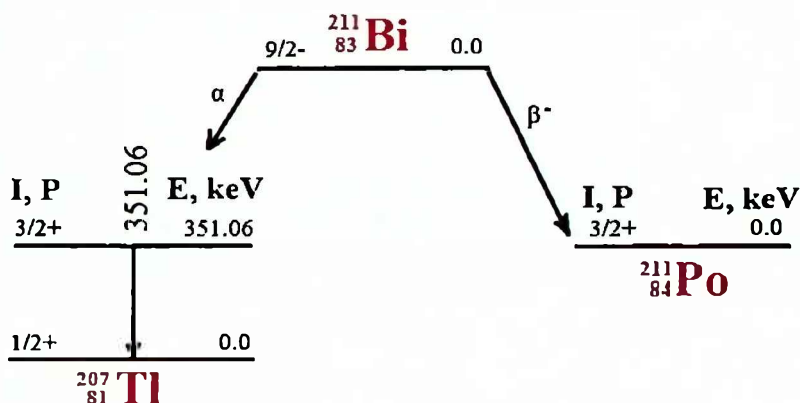
Tabela 9.1.4. Najintenzivniji gama zruci koji prate raspad ^{211}Pb u ^{211}Bi .

E_γ [keV]	I [%]
404.853	3.78
832.01	3.52
427.088	1.76
766.51	0.617
704.64	0.462
1109.48	0.115

Iz šeme raspada ^{211}Pb slijedi da su dvostruke kaskade: 427.088 keV + 404.853 keV; 704.64 keV + 404.853 keV, 362.072 keV + 404.853 keV, 546 keV + 404.853 keV, 609.38 keV + 404.853 keV, 676.69 keV + 404.853 keV, 865.93 keV + 404.853 keV. Javljaju se i trostruke kaskade, sa najintenzivnijim gama zrakom na kraju kaskade (404.853 keV): 65.450 keV + 362.072 keV + 404.853 keV, 313.59 keV + 362.072 keV + 404.853 keV, 342.91 keV + 362.072 keV + 404.853 keV, 430 keV + 362.072 keV + 404.853 keV, 504.12 + 362.072 keV + 404.853 keV, 95 keV + 609.38 keV + 404.853 keV [107].

S obzirom na niske relativne intenzitete gama zraka koji prate raspad ^{211}Pb , neophodne su dalje detaljne analize mogućnosti i eventualne detekcije spektrometrom PRIPJAT-2M.

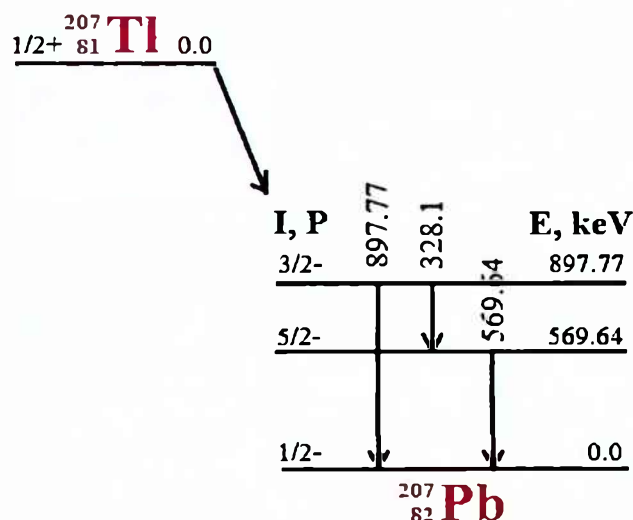
Na slici 9.1.4 predstavljen je raspad ^{211}Bi , dok je njegov izdvojeni α -raspad do ^{207}Tl dat prethodno (slika 2.2.3). On je praćen jednim gama zrakom, energije 351.06 keV i relativnog intenziteta 12.91 % [107], i njegova detekcija spektrometrom PRIPJAT-2M je najizglednija. Međutim, to zahtijeva dodatne i sveobuhvatne analize, tim prije što, osim zraka iz ovog niza koji bi mogli „puniti“ datu oblast u spektru, ako se radi o uzorcima iz životne sredine, pik će (dominantno) „puniti“ γ -zrak energije 351.932 keV (37.6 %) iz β^- -raspada ^{214}Pb (niz ^{238}U). Takođe, u toj se energetske oblasti nalazi gama zrak energije 295.224 keV (19.3 %) – takođe iz raspada ^{214}Pb . Iako se u ovoj energetske oblasti nalazi i pik gama zraka koji prati β^- -raspad ^{210}Tl u ^{210}Pb (298 keV, 79 %) – iz niza ^{238}U , α -raspad ^{214}Bi u ^{210}Tl ima vjerovatnoću 0.021 %, tako da ovaj zrak ne bi trebalo da (značajnije) utiče na formiranje pika u energetske oblasti oko 350 keV.



Slika 9.1.4. Šema raspada ^{211}Bi .

Beta minus raspad ^{207}Tl , tokom deekscitacije ^{207}Pb (slika 9.1.5), prate 3 γ -zraka veoma niskih intenziteta, zbog čega je ove zrake veoma teško detektovati u uzorcima iz životne sredine.

Gama zraci ne prate β^- -raspad ^{211}Bi u ^{211}Po (slika 9.1.4), čiji se dalji prelaz (α -raspadom) u stabilno olovo ^{207}Pb (slika 2.2.4) vrši uz emisiju tri γ -zraka, ali niskih intenziteta (najveći intenzitet ima zrak energije 897.8 keV – 0.561 %).



Slika 9.1.5. Šema raspada ^{207}Tl .

Konačno, aktivnost ^{235}U i njegovih potomaka do sada nije određivana pomoću višedetektorskog spektrometra PRIPJAT-2M, što znači da bi to moglo biti predmet budućih istraživanja. Ne treba izgubiti iz vida da, pored toga što karakteristike spektrometra PRIPJAT-2M (sa njegovim trenutnim karakteristikama) ne omogućavaju laku detekciju i analizu γ -zraka koji prate raspad ^{235}U , otežavajuća okolnost za γ -spektrometrijsku detekciju ^{235}U u uzorcima iz životne sredine je i njegov mali udio (svega 0.72 %). No, predmet budućih istraživanja bi mogla biti i mogućnost određivanja ^{235}U preko mjerenja ^{238}U i njegovih potomaka, upravo znajući njihove međusobne odnose. Neka početna (test) istraživanja u energetsom opsegu (200-2000) keV su već urađena, razmatrani su oni radionuklidi iza čijih raspada slijede intenzivniji zraci energija iznad 200 keV, a posebne analize su urađene za 235.971 keV ($I = 12.3\%$), 269.459 keV ($I = 13.7\%$) i 351.06 keV ($I = 12.91\%$) – iz α -raspada ^{227}Th (u ^{223}Ra), ^{223}Ra (u ^{219}Rn) i ^{211}Bi (u ^{207}Tl), respektivno.

10. RADIOMETRIJSKI REŽIM SPEKTROMETRA

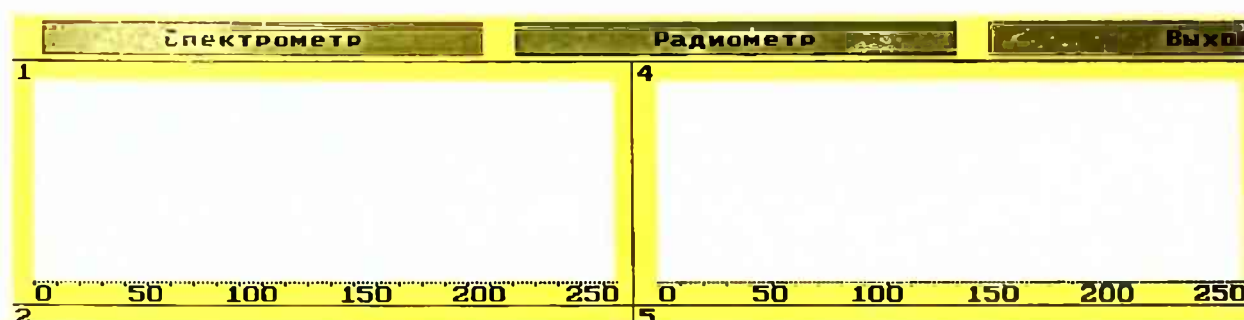
Skorašnja modifikacija prateće elektronike spektrometra PRIPJAT i pratećeg softvera (PRIP), poboljšala je karakteristike uređaja, proširila mu mogućnosti i, osim u

spektrometrijskom, omogućila analizu spektara i u radiometrijskom režimu rada (onda kada je izotopski sastav izvora poznat) [40]. U ovom režimu, koriste se *matrični metod* i podaci dobijeni mjerenjem standarda odgovarajućih izotopa različitih masa i gustina.

10.1. Radiometrijski režim rada

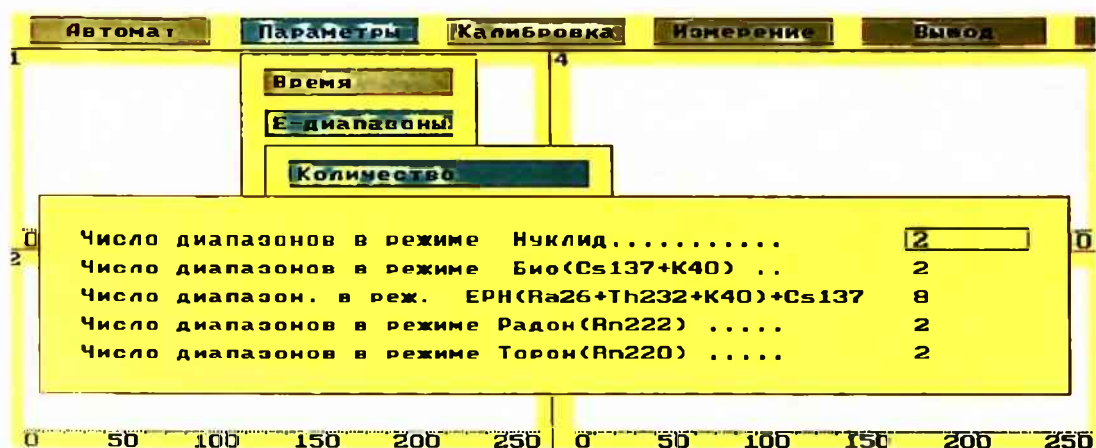
10.1.1. Softver PRIP

Softver PRIP nakon modifikacije, dozvoljava izbor režima rada – spektrometrijski ili radiometrijski (slika 10.1.1).



Slika 10.1.1. Izbor režima rada (softver PRIP).

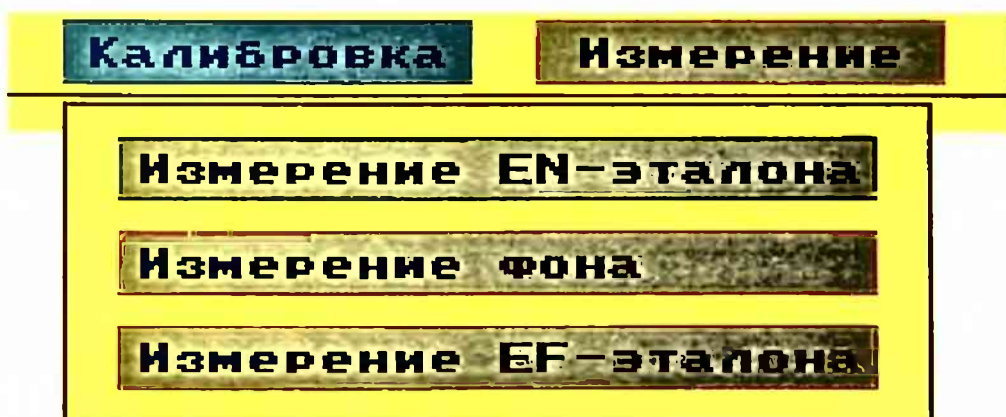
Dozvoljava dalje, u radiometrijskom režimu, kompletnu automatsku obradu spektara, izbor parametara: *vrijeme* – vrijeme ekspozicije (realno, živo, integralno), format spektra (tj. izbor integralnog, nekoincidentnog, koincidentnog [različite višestrukosti] režima rada), vrijeme snimanja kalibracionih standarda (ENergetska i kalibracija EFikasnosti), itd.; *E-dijapazoni* – količina, tj. broj dijapazona u svim raspoloživim režimima rada (slika 10.1.2), i granice – početne i krajnje; *izvod* – ekran, printer, fajl; *automat* – režim *on-* ili *off-line*, mjerenje EN-etалona, fona, EF-etалona, režim mjerenja, izvod; *arhivacija* – arhiv spektara fona, spektara EN-etалona, EF-etалona [108].



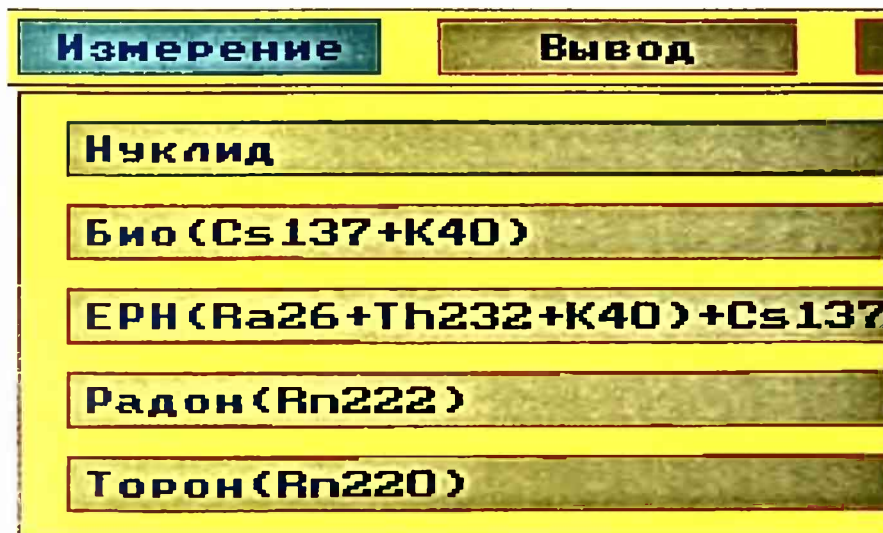
Слика 10.1.2. Примјер избора броја *E*-дијапазона на спектрометру PRIPJAT-2M у режиму »radiometar«.

Kalibracija zahtijeva mjerenje fona, EN- i EF-etалона (slika 10.1.3). Kao kalibracioni izvori koriste se matriksi (rastvori) sa većim brojem radionuklida (kao minimum $^{137}\text{Cs} + ^{40}\text{K}$, i češće $^{137}\text{Cs} + ^{40}\text{K} + ^{226}\text{Ra} + ^{232}\text{Th}$).

Konačno, rad je moguć u režimima: *nuklid*, *Bio* ($^{137}\text{Cs} + ^{40}\text{K}$), *EPH* ($^{226}\text{Ra} + ^{232}\text{Th} + ^{40}\text{K}$) + ^{137}Cs , *radon* (^{222}Rn) i *toron* (^{220}Rn) – slika 10.1.4.



Слика 10.1.3. »Kalibracija« у radiometrijskom režиму спектрометра PRIPJAT.



Слика 10.1.4. Распољиви режими рада (мјерења).

10.1.2. Osnovi matričnog metoda

Pri obradi spektara matričnim metodom, energetski dijapazon spektrometra dijeli se na intervale. Širina i položaj intervala za svaki konkretan zadatak mogu se odrediti iz uslova maksimalne stabilnosti rješenja sistema jednačina u odnosu na varijacije brzine brojanja u intervalima. *Reakcija* spektrometra na zračenje pojedinih radionuklida ili porodice radionuklida u ravnoteži (P_{ij}), za svaku geometriju mjerenja, određuje se eksperimentalno, kalibracionim mjerenjima, i unosi se u specijalni fajl u vidu matrice vrijednosti osjetljivosti spektrometra u energetskim intervalima [40]:

$$P_{ij} = \frac{S_{ij} - F_j}{A_i}, \quad (10.1)$$

gdje je i indeks radionuklida ili porodice radionuklida, j – indeks intervala, F_j – brzina brojanja fona u intervalu j ; S_{ij} – brzina brojanja u intervalu j od izvora koji sadrži radionuklid ili porodicu radionuklida i aktivnosti A_i .

Aktivnost radionuklida i u uzorku, određuje se iz sistema jednačina [40]:

$$\sum_{i=1}^n A_i \cdot P_{ij} = S_{ij} - F_j, \quad (10.2)$$

gdje su: A – aktivnost i -tog radionuklida ili porodice radionuklida, S_j – brzina brojanja impulsa u intervalu j pri mjerenju uzorka, F_j – brzina brojanja fona u j -tom intervalu.

Broj energetskih intervala bira se tako da broj jednačina bude veći od broja nepoznatih. Rješenje sistema u matričnom obliku je:

$$A = (P^T W P)^{-1} \cdot P^T W Y, \quad (10.3)$$

gdje su: A – vektor parametara rješenja sistema; P – (konstrukciona) matrica sastavljena od P_{ij} :

$$P = \begin{pmatrix} P_{11} & .. & P_{1i} & .. \\ .. & .. & .. & .. \\ P_{j1} & .. & P_{ji} & .. \\ .. & .. & .. & .. \end{pmatrix};$$

Y – vektor vrijednosti iz prvog dijela sistema jednačina ($S_j - F_j$); W – matrica, suprotna kovarijacionoj matrici vrijednosti Y .

U slučaju kada vrijednosti Y_j nijesu korelisane, matrica W ima dijagonalni oblik:

$$W = \begin{pmatrix} 1/\sigma_1^2 & .. & 0 & .. \\ .. & .. & .. & .. \\ 0 & .. & 1/\sigma_j^2 & .. \\ .. & .. & .. & .. \end{pmatrix},$$

gdje je σ_j – disperzija vrijednosti Y_j .

Ukupna relativna greška aktivnosti i -tog radionuklida ili porodice radionuklida (na nivou povjerenja 95 %), određuje se kao [108]:

$$\delta A_i = \delta A_{sist} + \frac{1}{A_i} \sqrt{\sum_{j=1}^n \left[\frac{\partial A_i}{\partial (S_j - F_j)} \right]^2 \cdot (\Delta S_j^2 + \Delta F_j^2)}, \quad (10.4)$$

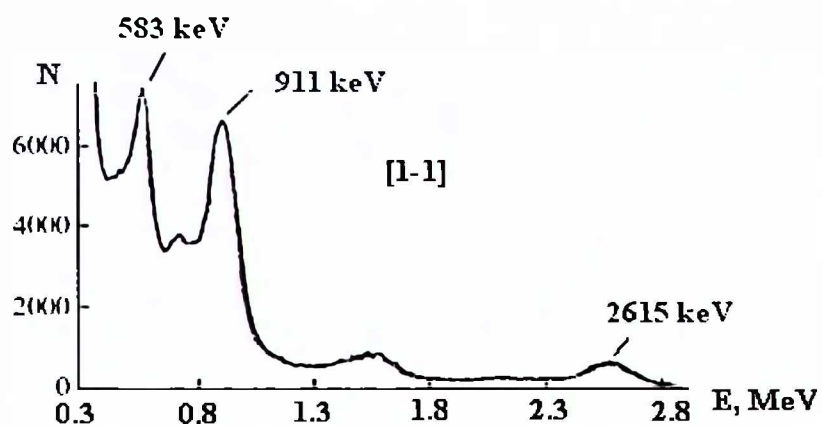
gdje su ΔS_j и ΔF_j – apsolutne vrijednosti statističke greške mjerenja i brzine brojanja fona u intervalu j ; δA_{sist} – sistematska greška određena pri provjeri spektrometra. Vrijednosti $\partial A_i / \partial (S_j - F_j)$ određuju se računski, rješavanjem sistema za vrijednost brzine brojanja koja je promijenjena za 0.1 %.

10.2. Mjerenje izvora ^{232}Th

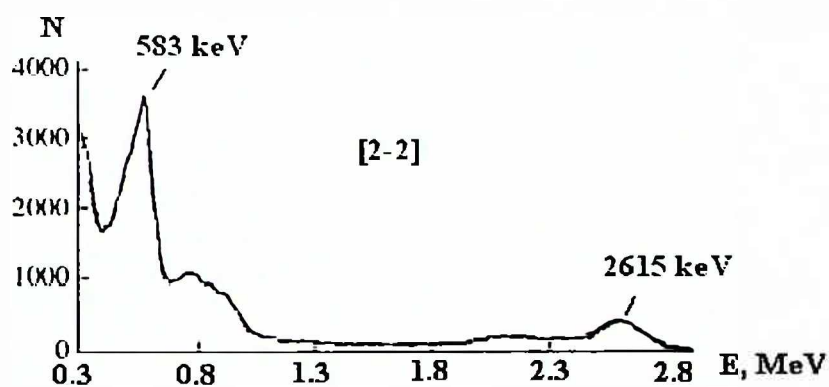
Sumarni spektri izvora ^{232}Th (aktivnosti 800 Bq), u rastvoru gustine 0.18 kg L⁻¹ (Institut za fiziku, Minsk), u nekoincidentnom ([1-1]) i režimu dvostrukih koincidenija ([2-2]), dati su na slici 10.2.1 (a i b, respektivno; $t = 1000$ s) [51]. Registracija torijuma, kao što je prethodno rečeno, zasnovana je na detekciji γ -zraka koji prate β^- -raspad njegovog potomka ^{208}Tl (583 keV i 2615 keV) – u nekoincidentnom i spektru dvostrukih koincidenija, kao i ^{228}Ac (911 keV) – u nekoincidentnom spektru.

Za spektrometar PRIPJAT-2M, efikasnosti detekcije (tj. fotoefikasnosti) i minimalne detektibilne aktivnosti torijuma, za vrijeme mjerenja 1000 s u spektrometrijskom i 100 s u radiometrijskom režimu rada, za spektar dvostrukih koincidenija, određene (spektrometrijski režim) i procijenjene (radiometrijski režim)⁵⁴, predstavljene su u tabeli 10.2.1 [108].

⁵⁴ na osnovu test mjerenja i drugih analiza



a)



b)

Slika 10.2.1. Spektri torijuma u nekoincidentnom (a), i režimu dvostrukih koincidencija (b).

Tabela 10.2.1. Efikasnost detekcije (ϵ) i minimalna detektibilna aktivnost (A_{\min}) torijuma za spektar dvostrukih koincidencija.

Fotopik u spektru dvostrukih koincidencija	Spektrometrijski režim $t = 1000 \text{ s}$		Radiometrijski režim ⁵⁵ $t = 100 \text{ s}$	
	ϵ	A_{\min} [Bq]	ϵ	A_{\min} [Bq]
583 keV	0.082	0.74	0.33	0.6
2615 keV	0.013	1.95	0.023	2.2

⁵⁵ PRIPJAT-2M: procjene

Analize su pokazale da je, za fotopik na energiji 911 keV u nekoincidentnom spektru, bez obzira što je efikasnost detekcije u radiometrijskom režimu veća nego u spektrometrijskom režimu, minimalna detektibilna aktivnost torijuma u oba režima ista, i za data vremena mjerenja iznosi 0.31 Bq. S druge strane, iz tabele 10.2.1 slijedi da bi se, u radiometrijskom režimu, za vrijeme mjerenja koje je za red veličine kraće nego u spektrometrijskom režimu, efikasnost detekcije značajnije povećala za γ -zrak energije 583 keV (4 puta), nego za γ -zrak energije 2615 keV (1.7 puta) [108]. Takode, minimalna detektibilna aktivnost torijuma preko fotopika 583 keV niža je u radiometrijskom režimu. Stoga, za detekciju torijuma u ovom režimu spektrometra PRIPJAT, povoljnije je koristiti fotopik na energiji 583 keV u spektru dvostrukih koincidencija, dok je u nekoincidentnom spektru najpovoljnije koristiti pik na energiji 911 keV – čime se obezbjeđuje najniža minimalna detektibilna aktivnost torijuma (i u spektrometrijskom i u radiometrijskom režimu rada).

Konačno, može se zaključiti da, u poređenju sa režimom »spektrometar«, radiometrijski režim rada spektrometra tipa PRIPJAT obezbjeđuje značajno kraće potrebno vrijeme snimanja spektara, kao i poboljšanje efikasnosti detekcije. U slučaju mjerenja ^{232}Th , najpovoljnije je koristiti fotopik na energiji 911 keV u nekoincidentnom, i fotopik na energiji 583 keV – u spektru dvostrukih koincidencija⁵⁶.

Međutim, analize, i ovdje predstavljeni rezultati, pokazali su da je dalji razvoj radiometrijskog režima spektrometara tipa PRIPJAT (uključujući i PRIPJAT-2M) i moguć i nužan, da bi se mogućnosti spektrometra dalje proširile, a njegovo korišćenje upotpunilo i omogućilo ekspresno mjerenje serije radionuklida u uzorcima iz životne sredine.

Da bi se radiometrijski režim na spektrometru PRIPJAT-2M koristio i dalje razvijao, neophodno je posjedovati kalibracione izvore (matrikse, tj. rastvore s većim brojem radionuklida, na primjer – $^{137}\text{Cs} + ^{40}\text{K} + ^{226}\text{Ra} + ^{232}\text{Th}$). Usljed nedostatka istih, radiometrijski metod je razvijan uglavnom u Laboratoriji za nuklearnu spektroskopiju Instituta za fiziku Akademije nauka Bjelorusije u Minsku, i samo dijelom na Prirodno-matematičkom fakultetu u Podgorici⁵⁷.

Iz istih razloga (nedostatka odgovarajućih izvora), i mjerenja izvora torijuma različite gustine izvršena su u Minsku (poglavlje 6 – 6.3). Na primjer, za određivanje minimalne

⁵⁶ Uz to što su neophodne dodatne analize, s obzirom na energetska rezoluciju spektrometra, a kada se radi o uzorcima koji (u respektabilnom iznosu) sadrže i radijum.

⁵⁷ test mjerenja i teorijske analize

detektibilne aktivnosti torijuma (preko fotopikova na energijama 583 keV, 911 keV i 2615 keV), u različitim režimima rada, korišćen je referentni izvor torijuma gustine 1.62 kg L^{-1} , zapremine 2 L i aktivnosti 1400 Bq. Poredeći spektrometrijski i radiometrijski režim, efikasnost detekcije fotona energije 583 keV u nekoincidentnom režimu, režimima dvostrukih i tro(i više)strukih koincidencija, u radiometrijskom režimu (za 100 s mjerenja) bila je veća 11.3 puta, 4.1 put i 2.1 put, respektivno (u odnosu na spektrometrijski režim i vrijeme mjerenja od 1000 s). U isto vrijeme, minimalna detektibilna aktivnost (Bq kg^{-1}), manja je 3.5 puta i 1.2 put (u nekoincidentnom i režimu dvostrukih koincidencija, respektivno), dok je u režimu [3-6] ona veća oko 1.5 puta [51].

Efikasnost detekcije fotona energije 2615 keV u nekoincidentnom režimu, režimima dvostrukih i koincidencija [3-6], u radiometrijskom režimu (za 100 s mjerenja) veća je 2.6 puta, 2.7 puta i 1.7 puta, respektivno (u odnosu na spektrometrijski režim i vrijeme mjerenja od 1000 s), a minimalna detektibilna aktivnost (Bq kg^{-1}) veća je 1.2 puta, 1.1 put i 1.2 puta, respektivno [51].

11. ZAVISNOST EFIKASNOSTI REGISTRACIJE I OSJETLJIVOSTI SPEKTROMETRA OD POZICIJE IZVORA, SAMOAPSORPCIJA – POČETNA ISTRAŽIVANJA

Pošto predmet budućih istraživanja treba da bude i kako se mijenja efikasnost registracije određenih gama zraka i osjetljivost spektrometra – u zavisnosti od položaja izvora unutar detekcione komore,⁵⁸ u okviru ove doktorske disertacije učinjen je samo prvi korak, i rezultati su dati samo kao ilustracija.

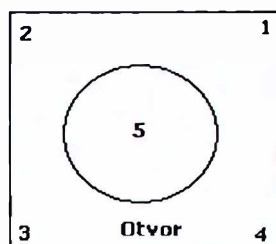
Takode, samoapsorpcija gama zračenja treba da bude predmet budućih istraživanja, a sa tim u vezi su takode urađena početna istraživanja.

11.1. Promjene u brzini brojanja šestog detektora – u zavisnosti od pozicije izvora

Efikasnost s kojom spektrometar detektuje zrake ^{137}Cs , ^{226}Ra i ^{232}Th analizirana je u poglavljima 4, 5 i 6, respektivno. Ovdje je izvršena (početna) procjena relativnih odnosa brzina brojanja spektrometra za navedena tri radionuklida u zavisnosti od njihovog položaja u detekcionoj komori, jer bi se na osnovu toga mogla procijeniti promjena efikasnosti spektrometra, odnosno *efekat krajeva*. Za ovo ispitivanje korišćeni su izvori ^{137}Cs (tačkasti izvor u kućištu – aktivnosti 25.81 kBq na dan 19. 04. 1983. godine, dok je aktivnost izvora u toku mjerenja bila 13.2 kBq), ^{232}Th (već pominjani izvor aktivnosti 1000 Bq) i izvor ^{226}Ra (takode pominjan u prethodnim poglavljima, aktivnosti 2250 Bq). Izvori su postavljani u krajeve/ćoškeve detekcione komore (oznake pozicija: 1, 2, 3, 4) i u centar iste (pozicija 5), na rastojanjima/visini 0 cm, 5 cm i 10 cm od donjeg (broj 6) detektora. Oznake detektora su prethodno prikazane (poglavlje 3, slika 3.1.1), dok su na slici 11.1.1 prikazane pozicije izvora u odnosu na otvor detekcione komore.

Mjerenja su vršena u integralnom, nekoincidentnom, kao i u režimima dvostrukih i trostrukih koincidencija, tokom 200 s realnog vremena.

⁵⁸ Pri razvoju prethodno opisanih metoda, izvori su smješteni u centar detekcione komore.



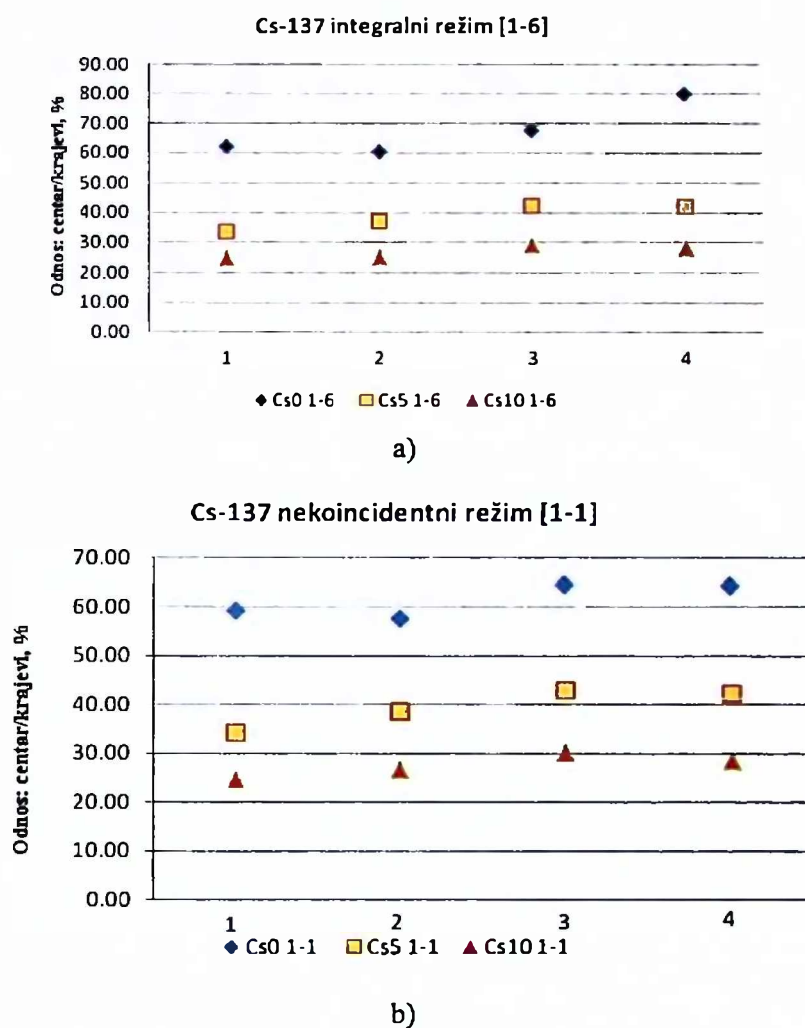
Slika 11.1.1. Šematski prikaz pozicija izvora u detekcionoj komori.

Odnos brzina brojanja kada je izvor u centralnoj poziciji (5) i kada se nalazi na *krajevima* (1, 2, 3 i 4), za tačkasti izvor ^{137}Cs varira u zavisnosti od pozicije i od visine – do 80 %, za visinu 0 cm od šestog detektora, na poziciji 4, u nekoincidentnom režimu. Na većem rastojanju od donjeg/šestog detektora, ova razlika se smanjuje. U tabeli 11.1.1 navedeni su rezultati mjerenja (tj. odnosi brzina brojanja), a na slici 11.1.2 je dat grafički prikaz (poređenje) dobijenih rezultata.

Tabela 11.1.1. Odnos brzina brojanja impulsa u fotopiku ^{137}Cs na energiji 662 keV – u integralnom i nekoincidentnom režimu rada spektrometra (šesti detektor).

Izotop, pozicija i režim rada ⁵⁹	Odnos imp/s: centralna pozicija/krajevi [%]	Izotop, pozicija i režim rada	Odnos imp/s: centralna pozicija/krajevi [%]
Cs 0-1 [1-6]	62.03	Cs 0-1 [1-1]	59.37
Cs 0-2 [1-6]	60.47	Cs 0-2 [1-1]	57.64
Cs 0-3 [1-6]	67.52	Cs 0-3 [1-1]	64.48
Cs 0-4 [1-6]	79.96	Cs 0-4 [1-1]	64.30
Cs 5-1 [1-6]	33.61	Cs 5-1 [1-1]	34.10
Cs 5-2 [1-6]	37.12	Cs 5-2 [1-1]	38.53
Cs 5-3 [1-6]	42.25	Cs 5-3 [1-1]	42.86
Cs 5-4 [1-6]	42.21	Cs 5-4 [1-1]	42.18
Cs 10-1 [1-6]	24.83	Cs 10-1 [1-1]	24.58
Cs 10-2 [1-6]	25.15	Cs 10-2 [1-1]	26.69
Cs 10-3 [1-6]	29.07	Cs 10-3 [1-1]	29.98
Cs 10-4 [1-6]	27.93	Cs 10-4 [1-1]	28.54

⁵⁹ Na primjer, oznaka Cs 5-1 [1-6] znači da se radi o izvoru ^{137}Cs , da je visina u odnosu na šesti detektor 5 cm, da se izvor nalazi u poziciji 1 (slika 11.1) – tj. u jednom od čoškova komore, i da je korišćen integralni režim mjerenja.



Slika 11.1.2. Poređenje odnosa brzina brojanja centar/krajevi za različite pozicije izvora ^{137}Cs u integralnom (a) i nekoincidentnom (b) režim rada.⁶⁰

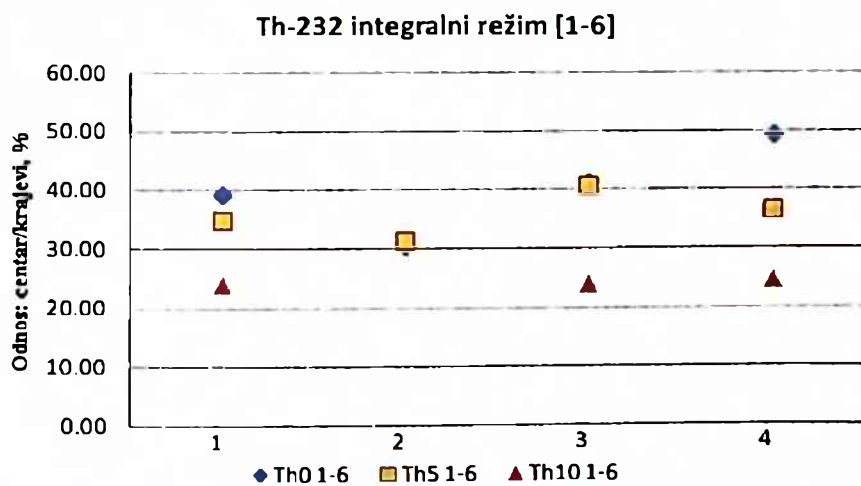
Grafici a) i b) na slici 11.1.2 pokazuju da brzine brojanja jednog (šestog) detektora, u slučaju ^{137}Cs , imaju skoro identične relativne odnose u oba režima u kojima se on može mjeriti (integralni i nekoincidentni). Odstupanja u brzini brojanja u odnosu na centralnu poziciju na visini 5 cm kreću se od 34 % do 42 %, dok su najmanja odstupanja uočena kada se izvor nalazi na visini od 10 cm (25-30) %.

⁶⁰ 0, 5 i 10 označavaju visinu pozicije izvora u odnosu na šesti detektor (u cm).

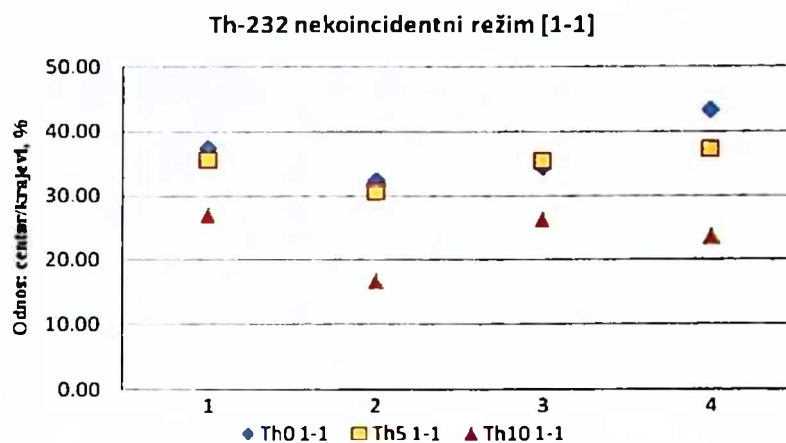
Odnosi brzina brojanja (centralna pozicija/krajevi) za ^{232}Th prikazani su u tabeli 11.1.2 i na slici 11.1.3 (integralni i nekoincidentni režim), kao i u tabeli 11.1.3 i na slici 11.1.4 (režim dvostrukih i trostrukih koincidencija). Na rastojanju 0 cm od šestog detektora (tj. detektora broj 6), odstupanja su do 49 % – za integralni, i do 43 % – za nekoincidentni režim rada. Za visinu od 5 cm, razlike se kreću od 30 % do 40 % za oba režima rada, a za visinu od 10 cm – odstupanja su između 20 % i 30 %. Kao i u slučaju ^{137}Cs , najmanje razlike u brzinama brojanja javljaju se za poziciju izvora torijuma na visini od 10 cm.

Tabela 11.1.2. Odnos brzina brojanja impulsa u fotopiku ^{232}Th na energiji 583 keV – u integralnom i nekoincidentnom režimu rada spektrometra.

Izotop, pozicija i režim rada	Odnos imp/s: centralna pozicija/krajevi [%]	Izotop, pozicija i režim rada	Odnos imp/s: centralna pozicija/krajevi [%]
Th 0-1 [1-6]	39.16	Th 0-1 [1-1]	37.47
Th 0-2 [1-6]	30.36	Th 0-2 [1-1]	32.39
Th 0-3 [1-6]	41.16	Th 0-3 [1-1]	34.40
Th 0-4 [1-6]	49.31	Th 0-4 [1-1]	43.39
Th 5-1 [1-6]	34.82	Th 5-1 [1-1]	35.63
Th 5-2 [1-6]	31.36	Th 5-2 [1-1]	30.76
Th 5-3 [1-6]	40.50	Th 5-3 [1-1]	35.52
Th 5-4 [1-6]	36.41	Th 5-4 [1-1]	37.31
Th 10-1 [1-6]	23.84	Th 10-1 [1-1]	26.82
Th 10-3 [1-6]	23.78	Th 10-3 [1-1]	26.23
Th 10-4 [1-6]	24.38	Th 10-4 [1-1]	23.64



a)

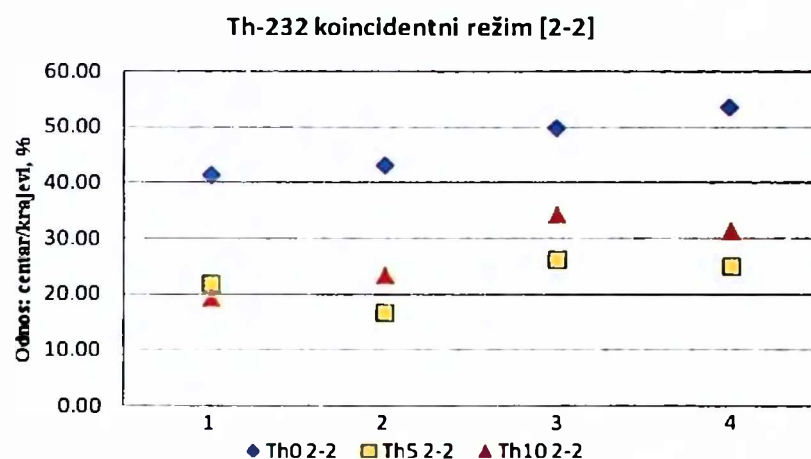


b)

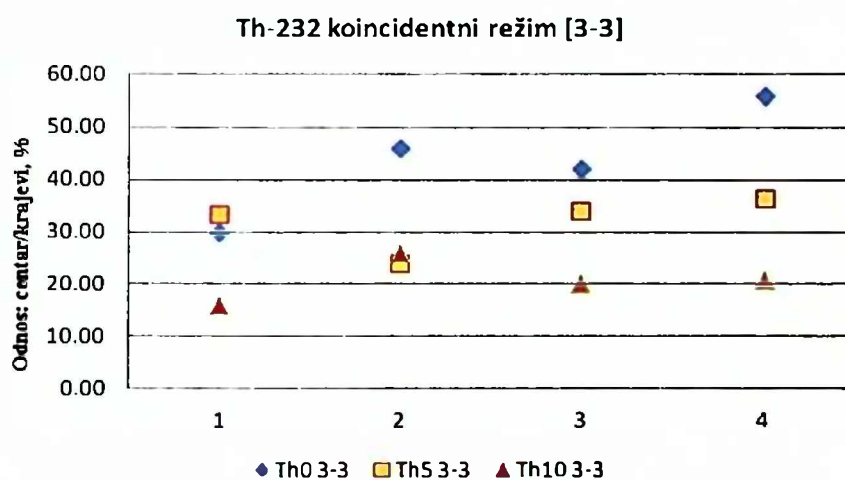
Slika 11.1.3. Poređenje odnosa brzina brojanja centar/krajevi za različite pozicije izvora ^{232}Th – u integralnom (a) i nekoincidentnom (b) režimu rada.

Tabela 11.1.3. Odnos brzina brojanja impulsa u fotopiku ^{232}Th na energiji 583 keV – u režimu dvostrukih i trostrukih koincidencija.

Izotop, pozicija i režim rada	Odnos imp/s: centralna pozicija/krajevi [%]	Izotop, pozicija i režim rada	Odnos imp/s: centralna pozicija/krajevi [%]
Th 0-1 [2-2]	41.41	Th 0-1 [3-3]	29.81
Th 0-2 [2-2]	43.17	Th 0-2 [3-3]	45.95
Th 0-3 [2-2]	49.80	Th 0-3 [3-3]	42.10
Th 0-4 [2-2]	53.48	Th 0-4 [3-3]	55.71
Th 5-1 [2-2]	21.89	Th 5-1 [3-3]	33.20
Th 5-2 [2-2]	16.64	Th 5-2 [3-3]	23.92
Th 5-3 [2-2]	26.23	Th 5-3 [3-3]	33.91
Th 5-4 [2-2]	24.98	Th 5-4 [3-3]	36.29
Th 10-1 [2-2]	19.28	Th 10-1 [3-3]	15.84
Th 10-2 [2-2]	23.38	Th 10-2 [3-3]	25.82
Th 10-3 [2-2]	34.22	Th 10-3 [3-3]	20.07
Th 10-4 [2-2]	31.20	Th 10-4 [3-3]	20.59



a)



b)

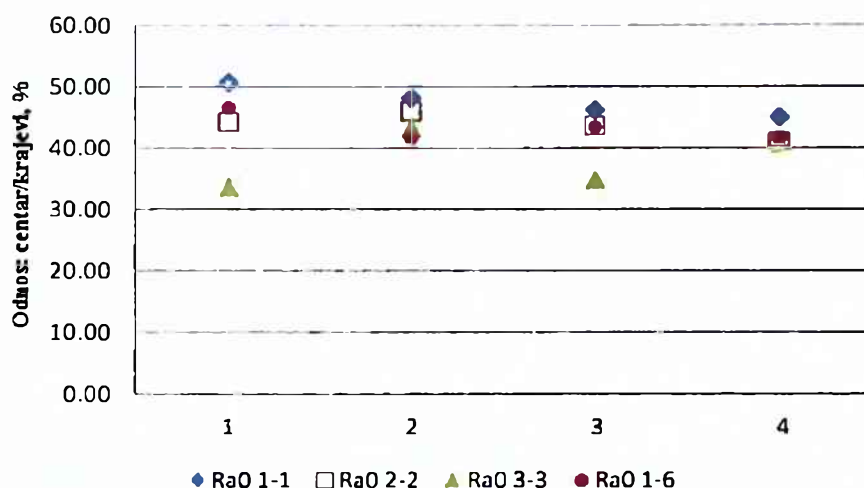
Slika 11.1.4. Poređenje odnosa brzina brojanja centar/krajevi za različite pozicije izvora ^{232}Th – u režimu dvostrukih koincidencija (a), i režimu trostrukih koincidencija (b).

U režimu dvostrukih koincidencija, najveće odstupanje iznosi 53.48 % (pozicija 4) na rastojanju 0 cm od šestog detektora (kao i u prethodnim slučajevima, najveće odstupanje je na *nultoj* visini). Odstupanja za pozicije izvora koje odgovaraju rastojanjima (visinama) 5 cm i 10 cm od posmatranog detektora, kreću se u opsegu (17-26) % i (20-31) %, respektivno. Režim trostrukih koincidencija pokazao je da su odstupanja za pozicije izvora torijuma na visini od 5 cm u opsegu (23-36) %, a za pozicije izvora na visini 10 cm – (16-21) %.

Odnosi brzina brojanja impulsa (centar/krajevi) za ^{226}Ra prikazani su u tabeli 11.1.4, dok je na slici 11.1.5 dato poređenje rezultata za različite pozicije izvora. Radijumski izvor je sniman samo na rastojanju 0 cm od ispitivanog detektora (tj. izvor je postavljan na šesti detektor), zbog dimenzija izvora, i razlike u brzinama brojanja kreću se od 42 % do 46 % – za integralni, od 45 % do 50 % – za nekoincidentni, te od 41 % do 46 % – za režim dvostrukih koincidencija, dok su u režimu trostrukih koincidencija razlike u brzinama brojanja do 41 % (za poziciju 4).

Tabela 11.1.4. Odnos brzina brojanja impulsa u fotopiku ^{226}Ra na energiji 609 keV – u integralnom, nekoincidentnom, režimu dvostrukih i trostrukih koincidencija.

Izotop, pozicija i režim rada	Odnos imp/s: centralna pozicija/krajevi [%]
Ra 0-1 [1-6]	46.54
Ra 0-2 [1-6]	41.60
Ra 0-3 [1-6]	43.47
Ra 0-4 [1-6]	41.75
Ra 0-1 [1-1]	50.67
Ra 0-2 [1-1]	48.20
Ra 0-3 [1-1]	46.21
Ra 0-4 [1-1]	45.04
Ra 0-1 [2-2]	44.27
Ra 0-2 [2-2]	46.04
Ra 0-3 [2-2]	43.68
Ra 0-4 [2-2]	40.96
Ra 0-1 [3-3]	33.66
Ra 0-2 [3-3]	43.30
Ra 0-3 [3-3]	34.87
Ra 0-4 [3-3]	40.62



Slika 11.1.5. Poređenje odnosa brzina brojanja centar/krajevi za različite pozicije izvora ^{226}Ra , u različitim režimima rada.

Razlike u brzini brojanja impulsa iz izvora koji se nalazi na krajevima (tj. u ćoškovima) detekcione komore, u odnosu na brzinu brojanja kada se izvor nalazi u centru iste, javljaju se za sve izvore, i na svim rastojanjima od ispitivanog (šestog) detektora. Detektori koji čine spektrometar imaju prečnik 15 cm i visinu 10 cm, nalaze se u blokovima čije su ivice dužine 17.5 cm, što znači da su površine detektora i strane detekcione komore 177 cm^2 i 306 cm^2 , respektivno. Jasno je da, kada se izvor nalazi na pozicijama 1, 2, 3 i 4, nalazi se u najlošijem položaju za detekciju, i to zbog toga što se ne nalazi na detektorima, već u uglu između najbliža dva ili tri. Najveća odstupanja se javljaju na visini od 0 cm, što je i očekivano, budući da je razmatran šesti detektor, a upravo na njega se postavljaju izvori pri mjerenjima spektrometrom PRIPJAT-2M.

Jasno je da su ovakve razlike u brzini brojanja uslovljene činjenicom da je posmatran samo jedan (šesti) detektor, da su geometrije bile različite, itd. Buduća istraživanja bi trebalo da (nakon analiza pojedinačnih detektora – neophodnih da bi se do kraja provjerio *efekat krajeva*) pokažu kako se mijenjaju efikasnost registracije pojedinih gama zraka i osjetljivost spektrometra u cjelini. Prethodno su, na primjer, istraživanja anizotropije osjetljivosti spektrometra tipa PRIPJAT koji se nalazi u Laboratoriji za nuklearnu spektroskopiju Instituta za fiziku Akademije nauka Bjelorusije u Minsku, pokazala da je maksimalno odstupanje efikasnosti od vrijednosti

kada je izvor u centru (razmatrane su pozicije – udaljenost 2 cm od ugla, i 1 cm od sredine „rebra“), za gama zrak energije 662 keV (^{137}Cs) – 11 %, dok je za gama zrake 583 keV i 2615 keV (^{232}Th) to bilo 16 i 20 %, respektivno [40].

11.2. Problem samoapsorpcije gama zračenja

Analiza radionuklida (gama emitera) u uzorcima iz životne sredine (u standardnoj HPGe spektrometriji, na primjer) oslanja se na mogućnost mjerenja uzoraka velikih zapremina (do 2 L). Međutim, u *velikom* uzorku, put emitovanog zraka do detektora je duži, a to, pored hemijskog sastava i gustine uzorka, utiče na atenuaciju, a samim tim na efikasnost detekcije i na osjetljivost uređaja. U gama spektrometriji ovaj efekat se naziva samoatenuacija ili samoapsorpcija, i on se u jednačini za određivanje aktivnosti tretira kao jedan od korekcionih koeficijenata, važan – jer moguće greške pri proračunu aktivnosti pojedinih radionuklida mogu biti i do 20 % [109-114].

Različiti metodi su razvijani da bi se prevazišao problem samoapsorpcije: poluempirijski [115], eksperimentalno određivanje koeficijenata, kalibracioni [116], kao i Monte Karlo simulacije [117, 118]. Jedan od načina da se smanji efekat samoapsorpcije je da se sistem kalibriše pomoću *istog* matriksa (ista gustina, isti oblik posude i slično, kao što će to biti u slučaju mjerenja ispitivanog uzorka), ali to zahtijeva veliki broj kalibracionih izvora, što je skupo.

Samoapsorpcija ima najveći uticaj na mjerenje zračenja energija do 200 keV [112], a njen doprinos mjernoj nesigurnosti u slučaju fotona većih energija se smanjuje. Spektrometar PRIPJAT-2M ne detektuje fotone čija je energija ispod 200 keV, ali bi svakako trebalo razmatrati efekte samoapsorpcije za fotone energija oko 600 keV (iz raspada ^{232}Th , ^{226}Ra i ^{137}Cs), ali i za one većih energija, te razviti odgovarajuće metode korekcija⁶¹.

U prethodnim istraživanjima u kojima je korišćen spektrometar PRIPJAT-2M, tj. njegova prethodna konfiguracija [119], pretpostavljalo se da su γ -zraci koji padaju na detektor međusobno paralelni, i da je uzorak cilindričnog oblika visine h postavljen blizu detektora.

⁶¹ U okviru ove doktorske disertacije te korekcije nijesu vršene.

Korišćena je aproksimativna formula koja u tom slučaju daje koeficijent koji iskazuje relativni značaj samoapsorpcije za γ -zrake energije 609 keV u uzorku vode [6]:

$$\chi^{\text{rel}} \approx [1 - \exp(-\mu h)]/(\mu \cdot h) \approx 0.1. \quad (11.1)$$

Ovo bi trebalo da bude maksimalni mogući gubitak prouzrokovan samoapsorpcijom [119], tim prije što je dobijen za granični slučaj – visina uzorka jednaka visini komore. Korišćen je linearni koeficijent apsorpcije γ -zraka energije 609 keV u vodi: $\mu = 0.0894 \text{ cm}^{-1}$.

Istraživanja [6] su takođe pokazala da za čvrste uzorke, gustine između (2000-2500) kg/m^3 , i mase (0.01-2) kg, vrijednosti koeficijenta samoapsorpcije ne odstupaju više od 5 % od vrijednosti navedene u izrazu (11.1).

Ovom prilikom izvršena su početna mjerenja standardnih izvora različitih gustina, da bi se samoapsorpcija u uzorku procijenila za fotone energije 662 keV. Izmjerena su dva standardna miksa radionuklida koji se nalaze u Marineli posudama zapremine 0.5 L (visine 9.9 cm), sa gustinama 1 g/cm^3 i 1.22 g/cm^3 , i to:

- standard u Marineli posudi od 0.5 L, $\rho = 1.0 \text{ g/cm}^3$, matriks (silikonska smola), radionuklidi: ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{88}Y , ^{203}Hg . Ukupna aktivnost (10. 03. 2001. godine) bila je $A = 41.85 \text{ kBq}$;
- standard u Marineli posudi od 0.5 L, $\rho = 1.22 \text{ g/cm}^3$, matriks (silikonska smola), radionuklidi: ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{88}Y , ^{203}Hg . Ukupna aktivnost (10. 03. 2001. godine) bila je $A = 55.20 \text{ kBq}$.

Brzine brojanja i efikasnosti detekcije ^{137}Cs pokazuju koliki je doprinos efekta samoapsorpcije, odnosno koliki je korekcionni koeficijent potrebno uvesti u odnosu na matriks (uzorak) gustine 1 g/cm^3 . Mjerenje je urađeno pomoću jednog (šestog) detektora – u nekoincidentnom režimu rada spektrometra PRIPJAT-2M (živa vremena mjerenja bila su 691.6 s i 689 s, respektivno). Takođe, izvršena su mjerenja HPGe detektorom (ORTEC – GEM – 40190,

relativne efikasnosti 40 %), u trajanju 1000 s živog vremena. U tabeli 11.2.1, prikazani su rezultati dobijeni iz mjerenja koja su izvršena 23. 11. 2012. godine.⁶²

Tabela 11.2.1. Fotoefikasnosti detekcije ^{137}Cs za HPGe detektor i jedan NaI(Tl) detektor koji ulazi u sastav višedetektorskog spektrometra PRIPJAT-2M.

Gustina matriksa (0.5 L)	Aktivnost ^{137}Cs u matriksu na dan mjerenja (Bq)	Fotoefikasnost za pik 662 keV (^{137}Cs)		Odnos fotoefikasnosti za pik 662 keV (^{137}Cs)	
		PRIPJAT-2M: detektor br. 6; režim [1-1]	HPGe	PRIPJAT-2M: detektor br. 6	HPGe
1 g/cm ³	1948.7	0.064193	0.019783	1.051144	1.037334
1.22 g/cm ³	2622.9	0.061070	0.019071		

Iz tabele 11.2.1 vidi se da se dobijeni odnosi fotoefikasnosti veoma dobro slažu za jedan NaI(Tl) detektor koji radi u nekoincidentnom ([1-1]) režimu i za HPGe detektor, što je i očekivano jer, iako se radi o različitim vrstama detektora, uzorci su mjereni na isti način, imaju identične karakteristike, osim gustine (hemijski sastav matriksa je isti, takode), te je uticaj samoapsorpcije na mjerenje identičan. Odnosno, u slučaju upotrebe samo jednog detektora (oba tipa), ukoliko bi se koristila fotoefikasnost za jediničnu gustinu, u proračunima za uzorak gustine 1.22 g/cm³ u Marineli posudi od 0.5 L, tada bi se zbog samoapsorpcije napravila greška do 5 %.

Nastavak istraživanja je neophodan, tj. potrebno je odrediti/ustanoviti korekzione koeficijente (kada se koristi cijeli spektrometar, sa svim njegovim svojstvima, uključujući 4π geometriju mjerenja) za fotone različitih energija (u uzorcima različitih gustina), uključujući i 1332 keV (^{60}Co), 1460 keV (^{40}K), 2614 keV (^{208}Tl), itd. – u integralnom, nekoincidentnom i koincidentnim⁶³ režimima rada.

⁶² Iako su određena istraživanja za pojedine detektore vršena i 2011. godine; a zbog početka nove modifikacije sistema (tj. zamjene prateće elektronike), ovom prilikom nijesu urađena kompletna istraživanja – za sve detektore i spektrometar u cjelini.

⁶³ za fotone koji se tada registruju

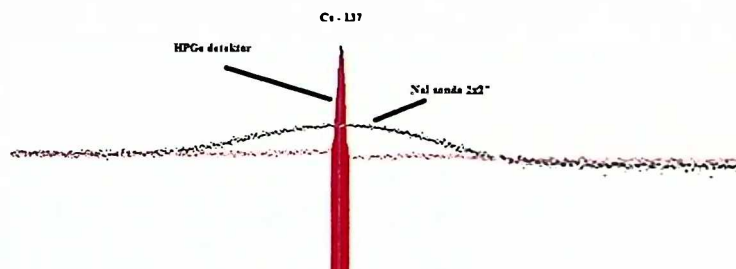
12. PROŠIRENJE MOGUĆNOSTI SPEKTROMETRA – BUDUĆA ISTRAŽIVANJA

12.1. Moguće buduće modifikacije sistema, i modifikacija koja je u toku

U gama spektrometriji niskih aktivnosti, kada se mjerenja vrše pomoću jednodetektorskih sistema, jedan od efekata koji komplikuju/otežavaju mjerenje je Komptonov efekat. Foton, pošto ne predaje svu energiju kristalu detektora, rasijava se, povećavajući fonsko zračenje (tj. daje impulse koji povećavaju broj impulsa u Komptonovom kontinuumu). Isti taj foton nakon toga može biti detektovan nekim drugim detektorom, ukoliko postoji u sistemu. Sistemima koji se nazivaju spektrometri za suzbijanje Komptonovog efekta (tzv. ACS, *Anti Compton Supression*), postiže se smanjivanje fonskog zračenja, i omogućava kraće vrijeme mjerenja [120-125]. Na ovaj način iskoristivi postaju i pikovi zraka nižih energija i nižih relativnih intenziteta, a koji se obično ne vide upravo zbog Komptonovog kontinuumu i fonskog zračenja. ACS sistemi se sastoje iz više detektora: jednog centralnog (obično je to HPGe detektor), i više detektora koji ga okružuju (scintilacioni detektori; a najčešće su korišćeni NaI(Tl), BGO i plastični scintilatori). Centralni detektor i detektori koji ga okružuju rade u antikoincidentnom režimu, što znači da ako centralni detektor i jedan od okolnih detektuju gama zrake, onda je gama zrak rasijan od glavnog (centralnog) detektora prije „ostavljanja“ kompletne energije, i taj podatak (dogadaj) se ignoriše. Dakle, u ovakvim sistemima mjerenje vrši samo jedan (i to centralni – HPGe) detektor, odnosno registruje se dogadaj samo onda kada impuls koji odgovara određenoj energiji fotona dolazi samo od centralnog detektora, a ne i od ostalih detektora koji ga okružuju. U tom slučaju foton je predao svoju cjelokupnu energiju detektoru, tj. nije došlo do Komptonovog rasijanja. S obzirom da na povećanje fona, pored Kompton efekta, utiče i kosmičko zračenje, spoljašnji detektori koji sa centralnim detektorom rade u antikoincidentnom režimu predstavljaju aktivnu zaštitu (i dovode do smanjenja fona) [29, 126-129].

Za razliku od njih, detektori koji čine spektrometar PRIPJAT-2M registruju koincidentne fotone koji ostavljaju svu energiju u detektorima (istovremeno, tj. u granicama vremena rezolucije). Iako su mogućnosti spektrometara ovog tipa, nakon zamjene i podešavanja elektronike i dorade softvera, značajno proširene, a razvijeni koincidentni metodi dozvoljavaju

analizu radionuklida iz uranijumskog i torijumskog niza (uz ^{137}Cs i ^{40}K), i pored toga što sistem ima veliku osjetljivost, mogućnost rada u nekoliko različitih režima, vrijeme mjerenja uzoraka za red veličine kraće nego u slučaju HPGe detektora, itd. (prednosti pominjane u prethodnim poglavljima), postoje i određena ograničenja. NaI(Tl) detektori uključeni u sistem ne mogu da detektuju fotone energija ispod 200 keV [130], energetska rezolucija je 10 % za γ -zrak energije 662 keV, tako da je nemoguće analizirati nepoznati spektar na sve prisutne radionuklide. Osim toga, potrebno je rješavati probleme *preklapanja* pikova koje kreiraju različiti gama zraci. Poznato je, naime, da plastični scintilacioni detektor ne može da razdvoji pikove gama zraka, NaI(Tl) i CZT (*Cadmium Zinc Telluride*) detektori imaju bolju rezoluciju, dok je rezolucija najbolja kod HPGe detektora [131]. Određeno poređenje dijela spektara dobijenih pomoću NaI(Tl) i HPGe detektora dato je na slici 12.1.1.



Slika 12.1.1. Poređenje spektra (pika na energiji 662 keV) – HPGe i NaI(Tl) detektor.

Karakteristike spektrometra PRIPJAT-2M se značajno mogu promijeniti zamjenom NaI(Tl) detektora detektorima druge vrste (koji mogu da detektuju fotone ispod 200 keV; HPGe detektorima, drugim scintilatorima, kao što su na primjer plastični, itd.). Na ovaj način moguće bi bilo ostvarivati režim antikoincidencija, razmatrati mogućnosti detekcije β - γ koincidencija, itd., te razvijati nove metode mjerenja.

Na primjer, u slučaju da se jedan HPGe detektor doda u sistem PRIPJAT-2M, odnosno da se jedan NaI(Tl) detektor zamijeni HPGe detektorom,⁶⁴ dobio bi se sistem koji može da radi kao ACS spektrometar. HPGe detektor bi bio centralni detektor sa pasivnom (olovna i čelična) i aktivnom (5 NaI(Tl) detektora) zaštitom. Koincidentno mjerenje pomoću NaI(Tl) detektora, kao

⁶⁴ Prema saznanjima, taj proces je započet na sistemu PRIPJAT koji se nalazi u Laboratoriji za nuklearnu spektrometriju Instituta za fiziku Akademije nauka Bjelorusije u Minsku.

i mjerenje pomoću HPGe detektora, omogućilo bi dobijanje više spektara i to: konicidentni spektri do višestrukosti 5, spektar dobijen germanijumskim detektorom bez aktivnog štita, i spektar sa aktivnim štitom koji se sastoji od 5 NaI(Tl) detektora.

Nadalje, zamjena jednog NaI(Tl) detektora plastičnim scintilacionim detektorom dovela bi do mogućnosti mjerenja i ispitivanja β - γ koincidencija [132, 133], itd.

Navedene promjene i zamjene u datom mjernom sistemu značajno bi proširile njegove mogućnosti. Međutim, zamjene detektora podrazumijevaju dorade i prepravke, ne samo elektronike i softvera za obradu podataka, nego i konstrukcije spektrometra, a taj dio je van domena ove disertacije.

S druge strane, važno je napomenuti da je trenutno u toku⁶⁵ modifikacija sistema koja (iako za postojeće detektore) podrazumijeva zamjenu elektronike. Odnosno, planirano je da se u sistem uključe CAEN-ovi *digitizeri* (2 modula, donacija IAEA: „Desktop Waveform Digitizer, CAEN model N6720 1-unit wide NIM module housing a 4 Channel 12 bit 250 MS/s Desktop Waveform Digitizer with 2 Vpp dynamic range on single ended MCX coax. input connectors - MCX input (50ohm, single ended)“). Nakon što u budućem periodu (zavisno od raspoloživih sredstava i rješavanja postojećih problema), budu obavljeni svi radovi i analize, uspostavljanje nove konfiguracije trebalo bi da poboljša karakteristike sistema, i omogući uspostavljanje i razvoj novih/različitih metoda mjerenja.

⁶⁵ Započeta je krajem 2011. godine, ali iz određenih razloga prekinuta; pa je odnedavno ponovo pokrenuta...

12.2. Nekoliko poređenja rezultata gama i alfa spektrometrijskih mjerenja

Na kraju, samo kao ilustracija, urađeno je poređenje rezultata mjerenja aktivnosti ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorcima zemljišta – gama: standardnom (HPGe) i višedetektorskom (PRIPJAT-2M), i alfa spektrometrijom (tabela 12.2.1).

Naime, 9 uzoraka zemljišta sa teritorije Crne Gore, prethodno analiziranih pomoću koaksijalnih HPGe spektrometara (ORTEC – GEM – 40190, relativne efikasnosti 40 % , i GEM – 30185-S relativne efikasnosti 35 %) u Centru za ekotoksikološka ispitivanja u Podgorici, i pomoću PRIPJAT-2M spektrometra, ispitivani su i u Bjeloruskom državnom institutu za metrologiju u Minsku⁶⁶ (u okviru različitih⁶⁷ analiza različitih uzoraka iz životne sredine, pomoću alfa spektrometra Canberra 7401-VR, PIPS-detektor /450 mm², rezolucija – 20 keV/, i masenog spektrometra Agilent 7500a). Analizirani uzorci i rezultati mjerenja, predstavljeni su u tabeli 12.2.1, odakle se vidi da se rezultati mjerenja ^{226}Ra u uzorcima zemljišta, dobijeni preko alfa i gama spektrometrijskih analiza, razlikuju do 39 %. Razlike u koncentracijama aktivnosti za ^{232}Th su do 23 % (tabela 12.2.2).

⁶⁶ БЕЛОРУССКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ ИНСТИТУТ МЕТРОЛОГИИ
ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ОТДЕЛ РАДИАЦИОННОЙ МЕТРОЛОГИИ

⁶⁷ i radiohemijjskih

Tabela 12.2.1. Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra i ^{232}Th u uzorcima zemljišta sa teritorije Crne Gore – alfa i gama spektrometrijske analize.

Uzorak	^{226}Ra [Bq kg ⁻¹]		^{232}Th [Bq kg ⁻¹]	
	Gama spektrometrija PRIPJAT-2M HPGe	Alfa spektrometrija	Gama spektrometrija PRIPJAT-2M HPGe	Alfa spektrometrija
Površinski (0-5 cm) sloj zemljišta iz Pljevalja (1.052 kg)	25.09±1.98 27.27±0.96	34.3±6.9	38.11±2.08 39.03±1.46	44.0±8.8
Srednji (5-10 cm) sloj zemljišta iz Pljevalja (1.087 kg)	29.22±2.02 27.13±0.99	32.5±7.0	39.44±2.14 42.82±1.68	44.0±8.8
Najdublji (10-15 cm) sloj zemljišta iz Pljevalja (1.369 kg)	22±1.69 25.47±0.88	30.5±6.5	37.06±1.88 42.70±1.52	45.5±7.5
Površinski (0-5 cm) sloj zemljišta iz Sutomora (0.877 kg)	21.70 ±0.76 22.57±0.65	20.0±4.0	35.20 ±1.30 34.82±1.23	34.0±6.8
Srednji (5-10 cm) sloj zemljišta iz Sutomora (1.23 kg)	18.52±0.97 16.87±0.59	21.5±4.3	34.57±2.63 33.12±1.19	35.7±7.2
Najdublji (10-15 cm) sloj zemljišta iz Sutomora (1.326 kg)	17.46±1.48 15.79±0.54	21.5±4.3	33.61±1.72 34.14±1.20	35.4±7.2
Srednji (5-10 cm) sloj zemljišta iz Danilovgrada (1.192 kg)	43.04±1.77 40.48 ±1.33	43.0±8.8	56.64±2.42 52.42±1.78	52.0±10.4
Površinski (0-5 cm) sloj zemljišta iz Nikšića (1.001 kg)	54.13±2.13 ±1.68	48.16	59.78±2.39 51.80 ±2.04	50.0±10.0
Najdublji (10-15 cm) sloj zemljišta iz Cetinja (1.001 kg)	38.05±2.12 ±1.16	32.50	63.97±2.11 56.14 ±2.08	54.0±12.0

Tabela 12.2.2. Koncentracije aktivnosti dobijene alfa spektrometrijom u odnosu na rezultate gama spektrometrijskih analiza.

Uzorak	Razlike u rezultatima: koncentracije aktivnosti ^{226}Ra [%]		Razlike u rezultatima: koncentracije aktivnosti ^{232}Th [%]	
	Alfa spektrometrija/ HPGe	Alfa spektrometrija/ PRIPJAT -2M	Alfa spektrometrija/ HPGe	Alfa spektrometrija/ PRIPJAT -2M
Površinski (0-5 cm) sloj zemljišta iz Pljevalja (1.052 kg)	26	37	13	15
Srednji (5-10 cm) sloj zemljišta iz Pljevalja (1.087 kg)	20	11	3	12
Najdublji (10-15 cm) sloj zemljišta iz Pljevalja (1.369 kg)	20	39	7	23
Površinski (0-5 cm) sloj zemljišta iz Sutomora (0.877 kg)	11	8	2	3
Srednji (5-10 cm) sloj zemljišta iz Sutomora (1.23 kg)	27	16	8	3
Najdublji (10-15 cm) sloj zemljišta iz Sutomora (1.326 kg)	36	23	4	5
Srednji (5-10 cm) sloj zemljišta iz Danilovgrada (1.192 kg)	6	0	1	8
Površinski (0-5 cm) sloj zemljišta iz Nikšića (1.001 kg)	21	30	3	16
Najdublji (10-15 cm) sloj zemljišta iz Cetinja (1.001 kg)	26	8	4	16

13. ZAKLJUČAK

Prethodna istraživanja sprovedena na 4π spektrometru gama koincidencija PRIPJAT-2M, koji se nalazi u Laboratoriji za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore, pokazala su da je razvoj novih (koincidentnih) metoda mjerenja moguć, i da bi mogao obezbijediti napredak u oblasti gama spektrometrije.

Nakon modifikacije sistema (uključujući prateći softver PRIP), razdvajanja koincidencija različitih višestrukosti i omogućavanja izbora energetskog opsega, detaljnog pregleda dostupne literature i analiza šema raspada (tri prirodna radioaktivna niza), teorijskih i poluemprirskih proračuna minimalne detektibilne aktivnosti radionuklida (tj. osjetljivosti spektrometra), analiza izraza koji se koriste za (teorijsku) procjenu efikasnosti koincidentne detekcije zračenja, kao i efekata koji bi mogli uticati na tačnost mjerenja (i zbog kojih su neophodne određene korekcije), itd., analizirani su svi dostupni režimi rada: [1-6], [1-1], [2-6], [2-2], [3-3], [4-4], [5-5] i [6-6].

Detaljno su razmatrani fonski uslovi (tj. brzine brojanja fonskih impulsa), a onda je početnim mjerenjima izvora ^{226}Ra i ^{232}Th (u različitim režimima rada i u različitim energetskim opsezima; kada je konstatovano da se registruju koincidencije do višestrukosti 4 – za zrake energija 609 keV i 583 keV – iz niza raspada ^{226}Ra i ^{232}Th , respektivno), analizom odnosa procijenjene efikasnosti detekcije fotopikova i brzina brojanja fona u njihovim regionima, utvrđen optimalni režim za njihovo mjerenje (ali i za mjerenje ^{137}Cs i ^{40}K) – što je pomoglo konačan razvoj metoda.

Ako je radijum u nekom uzorku u radioaktivnoj ravnoteži sa potomcima (tj. nema emanacije ^{222}Rn), osim u integralnom i nekoincidentnom režimu rada, mjerenje njegove aktivnosti moguće je preko fotopika na energiji 609 keV u spektru dvostrukih, trostrukih i četvorostrukkih koincidencija. Ipak, optimalni režim mjerenja je režim dvostrukih koincidencija (efikasnost detekcije zraka energije 609 keV u fotopiku iznosi 0.103, dok je minimalna detektibilna aktivnost, za 500 s realnog vremena, za razmatrani izvor radijuma, procijenjena na 0.9 Bq).

Takođe, ako je torijum u radioaktivnoj ravnoteži sa svojim potomcima, koristeći spektrometar PRIPJAT-2M u energetskom opsegu od 300 keV do 3000 keV, aktivnost torijuma, kao i aktivnost njegovih produkata raspada, uključujući i toron (^{220}Rn), mogu se odrediti preko fotopika na energiji 911 keV u integralnom i nekoincidentnom spektru i preko fotopikova na

energijama 583 keV i 2615 keV – u integralnom, nekoincidentnom i u spektru dvostrukih koincidencija.

Iz analiza eksperimentalnih efikasnosti detekcije dobijenih nakon što je oduzet fon i doprinos Komptonovog rasijanja, i nakon korekcija odbroja u fotopiku zbog *summing* efekta (što je rađeno i u slučaju analiza spektra radijuma), kao i procijenjenih minimalnih detektibilnih aktivnosti ^{232}Th (u različitim režimima rada), zaključeno je da je integralni režim rada optimalan za određivanje aktivnosti torijuma preko fotopika na energiji 911 keV, te da je režim dvostrukih koincidencija najbolji izbor za određivanje aktivnosti torijuma preko fotopikova na energijama 583 keV i 2615 keV, iako se i integralni ([1-6]) i nekoincidentni ([1-1]) režim mogu koristiti za njihovu detekciju (kao i režim trostrukih koincidencija, posebno u slučaju fotopika na energiji 583 keV). Fotoefikasnosti detekcije gama zraka energija 583 keV i 2615 keV (u režimu dvostrukih koincidencija) iznose 0.082 i 0.013, respektivno; dok su minimalne detektibilne aktivnosti (za 1000 s realnog vremena i razmatrani izvor torijuma) 0.74 Bq i 1.95 Bq, respektivno. Treba napomenuti da je (prethodno) mjerenje torijuma u uzorcima različite gustine izvršeno koristeći (modifikovani) spektrometar tipa PRIPJAT na Institutu za fiziku u Minsku (Akademija nauka Bjelorusije), uz odgovarajuće teorijske analize.

Istovremena detekcija ^{232}Th i ^{226}Ra (tj. njihovih produkata raspada) spektrometrom PRIPJAT-2M zahtijeva mjerenje uzoraka u režimu dvostrukih koincidencija, ali i potrebu da se riješi problem uslovljen energetsom rezolucijom NaI(Tl) detektora uključenih u sistem PRIPJAT-2M (*preklapanje* fotopikova zraka energija 583 keV i 609 keV – ^{232}Th i ^{226}Ra , respektivno); dok detekcija ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{137}Cs i ^{40}K zahtijeva istovremeno mjerenje uzoraka u nekoincidentnom i režimu dvostrukih koincidencija (režim [1-1]-[2-2]), i rješavanje problema *preklapanja* fotopikova zraka energija 583 keV, 609 keV i 662 keV (^{232}Th , ^{226}Ra i ^{137}Cs , respektivno) – kako je to urađeno u okviru ove doktorske disertacije.

Razmatrane su i mogućnosti detekcije ostalih radionuklida iz niza ^{238}U , ali i detekcije radionuklida iz niza ^{235}U . Takođe, razvijan je (uglavnom na Institutu za fiziku u Minsku, i samo dijelom na Prirodno-matematičkom fakultetu u Podgorici) radiometrijski režim mjerenja.

Važno je istaći da se metodi razvijeni na višedetektorskom spektrometru PRIPJAT-2M mogu primijeniti i na ostale 4π višedetektorske spektrometre sa NaI(Tl) detektorima, ali (uz određenu modifikaciju) mogu biti primijenjeni i u slučaju ostalih višedetektorskih gama spektrometrijskih sistema.

Dobri fonski uslovi, 4π geometrija mjerenja, kao i mogućnost mjerenja uzoraka velike zapremine i proizvoljnog oblika, čime se izbjegava posebna priprema uzoraka radi dobijanja standardne geometrije, prednosti su razvijenih metoda. Poređenja sa standardnom HPGe spektrometrijom ukazuju da je u slučaju spektrometra PRIPJAT-2M vrijeme mjerenja značajno kraće (više nego za red veličine). U isto vrijeme, efikasnost detekcije gama zraka značajno je veća (na primjer, u slučaju mjerenja ^{226}Ra i zraka energije 609 keV – 0.103 u slučaju spektrometra PRIPJAT-2M, i 0.01585 u slučaju HPGe spektrometra), dok je minimalna detektibilna aktivnost značajno niža.

Iako je osnovni cilj istraživanja u okviru ove doktorske disertacije bio usavršavanje postojećih i razvoj novih koincidentnih metoda mjerenja radionuklida pomoću spektrometra PRIPJAT-2M, važno je napomenuti da su ovi metodi primijenjeni i u drugim oblastima.

Nesporne su mogućnosti primjene jednog ovakvog fizičkog uređaja (višedetektorskog 4π spektrometra, koji može da radi u režimu γ - γ koincidencija različitih višestrukosti), ali i razvijenih metoda – u različitim oblastima (ekologija, medicina, biologija...). Tim prije što omogućavaju ekspresna mjerenja niza radionuklida – gama emitera (ne samo prirodnih, nego i onih koji su vještački kreirani) u uzorcima različite prirode i porijekla.

Do sada, uređaj i metodi su primijenjeni za radioekološka/radiobiološka istraživanja. Između ostalog, i u istraživanjima u okviru ove doktorske disertacije, koincidentni metodi su primijenjeni u radioekologiji (uključujući radioekološka istraživanja južnog Jadranskog mora – tj. uzoraka vode, sedimenta, mulja sa detritusom, morske trave i ribe), i tako je, na primjer, procjenjivan i transfer radionuklida (^{226}Ra i ^{232}Th) iz zemljišta u izabrane biljne vrste (uzorkovane na sjeveru Crne Gore).

Dodatno, rezultati do kojih se došlo tokom predmetnih istraživanja treba (između ostalog) da posluže za uspostavljanje nove verzije softvera PRIP (prateći softver spektrometara tipa PRIPJAT), da posluže da se razviju metodi mjerenja i drugih radionuklida (kako prirodnih, tako vještačkih), te da usmjere dalje modifikacije sistema (sa ciljem da se njegove karakteristike poboljšaju, a mogućnosti prošire), uz napomenu da je u toku određena modifikacija sistema PRIPJAT-2M (koja podrazumijeva zamjenu prateće elektronike CAEN-ovim modulima). S druge strane, istraživanja zavisnosti efikasnosti registracije i osjetljivosti spektrometra od pozicije izvora, kao i istraživanja samoapsorpcije gama zračenja (i njenog uticaja na rezultat mjerenja), koja su započeta u okviru ove doktorske disertacije, treba da budu nastavljena.

Odnosno, realizovana istraživanja otvorila su niz pitanja i puteva za buduća istraživanja (i teorijska i eksperimentalna). Između ostalog, uz produbljivanje analize mogućnosti detekcije ostalih radionuklida – u prvom redu iz raspada ^{238}U (do ^{226}Ra i nakon njega) i ^{235}U niza, neophodna je dalja analiza načina proračuna efikasnosti registracije (koincidentne, nekoincidentne i integralne) – teorijskih i poluempirijskih; ukupnog intenziteta linija na energijama (na primjer) 583 keV, 911 keV, 2615 keV – u različitim režimima rada višedetektorskog spektrometra; *preklapanja* sa drugim pikovima (ali i *preklapanja* ostalih pikova i regiona spektara); drugih regiona koji se javljaju u spektrima (na primjer, radijuma i torijuma); *suming* efekta, uzimajući u obzir sve kaskade, osobito ako intenzitet drugog zraka prelazi 1 %, itd. Svakako, neophodno je uraditi i Monte Karlo simulaciju spektara i uraditi poređenja sa eksperimentalnim rezultatima.

Konačno, rezultati sprovedenih istraživanja (tj. doktorske disertacije), do sada su objavljeni u

medunarodnim naučnim časopisima:

N. M. Antovic, N. Svrkota, P. Vukotic, S. K. Andrukhovich, A. V. Berestov, S. N. Harkusha, and F. E. Ziaziulia: „Measuring the activity of thorium by its decay products using a multidetector γ -ray coincidence spectrometer”, *Instruments and Experimental Techniques – Physical Instruments for Ecology, Medicine, and Biology* (ISSN 0020-4412), 2008, 51(4), 606-611,

Nevenka M. Antović and Nikola Svrkota: „Detection efficiencies of ^{226}Ra and ^{232}Th in different modes of counting of the PRIPYAT-2M spectrometer”, *Nuclear Technology & Radiation Protection* (ISSN 1451-3994), 2009, XXIV(2), 109-118,

N. Antovic, N. Svrkota: „Measuring the radium-226 activity using a multidetector γ -ray coincidence spectrometer”, *Journal of Environmental Radioactivity* (ISSN 0265-931X), 2009, 100, 823-830,

N. M. Antovic, I. Antovic and N. Svrkota: „Radium-226 activity in the mullet species *Liza aurata* and South Adriatic Sea marine environment of Montenegro“, *Radiation Protection Dosimetry* (ISSN 0144-8420) 2010, 140(4), 340-350,

N. Antovic, N. Svrkota: „Development of a method for activity measurements of ^{232}Th daughters with a multidetector gamma-ray coincidence spectrometer”, *Applied Radiation and Isotopes* (ISSN 0969-8043), 2009, 67(6), 1133-1138,

N. M. Antovic, I. Antovic, N. Svrkota: „Levels of thorium-232 in the South Adriatic Sea marine environment of Montenegro”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* (ISSN 0236-5731), 2010, 284, 605-614,

N. M. Antovic, N. Svrkota, I. Antovic: „Measuring ^{226}Ra and ^{232}Th activity in soil and vegetation samples using a method of double γ -coincidences”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* (ISSN 0236-5731), 2010, 283(2), 313-318,

N. M. Antovic, V. Popovic, I. Antovic, N. Svrkota, P. Vukotic: „Measuring ^{137}Cs , ^{40}K and decay products of ^{226}Ra and ^{232}Th in samples of different nature by a multidetector spectrometer”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* (ISSN 0236-5731), 2011, 290(1), 81-88;

domaćem naučnom časopisu:

N. Antović, P. Vukotić, N. Svrkota: „Gama-fon i osjetljivost spektrometra PRIPJAT-2M u različitim koincidentnim režimima rada”, *Glasnik odjeljenja prirodnih nauka, Crnogorska akademija nauka i umjetnosti*, Podgorica, 2009, 18, 59-70;

u zborniku fakulteta (časopisu Prirodno-matematičkog fakulteta u Podgorici):

Nikola Svrkota: „Detecting radium-226 by the PRIPYAT-2M spectrometer in different modes of counting and energy range from 200 to 2000 keV”, *Scripta Scientiarum Naturalium* 1, 2010, 91-99.

Takođe, dio rezultata saopšten je na naučnim skupovima, i radovi su objavljeni u cjelosti (domaći naučni skupovi) i u izvodu (međunarodni naučni skupovi):

Nevenka M. Antović, Nikola Svrkota, Vladimir Popović: „Fon u različitim energetske opsezima i različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M”, XXV simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Kopaonik – Srbija, 30.09 – 02. 10. 2009, str. 264-268,

Nevenka M. Antović, Vladimir Popović, Nikola Svrkota, Perko Vukotić: „Detekcija ^{137}Cs i ^{40}K spektrometrom PRIPJAT-2M”, XXV simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Kopaonik – Srbija, 30.09 – 02. 10. 2009, str. 269-273,

Nikola Svrkota, Nevenka M. Antović, Sergej K. Andruhovič: „Radiometrijski režim spektrometra PRIPJAT“, XXVI Simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Tara – Srbija, 12-14. 10. 2011, str. 321-325;

Nikola Svrkota, Nevenka M. Antovic: „A possibility for measuring ^{235}U by the multidetector 4π gamma-spectrometer PRIPYAT-2M“, Book of abstracts RAD2012 (The First International Conference on Radiation in Various Fields of Research), Nis, Serbia, April 25-27, 2012, p.157, Svrkota N., Antovic N. M., Andrukhovich S. K.: „Measuring U-238 and U-235 decay products by the spectrometer PRIPYAT-2M“, Book of Abstracts of the 13th Congress of the International Radiation Protection Association, 13-18 May, 2012, Glasgow – Scotland, p. 1317 (P11.16).

Navedeni objavljeni naučni radovi odnose se na razvoj nuklearno-spektrometrijskih (koincidentnih) metoda i na njihovu primjenu u drugim oblastima.

L i t e r a t u r a

- [1] Chan Y., Patridge R.A., Peck C.W. et al., 1978. Design and performance of a modularized NaI(Tl) detector (the Crystal Ball prototype). *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 1, 333.
- [2] Maier M. R., Ritter H. G., Gutbrod H. H., 1980. The Plastic Ball – a multi detector large solid angle spectrometer with charged particle identification for the bevelec. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 1, 42.
- [3] Мурадян Г. В., 1981. Спектрометрия множественности. *Атомная энергия*, Т. 50, 394.
- [4] Андрухович С. К., Берестов А. В., Зязюля Ф. Э., Марцынкевич Б. А., Рудак Э. А., Хильманович А. М., 1986. Автоматизированная гамма установка совпадений (АРГУС). Конструкция, блок-схема и основные характеристики. Препринт Института физики АН БССР, Минск.
- [5] Sarantites D. G., Sobotka L. G., Semkow T. M., 1988. A "dwarf ball": design, instrumentation and response characteristics of a 4π light charged-particle multidetector system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 264(2), 319.
- [6] Андрухович С. К., Берестов А. В., Гутко В. И., Хильманович А. М., 1995. Высокочувствительные многодетекторные гамма спектрометры ПРИПЯТЬ. Препринт Института физики АН БССР, Минск.
- [7] Andrukovich S. K., Antovich N., Berestov A. V., Vukotich P., Gurinovich A. A., Metelitsa O. N., and Khrushchinskii A. A., 2000. A Method for selecting Three-Photon Positronium-Annihilation Events with a Multidetector Coincidence Spectrometer. *Instruments and Experimental Techniques*, 43(3), 295.
- [8] Andrukovich S. K., Berestov A. V., Antovich N., Vukotich P., Gurinovich A. A., Khrutchinsky A. A., Metelitsa O. N., 2003. Investigation of orthopositronium 3γ -decay using a multidetector spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 207(2), 219.
- [9] Vetter P. A., Freedman S. J., 2003. Search for CPT-odd decays of positronium. *Physical Review Letters*, 91, 263401.
- [10] Pappas R. S., Ting, B. G., Jarrett, J. M., Paschal, D. C., Caudill, S. P., Miller, D. T., 2002. Determination of uranium-235, uranium-238 and thorium-232 in urine by magnetic sector

- inductively coupled plasma mass spectrometry. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 17, 131.
- [11] Shen C. C., Edwards R. L., Cheng H., Dorale J. A., Thomas R. B., Moran S. B., Weinstein S. E., Edmonds H. N., 2002. Uranium and thorium isotopic and concentration measurements by magnetic sector inductively coupled plasma mass spectrometry. *Chemical Geology*, 185(3), 165.
 - [12] Demidova M. G., Saprykin A. I., 2004. Determination of uranium and thorium isotope ratios by inductively coupled plasma mass spectrometry. *Journal of Analytical Chemistry*, 59(1), 45.
 - [13] Maslov O. D., Molokanova L. G., Gustova M. V. and Dmitriev S. N., 2004. X-ray spectrometric determination of thorium in soil samples using the (γ , n) reaction. *Radiochemistry*, 46(4), 403.
 - [14] Valentini Ganzerli M. T., Maggi L. and Caramella Cresp V., 2004. Preconcentration and neutron activation analysis of thorium and uranium in natural waters. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 262(1), 143.
 - [15] Ramli A. T., Hussein A. W., Wood A. K., 2005. Environmental ^{238}U and ^{232}Th concentration measurements in an area of high level natural background radiation at Palong, Johor, Malaysia. *Journal of Environmental Radioactivity*, 80(3), 287.
 - [16] Blackburn R., Al-Masri M.S., 1993. Determination of radon-222 and radium-226 in water samples by Cerenkov counting. *Analyst*, 118, 873.
 - [17] Schönhofer F., 1992. Measurement of ^{226}Ra in water and ^{222}Rn in water and air by liquid scintillation counting. *Radiation Protection Dosimetry*, 45, 123.
 - [18] Moreno H., Vioque I., Manjon G., Garcia-Tenorio R., 1999. An easy method for Ra-226 determination in river waters by liquid-scintillation counting. *Czechoslovak Journal of Physics*, 49, Supp. 1, 467.
 - [19] Rodríguez-Alvarez M. J., Sánchez F., 1995. Measurement of radium and thorium isotopes in environmental samples by alpha-spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 191(1), 3.
 - [20] Hurtgen C., 2001. Natural radioactivity in bioassay by alpha-spectrometry measurements. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 248(2), 477.

- [21] Dos Santos R. N., Marques L. S., Ribeiro F. B., 2002. Determination of uranium concentrations and activity ratios in silicates by alpha spectrometry: application to the volcanic rocks from the Trindade and Martin Vaz Islands (Brazil). *Applied Radiation and Isotopes*, 56(5), 741.
- [22] Clifford D. A., Higgins E. A., 1992. Measurement of ^{226}Ra and ^{228}Ra in water by gamma-ray counting after preconcentration on ion-exchange resin. *Health Physics*, 62(5), 413.
- [23] Tahir S. N. A., Jamil K., Zaidi J. H., Arif M., Ahmed N., Ahmad S. A., 2005. Measurements of activity concentrations of naturally occurring radionuclides in soil samples from Punjab province of Pakistan and assessment of radiological hazards. *Radiation Protection Dosimetry*, 113(4), 421.
- [24] Murray A. S., Marten R. R., Johnston A., Martin P., 1987. Analysis for naturally occurring radionuclides at environmental concentrations by gamma spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 115(2), 263.
- [25] Hassan A. M., Abdel-Wahab M., Nada A., Walley El-Dine N., Khazbak A., 1997. Determination of uranium and thorium in Egyptian monazite by gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 48(1), 149.
- [26] Muhammad Iqbal, Muhammad Tufail, Sikander M. Mirza 2000. Measurement of natural radioactivity in marble found in Pakistan using a NaI(Tl) gamma-ray spectrometer. *Journal of Environmental Radioactivity*, 51(2), 255.
- [27] Tzortzis M., Tsertos H., 2004. Determination of thorium, uranium and potassium elemental concentrations in surface soils in Cyprus. *Journal of Environmental Radioactivity*, 77(3), 325.
- [28] Hizem N., Ben Fredj A., Ghedira L., 2005. Determination of natural radioactivity in building materials used in Tunisian dwellings by gamma ray spectrometry. *Radiation Protection Dosimetry*, 114(4), 533.
- [29] Cooper J. A., Perkins R. W., 1972. Versatile Ge(Li) – NaI(Tl) coincidence-anticoincidence gamma-ray spectrometer for environmental and biological problems. *Nuclear Instruments and Methods*, 99(1), 125.
- [30] Sato K., Hashimoto T., Noguchi M., Nitta W., Higuchi H., Nishikawa N., Sanada T., 2000. A simple method for determination of ^{226}Ra in environmental samples by applying α - β coincidence liquid scintillation counting. *Journal of Environmental Radioactivity*, 48(2), 247.

- [31] Muth H., Globel, B., 1983. Age dependent concentration of ^{226}Ra in human bone and some transfer factors from diet to human tissues. *Health Physics*, 44, Supp. 1, 113.
- [32] Sanderson, C. G., 1969. Determination of ^{226}Ra and ^{228}Th in food, soil, and biological ash by multidimensional coincident gamma-ray spectrometry. *Health Physics*, 16(6), 747.
- [33] Overton T. R., Burch P. R. J., 1966. A coincident gamma-ray spectrometer and its application to measurement of low level radioactivity. *Physics in Medicine and Biology*, 11(1), 47.
- [34] Bhandari N., Bhat S. G., Krishnaswamy S., Lal D., 1971. A rapid beta-gamma coincidence technique for determination of natural radionuclides in marine deposits. *Earth and Planetary Science Letters*, 11(1-5), 121.
- [35] Hashimoto T., Sakai Y., 1990. Selective determination of extremely low-levels of the thorium series in environmental samples by a new delayed coincidence method. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 138(2), 195.
- [36] Antovic N., Vukotic P., Andrukhovich S. K., Berestov A. V., Rudak E. A., Dapchevic S., 2001. Radon measurement by coincidence gamma-ray spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 249(1), 159.
- [37] Svrkota Nikola, 2007. Određivanje aktivnosti torijuma i produkata njegovog raspada metodom dvostrukih koincidencija – magistarski rad, Prirodno-matematički fakultet, Univerzitet Crne Gore.
- [38] Antovic N., Svrkota N., Vukotic P., 2008. Thorium measurement by the six-crystal spectrometer PRIPYAT-2M. *Radiation Measurements*, 43(9-10), 1558.
- [39] Berestov A. V., Gutko V. I., Hil'manovich A. M., 1990. Six-crystal scintillation spectrometer of gamma-gamma coincidences. *Instruments and Experimental Techniques*, 2, 67.
- [40] Андрухович С. К., Берестов А. В., Гаркуша С. Н., Рудак Э. А., Хильманович А. М., Узунбаджаков А. С, Зязюля Ф. Е., Антович Н., 2007. Расширение возможностей 4π-гамма-спектрометров ПРИПЯТЬ. *Ядерна фізика та енергетика (Nuclear Physics and Atomic Energy)*, 2(20), 140.
- [41] LBNL Isotopes Project – LUNDS Universitet, 2004. WWW table of radioactive isotopes, Version 2.1, Nuclide Data Search.

- [42] Antović N., Vukotić P., Svrkota N., 2009. Gama-fon i osjetljivost spektrometra PRIPJAT-2M u različitim koincidentnim režimima rada. *Glasnik Odjeljenja prirodnih nauka, Crnogorska akademija nauka i umjetnosti*, 18, 59.
- [43] Гольданский В. И., Куценко А. В., Подгорецкий М. И., 1959. Статистика отсчетов при регистрации ядерных частиц. Физмат. Москва.
- [44] Nevenka M. Antović, Nikola Svrkota, Vladimir Popović, 2009. Fon u različitim energetske opsezi i različitim režimima rada spektrometra PRIPJAT-2M. Zbornik radova XXV simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Kopaonik – Srbija, 30. 09 – 02. 10, 264.
- [45] Берестов А. В., Марцынкевич Б. А., Хильманович А. М., 1988. Определение активности нуклидов методом регистрации интенсивности каскадов γ -квантов различной множественности. Препринт Института физики АН БССР, Минск.
- [46] Andrukhovich S. K., Berestov A. V., Martsynkevich B. A., Khil'manovich A. M., Antovich N., 1998. Multidimensional spectroscopy of cascades of photons emitted by quantum objects, *Journal of Applied Spectroscopy*, 65(2), 290.
- [47] Hagemann G. B., Broda R., Hersikind B., 1975. Gamma decay after heavy ion reactions studied by first and higher order multiplicity measurements. *Nuclear Physics A*. 245, 166.
- [48] Петров В. Ф., Крафт О. Е., Наумов В. В., Остапенко С. А., 1980. Спектрометр многократных совпадений. Известия АН СССР, 44(9), 1970.
- [49] De Corte F., 1987. The k_0 -standardization method. University of Gent.
- [50] Lederer M. C., Hollander J. M., Perlman I., 1967. Table of Isotopes. 6th Ed., John Wiley & Sons, New York.
- [51] Antovic N. M., Svrkota N., Vukotic P., Andrukhovich S. K., Berestov A. V., Harkusha S. N., Ziaziulia F. E., 2008. Measuring the activity of thorium by its decay products using a multidetector γ -ray spectrometer. *Instruments and Experimental Techniques, Section – Physical Instruments for Ecology, Medicine, and Biology*, 51(4), 606.
- [52] Nikola Svrkota, 2010. Detecting radium-226 by the PRIPYAT-2M spectrometer in different modes of counting and energy range from 200 to 2000 keV. *Scripta Scientiarum Naturalium*, 1, 91.

- [53] Nevenka M. Antović, Nikola Svrkota, 2009. Detection efficiencies of ^{226}Ra and ^{232}Th in different modes of counting of the PRIPYAT-2M spectrometer. *Nuclear Technology & Radiation Protection*, XXIV(2), 109.
- [54] Andrukhovich S. K., Antovich N. M., Berestov A. V., Rudak E. A., Hilmanovich. A. M., 1999. A method for determining the concentration of radon decay products using a coincidence γ -spectrometer. *Instruments and Experimental Techniques*, 42(1), 123.
- [55] Nevenka M. Antović, Vladimir Popović, Nikola Svrkota, Perko Vukotić, 2009. Detekcija ^{137}Cs i ^{40}K spektrometrom PRIPJAT-2M. Zbornik radova XXV simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Kopaonik – Srbija, 30. 09 – 02. 10, 269.
- [56] Antovic N., Svrkota N., 2009. Measuring the radium-226 activity using multidetector γ -ray coincidence spectrometer, *Journal of Environmental Radioactivity*, 100, 823.
- [57] Bennett J. R., Boehlert G. W., Turekian K. K., 1982. Confirmation of longevity in *Sebastes dipoprea* from Pb-210/Ra-226 measurements in otoliths. *Marine Biology*, 71, 209.
- [58] Campana S. E., Zwanenburg C. T., Smith J. N., 1990. Pb-210/Ra-226 determination of longevity in redfish. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences*, 47, 163.
- [59] Saint-Laurent D., St-Laurent J., Lavoie L., Ghaleb B., 2008. Use geopedological methods for the evaluation of sedimentation rates on river floodplains, southern Quebec, Canada. *Catena*, 73(3), 321.
- [60] UNSCEAR, 1988. Sources, effects and risks of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations, New York.
- [61] ORTEC, 2003. Gamma-vision 32, Gamma-ray spectrum analysis NCA emulator for Microsoft.
- [62] Hernandez C. A., Asencio M. D., Caravaca A. M., Morell E. S., Claro R. M., 1998. Levels of radioactivity in the Cuban Marine Environment. *Radiation Protection Dosimetry*, 75(1), 69.
- [63] Sam A. K., Ahmed M. M. O., El Khangi F. A., El Nigumi Y. O., Holm E., 1998. Radioactivity levels in the Red Sea coastal environment of Sudan. *Marine Pollution Bulletin*, 36(1), 19.
- [64] Marovic G., Franic Z., Sencar J., 1998. Assessment of natural radioactivity in the marine environment in Croatia. International conference on environmental coastal regions 2, Cancun, Mexico, 241.

- [65] Akram M., Qureshi R. M., Amhad N., Solaija T. J., Mashiatullah A., Ayub M. A., Irshad S., 2004. Determination of natural and artificial radionuclides in sea water and sediments of Gwadar Coast, Arabian Sea. *The Nucleus*, 4(1-4), 19.
- [66] Akram M., Qureshi R. M., Amhad N., Solaija T. J., 2006. Gamma-emitting radionuclides in the shallow marine sediments off the Sindh coast, Arabian Sea. *Radiation Protection Dosimetry*, 118(4), 440.
- [67] Yii M. W., Zaharudin A., Abdul-Kadir I., 2009. Distribution of naturally occurring radionuclides activity concentration in East Malaysian marine sediment. *Applied Radiation and Isotopes*, 67(4), 630.
- [68] Swanson S. M., 1983. Levels of ^{226}Ra , ^{210}Pb and total U in fish near a Saskatchewan uranium mine and mill. *Health Physics*, 45(1), 67.
- [69] Pyle G. G., Clulow F. V., 1998. Radionuclide equilibria between the aquatic environment and fish tissues. *Journal of Environmental Radioactivity*, 40(1), 59.
- [70] Antovic N. M., Antovic I., Svrkota N., 2010. ^{226}Ra activity in the mullet species *Liza aurata* and south Adriatic Sea marine environment of Montenegro. *Radiation Protection Dosimetry*, 140(4), 340.
- [71] Sources and effects of ionizing radiation, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), 2000. Report to the General Assembly of the United Nations with Scientific Annexes, United Nations, New York.
- [72] IAEA – Technical reports series No. 295, 1989. Measurement of radionuclides in food and the environment (a guidebook).
- [73] Thomson J.M., 1966. The grey mullets. *Oceanogr. Mar. Biol. Ann. Rev.* 4, 301.
- [74] Harb S., 2008. Natural radioactivity and external gamma radiation exposure at the coastal Red Sea in Egypt. *Radiation Protection Dosimetry*, 130(3), 376.
- [75] Lu X., Zhang X., 2008. Measurement of natural radioactivity in beach sands from Rizhao bathing beach, China. *Radiation Protection Dosimetry*, 130(3), 385.
- [76] Moran S. B., Hoff J. A., Buesseler K. O., Edwards R. L., 1995. High precision ^{230}Th and ^{232}Th in the Norwegian Sea and Denmark by thermal ionization mass spectrometry. *Geophysical Research Letters*, 22(19), 2589.

- [77] IAEA – 368, 1991. Report on the intercomparison run, Radionuclides in Pacific Ocean Sediment. IAEA/AI/047.
- [78] IAEA – 135, 1993. Report on the intercomparison run, Radionuclides in Irish Sea Sediment. IAEA/AI/063.
- [79] IAEA – 315, 1996. Report on the intercomparison run, Radionuclides in Indian Ocean Sediment. IAEA/AI/065.
- [80] Porntepkasemsan B., Nevissi A. E., 1990. Mechanism of radium-226 transfer from sediments and water to marine fishes. *Geochemical Journal*, 24, 223.
- [81] Suplinska M., Adamczyk A., 2009. Cs-137, Ra-226 and K-40 in the southern Baltic Sea fish flesh. Helsinki Commission (HELCOM MORS-PRO 14/2009), Project Group for Monitoring of Radioactive Substances in the Baltic Sea, 14th Meeting, Stockholm, Sweden, May 5-7.
- [82] Hameed P. S., Shaheed K., Somasundaram S. N., Riyengar M. A., 1997. Radium-226 levels in the Cauvery river ecosystem, India. *Journal of Biosciences*, 22(2), 225.
- [83] Clulow F. V., Dave N. K., Lim, T. P., Avadhanula R., 1998. Radium-226 in water, sediments, and fish from lakes near the city of Elliot Lake, Ontario, Canada. *Environmental Pollution*, 99(1), 13.
- [84] Wren C. D., Cloutier N. R., Lim T. P., Dave N. K., 1987. Ra-226 concentrations in otter, *Lutra canadensis* trapped near uranium tailings at Elliot Lake, Ontario. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 38, 209.
- [85] Svrkota N., Antovic N. M., Andrukhovich S. K., 2012. Measuring U-238 and U-235 decay products by the spectrometer PRIPYAT-2M. 13th International Congress of the International Radiation Protection Association, 13-18 May, Glasgow – Scotland, Book of Abstracts, 1317 (P11.16).
- [86] Antovic N., Svrkota N., 2009. Development of a method for activity measurements of ²³²Th daughters with a multidetector gamma-ray coincidence spectrometer. *Applied Radiation and Isotopes*, 67(6), 1133.
- [87] Antovic N. M., Antovic I., Svrkota N., 2010. Levels of thorium-232 in the South Adriatic Sea marine environment of Montenegro. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 284, 605.

- [88] Thomson J. M., 1997. The Mugilidae of the World. *Memoirs of the Queensland Museum*, 41(3), 457.
- [89] Vukotic P., Antovic N., Dapchevic S., Borisov G. I., Kuzmich V. V., Kulakov V. M., Mirkovic M., Pajovic M., Svrkota R., Fushtic B., Duretic G., Dlabach A., 1997. Background gamma-radiation in Montenegro. IRPA Regional Symposium, Radiation Protection in Neighbouring Countries of Central Europe, Prague, September 8-12, 477.
- [90] Freitas A. C., Alencar A. S., 2004. Gamma dose rates and distribution of natural radionuclides in sand beaches – Ilha Grande, Southeastern Brazil. *Journal of Environmental Radioactivity*, 45(2), 211.
- [91] Mihajlovic R., Joksimovic D., 2002. Heavy metals in sediments from Boka Kotorska Bay. *Studia Marina*, 23, 49.
- [92] Clulow F. V., Dave N. K., Lim T. P., Avadhanula R., 1998. Radionuclides (lead-210, polonium-210, thorium-230, and -232) and thorium and uranium in water, sediments, and fish from lakes near the city of Elliot Lake, Ontario, Canada. *Environmental Pollution* 99(2), 199-213.
- [93] Antovic N. M., N. Svrkota N., Antovic I., 2010. Measuring ^{226}Ra and ^{232}Th activity in soil and vegetation samples using a method of double γ -coincidences. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 283(2), 313.
- [94] Ivanka Antović, 2011. Uticaj zračenja na biološke sisteme. Skripta za studente IV godine studijskog programa Biologija na Departmanu za biomedicinske nauke, Državni univerzitet u Novom Pazaru, Srbija.
- [95] Szefer P., Szefer K., Falandysz J., 1990. Uranium and thorium in muscle tissue of fish taken from the southern Baltic. *Helgoland Marine Research*, 44(1), 31.
- [96] Alam M.N., Chowdhury M.I., Kamal M., Ghose S., 1995. Radioactivity in marine fish of the Bay of Bengal. *Applied Radiation and Isotopes* 46(5), 363-364.
- [97] Ivanka Antovic, Nevenka M. Antovic, 2011. Determination of concentration factors for Cs-137 and Ra-226 in the mullet species *Chelon labrosus* (Mugilidae) from the South Adriatic Sea. *Journal of Environmental Radioactivity*, 102(7), 713.
- [98] Ivanka Antovic, Nevenka M. Antovic, 2011. Concentration factors for ^{226}Ra in the mullet (Mugilidae) species *Mugil cephalus* from the South Adriatic Sea. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 290(1), 31.

- [99] Antovic N. M., Popovic V., Antovic I., Svrkota N., Vukotic P., 2011. Measuring ^{137}Cs , ^{40}K and decay products of ^{226}Ra and ^{232}Th in samples of different nature by a multidetector spectrometer. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 290(1), 81.
- [100] <http://www.wise-uranium.org/rup.html>
- [101] Stefanie Kappel, Sergei Boulyga, Stefan Bürger, Thomas Prohaska, 2011. Application of mass spectrometric techniques for the determination of n(U-235)/n(U-238) isotope ratios in depleted to low enriched U material. *Geophysical Research Abstracts*, 13, EGU2011 – 6621 – 1.
- [102] Rex N. Taylor, Ian W. Croudace, Phillip E. Warwick, Stephen J. Dee, 1998. Precise and rapid determination of $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ and uranium concentration in soil samples using thermal ionisation mass spectrometry. *Chemical Geology*, 144(1-2), 73.
- [103] Preusser F., Uwe Kasper H., 2001. Comparison of dose rate determination using high resolution gamma spectrometry and inductively coupled plasma mass spectrometry. *Ancient TL*, 19(1), 11.
- [104] Radenkovic M., Vukovic D., Sipka V., Todorovic D., 1996. Ion-exchange separation of uranium, thorium and plutonium isotopes from environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 208(2), 467.
- [105] Morrison G. H., Cosgrove J. F., 1957. Determination of Uranium-235 by Gamma Scintillation Spectrometry. *Analytical Chemistry*, 29(12), 1770.
- [106] Nikola Svrkota, Nevenka M. Antovic, 2012. A possibility for measuring ^{235}U by the multidetector 4π gamma-spectrometer PRIPYAT-2M. Book of abstracts RAD2012 (The First International Conference on Radiation in Various Fields of Research), Nis, Serbia, April 25-27, 157.
- [107] Gamma ray spectrum catalogue, Ge and Si detector spectra, 4th edition, Idaho National Engineering & Environmental Laboratory, 1999;
<http://www.inl.gov/gammaray/catalogs/catalogs.shtml>
- [108] Nikola Svrkota, Nevenka M. Antović, Sergej K. Andruhovič, 2011. Radiometrijski režim spektrometra PRIPJAT. Zbornik radova XXVI Simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Tara – Srbija, 12-14. 10, 321.
- [109] Khater A. E. M., Ebaid Y. Y., 2008. A simplified gamma-ray self-attenuation correction in bulk samples. *Applied Radiation and Isotopes*, 66, 407.

- [110] McMahon C. A., Fegan M. F., Wong J., Long S. C., Ryan T. P., Colgan P. A., 2004. Determination of self absorption corrections for gamma analysis of environmental samples: comparing gamma absorption curves and spiked matrix matched samples. *Applied Radiation and Isotopes*, 60, 571.
- [111] Quindós L. S., Sainz C., Fuente I., Nicolas J., Quindós L., Arteche J., 2006. Correction by self-attenuation in gamma-ray spectrometry for environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 270, 339.
- [112] Saidou, Bochud F., Laedermann J. P., Buchillier T., Njock Moïse K., Froidevaux P., 2007. Calibration of an HPGe detector and self-attenuation correction for ^{210}Pb : Verification by alpha spectrometry of ^{210}Po in environmental samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 66, 515.
- [113] Hasan M., Bodizs D., Czifrus Sz., 2002. A simplified techniques to determine the self absorption correction for sediment samples. *Applied Radiation and Isotopes*, 57, 915.
- [114] Robu E., Giovani C., 2009. Gamma-ray self-attenuation corrections in environmental samples. *Romanian Reports in Physics*, 61(2), 295.
- [115] Jodlowski P., 2006. Self-absorption correction in gamma-ray spectrometry of environmental samples – an overview of methods and correction values obtained for the selected geometries. *Nukleonika*, 51, 21.
- [116] Aguiar J. C., Galiano E., Fernandez J., 2006. Peak efficiency calibration for attenuation corrected cylindrical sources in gamma-ray spectrometry by the use of a point source. *Applied Radiation and Isotopes*, 64, 1643.
- [117] Jurado Vargas M., Fernandez Timon A., Comejo Diaz N., Perez Sanchez D., 2002. Monte Carlo simulation of the self-absorption corrections for natural samples in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 57, 893.
- [118] Hurtado S., García-León M., García-Tenorio R., 2004. GEANT 4 code for simulation of a germanium gamma-ray detector and its application to efficiency calibration. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 518, 764.
- [119] Antović Nevenka, 1998. Razvoj koincidentnog metoda mjerenja radona na višedetektorskim sistemima. Magistarski rad, Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu.
- [120] Massé D., Adam A., Laurec J., 1991. A Ge-NaI(Tl) spectrometer with Compton suppression and gamma coincidence counting. Application to ^{189}Ir and ^{101}Rh activity measurements.

- Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 309(1-2), 227.
- [121] Lindblad T., 1978. Design and performance of a Ge(Li)-NaI(Tl) Compton-suppression spectrometer system for in-beam experiments. *Nuclear Instruments and Methods*, 154(1), 53.
 - [122] Harbottle G., Cumming J.B., 1994. Performance and promise of the Compton suppression well counter. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 353(1-3), 503.
 - [123] Darwish Al-Azmi, 2008. Simplified slow anti-coincidence circuit for Compton suppression systems. *Applied Radiation and Isotopes*, 66(8), 1108.
 - [124] James W. D., Boothe P. N., Presley B. J., 1998. Compton suppression gamma-spectroscopy in the analysis of radium and lead isotopes in ocean sediments. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 236(1 – 2), 261.
 - [125] Elfström S., Hildingsson L., Jerrestam D., Lindblad Th., 1983. A multi-purpose NaI(Tl) detector system. *Nuclear Instruments and Methods*, 214(2-3), 311.
 - [126] White D. H., Birkett R. E., 1969. A Ge(Li)-Ge(Li)-NaI(Tl) coincidence spectrometer system for (n,γ) studies. *Nuclear Instruments and Methods*, 73(3), 260.
 - [127] Wogman N. A., Perkins R. W., Kaye J. H., 1969. An all sodium iodide anticoincidence shielded multidimensional gamma-ray spectrometer for low-activity samples. *Nuclear Instruments and Methods*, 74(2), 197.
 - [128] Wogman N. A., Robertson D. E., Perkins R. W., 1967. A large detector, anticoincidence shielded multidimensional gamma-ray spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods*, 50(1, 2), 1.
 - [129] Bikit I., Slivka J., Krmar M., Đurčić Ž., Žikić N., Čonkić Lj., Vesković M., Aničin I., 1999. Detection limits of the NaI(Tl) shielded HPGe spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 421(1-2), 266.
 - [130] Saint-Gobain Crystals, Efficiency Calculations for selected scintillators, <http://www.detectors.saint-gobain.com>
 - [131] <http://www.ortec-online.com/Solutions/hand-held-radioisotope-identifiers.aspx>
 - [132] Roedel W., 1968. Low-level-γ-spectroscopy by β-γ-coincidence techniques. *Nuclear Instruments and Methods*, 61(1), 41.
 - [133] Ken'ichi N., Kazuo Y., Kiyotaka N., 1978. An extremely low background beta-gamma-gamma coincidence spectrometer with GM-Ge(Li)-NaI(Tl) counter combination. *Nuclear Instruments and Methods*, 150(2), 195.



UNIVERZITET CRNE GORE
PRIRODNO-MATEMATIČKI
FAKULTET

P. bali 211
81000 Podgorica

Telefon: 020-245 204
Telefaks: 020-244 608

Broj _____, Datum _____

Broj: SI
Podgorica, 19. 12. 2013. godine

IZVJEŠTAJ
O SPROVEDENOM POSTUPKU ZA ODBRANU DOKTORSKE
DISERTACIJE **Mr SVRKOTA NIKOLE**

Kratka biografija:

Mr Svrkota Nikola, rođen je 28. oktobra 1976. godine u Baru. Diplomirao je na Odsjeku za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta, Univerziteta Crne Gore 2002. godine sa prosječnom ocjenom 7.88.

Magistarski rad odbranio je 11. 05. 2007. godine na Prirodno-matematičkom fakultetu Univerziteta Crne Gore, smjer: Primijenjena fizika, i time stekao akademski naziv magistra nauka.

Zaposlen je u Centru za ekotoksikološka ispitivanja Crne Gore u Podgorici.

Doktorske studije upisao je na Prirodno-matematičkom fakultetu 2008. godine.

Tok postupka:

Mr Svrkota Nikola prijavio je 02. 02. 2010. godine temu za izradu doktorske disertacije pod radnim nazivom "**Razvoj koincidentnih metoda mjerenja na višedetektorskim gama-spektrometrima**" i za mentora predložio dr Nevenku Antović, redovnog profesora Prirodno-matematičkog fakulteta, Univerziteta Crne Gore.

Senat Univerziteta Crne Gore na sjednici od 29. 04. 2010. godine dao je saglasnost na temu za izradu doktorske disertacije "**Razvoj koincidentnih metoda mjerenja na višedetektorskim gama-spektrometrima**", kandidata **mr Svrkota Nikole**, diplomiranog fizičara, a za mentora je određena dr **Nevenka Antović**, redovni profesor Prirodno-matematičkog fakulteta, Univerziteta Crne Gore.

Kandidat **mr Svrkota Nikola** predao je 13. 05. 2013. godine Prirodno-matematičkom fakultetu sedam primjeraka doktorske disertacije saglasno Pravilima doktorskih studija.

Na osnovu člana 30 Pravila doktorskih studija Vijeće Prirodno-matematičkog fakulteta na sjednici održanoj 14. 05. 2013. godine predložilo je Komisiju za ocjenu doktorske disertacije "**Razvoj koincidentnih metoda mjerenja na višedetektorskim gama-spektrometrima**", kandidata **mr Svrkota Nikole**, diplomiranog fizičara, u sastavu:

1. Dr Nevenka Antović, red. prof. Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore, mentor;
2. Dr Ištvan Bikit, red. prof. Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu;

3. Dr Perko Vukotić, red. prof., u penziji, Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore;
4. Dr Gordana Medin, red. prof. Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore;
5. Dr Jovan Mirković, red. prof. Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore.

Senat Univerziteta Crne Gore na sjednici održanoj 23. 05. 2013. godine dao je saglasnost na predloženu komisiju.

Dana 30. 08. 2013. godine u dnevnom listu "Vijesti" objavljeno je da je doktorska disertacija **"Razvoj koincidentnih metoda mjerenja na višedetektorskim gama-spektrometrima", kandidata mr Svrkota Nikole, diplomiranog fizičara** i Izvještaj Komisije stavljeni na uvid i ocjenu javnosti u Biblioteci Univerziteta Crne Gore.

Vijeće Prirodno-matematičkog fakulteta na sjednici održanoj 15. 10. 2013. godine usvojilo je Izvještaj Komisije za ocjenu doktorske disertacije **"Razvoj koincidentnih metoda mjerenja na višedetektorskim gama-spektrometrima", kandidata mr Svrkota Nikole, diplomiranog fizičara** i Senatu Univerziteta Crne Gore predložilo da se disertacija prihvati za odbranu. Na istoj sjednici Vijeće je Senatu Univerziteta Crne Gore predložilo Komisiju za odbranu doktorske disertacije u sastavu:

1. Dr Nevenka Antović, red. prof. Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore, mentor;
2. Dr Ištvan Bikit, red. prof. Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu;
3. Dr Perko Vukotić, red. prof., u penziji, Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore;
4. Dr Gordana Medin, red. prof. Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore;
5. Dr Jovan Mirković, red. prof. Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta Crne Gore.

Senat Univerziteta Crne Gore na sjednici održanoj 31. 10. 2013. godine dao je saglasnost na predloženu komisiju.

Obavještenje da je odbrana doktorske disertacije **"Razvoj koincidentnih metoda mjerenja na višedetektorskim gama-spektrometrima", kandidata mr Svrkota Nikole, diplomiranog fizičara** zakazana za 19. 12. 2013. godine sa početkom u 12 sati u Svečanoj sali 225, objavljeno je u dnevnom listu "Vijesti" 05. 12. 2013. godine.

PODACI POTREBNI ZA DIGITALIZACIJU DOKTORSKE DISERTACIJE

Ime i prezime autora

Nikola Svrkota

Godina rođenja

28.10.1976.

E-mail

nikola.svrkota@ceti.co.me; nsvrkota@t-com.me

Organizaciona jedinica Univerziteta Crne Gore

Studijski program Fizika, modul Nuklearna fizika, Univerzitet u Podgorici – Prirodno-matematički fakultet

Naslov doktorske disertacije

Razvoj koincidentnih metoda mjerenja na višedetektorskim gama-spektrometrima

Prevod naslova na engleski jezik

Development of coincident measurement methods with multidetector gamma spectrometers

Datum odbrane

19.12.2013.

Signatura u Univerzitetskoj biblioteci¹

Naslov, sažeci, ključne riječi (priložiti dokument sa podacima potrebnim za unos doktorske disertacije u Digitalni arhiv Univerziteta Crne Gore)

Izjava o korišćenju (priložiti potpisanu izjavu)

Napomena

¹ Podatak o signaturi (lokaciji) može ispuniti biblioteka organizacione jedinice/Univerzitetska biblioteka

PODACI POTREBNI ZA UNOS DOKTORSKE DISERTACIJE U DIGITALNI ARHIV UNIVERZITETA CRNE GORE

Prevod naslova disertacije na engleski jezik

Development of coincident measurement methods with multidetector gamma spectrometers

Mentor i članovi komisija (za ocjenu i odbranu)

prof. dr Nevenka Antović – Mentor
prof. dr Ištvan Bikit
prof. dr Perko Vukotić
prof. dr Jovan Mirković
prof. dr Gordana Laštovička – Medin

Sažetak *

Opsežna istraživanja sprovedena na šest-detektorskom 4π spektrometru γ -koincidencija PRIPJAT-2M, pokazala su da je optimalni režim mjerenja ^{137}Cs i ^{40}K – nekoincidentni, dok je za mjerenje produkata raspada ^{226}Ra i ^{232}Th optimalni režim – režim dvostrukih koincidencija. U energetsom opsegu od 300 keV do 3000 keV, eksperimentalna fotoefikasnost detekcije ^{137}Cs i ^{40}K (tj. gama zraka energije 662 keV i 1460 keV, respektivno) u nekoincidentnom režimu rada iznosi 0.236 i 0.137, respektivno. Za 1000 s realnog vremena, minimalna detektibilna aktivnost cezijuma i kalijuma je 0.64 Bq i 0.76 Bq, respektivno. U isto vrijeme, mjerenje ^{226}Ra (kada je radioaktivnoj ravnoteži sa potomcima) zasnovano je na detekciji gama zraka koji prate β^- -raspad ^{214}Bi , tj. gama zraka energije 609 keV – u integralnom, nekoincidentnom i koincidentnim režimima rada, a eksperimentalna fotoefikasnost u režimu dvostrukih koincidencija iznosi 0.103 (minimalna detektibilna aktivnost je 0.9 Bq, za 500 s realnog vremena mjerenja). Detekcija ^{232}Th , u ravnoteži sa potomcima, zasnovana je na registraciji gama zraka energije 911 keV (iz β^- -raspada ^{228}Ac) – u integralnom i nekoincidentnom režimu rada, ali i zraka energije 583 keV i 2615 keV (iz β^- -raspada ^{208}Tl) – u režimu dvostrukih koincidencija, sa eksperimentalnom efikasnošću registracije u fotopiku – 0.082 i 0.013, respektivno (dok je minimalna detektibilna aktivnost, za 1000 s realnog vremena, 0.74 Bq i 1.95 Bq, respektivno).

Primjenjujući razvijene metode urađene su radioekološke studije (uzorci iz južnog Jadranskog mora – morska voda, sediment, mulj sa detritusom, morska trava, ribe; zemljište i pijesak sa crnogorskog primorja; zemljište i uzorci vegetacije – stablo kupine, lišće smreke, kora bukve, cvekla i šargarepa, sa sjevera Crne Gore). Takođe je razmatrana mogućnost detekcije ostalih produkata raspada ^{238}U , ali i radionuklida iz niza ^{235}U , kao i radiometrijski režim spektrometara tipa PRIPJAT – u kojem je efikasnost detekcije veća, a vrijeme mjerenja kraće (za red veličine) nego u spektrometrijskom režimu mjerenja.

Sažetak na engleskom (njemačkom ili francuskom) jeziku

Comprehensive research on the six-crystal 4π spectrometer of γ -coincidences PRIPYAT-2M, showed that optimal mode of measuring ^{137}Cs and ^{40}K is non-coincidence one, while an optimal mode for measuring decay products of ^{226}Ra and ^{232}Th is the mode of double coincidences. In the energy range from 300 to 3000 keV, experimental photopeak detection efficiency of ^{137}Cs and ^{40}K (i.e., gamma rays with energy 662 keV and 1460

keV, respectively), in the non-coincidence mode of counting, is 0.236 and 0.137, respectively. For 1000 s real measuring time, the minimum detectable activity of cesium and potassium is found to be 0.64 and 0.76 Bq, respectively. At the same time, ^{226}Ra measurement (when it is in radioactive equilibrium with decay products) is based on detecting gamma rays which follow β^- -decay of ^{214}Bi , i.e., gamma rays with energy 609 keV – in the integral, non-coincidence and coincidence modes of counting, and experimental photopeak detection efficiency in the mode of double coincidences is found to be 0.103 (minimum detectable activity – 0.9 Bq, for 500 s real measuring time). Thorium-232 (in radioactive equilibrium with its decay products) detection is based on registering 911 keV gamma rays (from β^- -decay of ^{228}Ac) – in the integral and non-coincidence mode of counting, but also the 583 and 2615 keV gamma rays (from β^- -decay of ^{208}Tl) – in the mode of double coincidences, with experimental photopeak detection efficiency – 0.082 and 0.013, respectively (minimum detectable activity, for 1000 s real measuring time – 0.74 and 1.95 Bq, respectively).

By applying developed methods radioecological studies have been performed (samples from the South Adriatic Sea – seawater, sediment, mud with detritus, seagrass, fish; soil and sand from the Montenegrin Coast; soil and vegetation samples – stem of blackberry, leaves of spruce, bark of beech, red beet and carrot, from northern Montenegro). A possibility to detect the other ^{238}U decay products, but also radionuclides from ^{235}U series is also considered, as well as the radiometric mode of the PRIPYAT spectrometers – in which detection efficiency is higher and measuring time shorter (for an order of magnitude) in compare to the spectrometric mode of counting.

Ključne riječi

Nal(Tl) detektor, Gamma-koincidence, Višedetektorski spektrometar, ^{232}Th , ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{40}K , radioekologija

Ključne riječi na engleskom jeziku

Nal(Tl) detector, Gamma-coincidences, Multidetector spectrometer, ^{232}Th , ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{40}K , radioecology

Naučna oblast/uža naučna oblast

Naučna oblast **Fizika**, odnosno uža naučna oblast **Nuklearna fizika i zaštita od zračenja**

Naučna oblast/uža naučna oblast na engleskom jeziku

Scientific field Physics/ **Nuclear physics and radiation protection**

Ostali podaci

* Ukoliko je predviđeni prostor za polja Sažetak, Sažetak na engleskom jeziku, Ključne riječi i Ključne riječi na engleskom jeziku nedovoljan, priložiti ih u posebnom prilogu

IZJAVA O KORIŠĆENJU

Ovlašćujem Univerzitetsku biblioteku da u Digitalni arhiv Univerziteta Crne Gore unese doktorsku disertaciju pod naslovom

Razvoj koincidentnih metoda mjerenja na višedetektorskim gama-spektrometrima

koja je moj autorski rad.

Doktorska disertacija, pohranjena u Digitalni arhiv Univerziteta Crne Gore, može se koristiti pod uslovima definisanim licencom Kreativne zajednice (Creative Commons), za koju sam se odlučio/la¹.

X Autorstvo

Autorstvo – bez prerada

Autorstvo – dijeliti pod istim uslovima

Autorstvo – nekomercijalno

Autorstvo – nekomercijalno – bez prerada

Autorstvo – nekomercijalno – dijeliti pod istim uslovima



Potpis doktoranda

¹ Odabrati (čikirati) jednu od šest ponuđenih licenci (kratak opis licenci dat je na poledini ovog priloga)

Autorstvo

Licenca sa najširim obimom prava korišćenja. Dozvoljavaju se prerade, umnožavanje, distribucija i javno saopštavanje djela, pod uslovom da se navede ime izvornog autora (onako kako je izvorni autor ili davalac licence odredio).

Djelo se može koristiti i u komercijalne svrhe.

Autorstvo – bez prerada

Dozvoljava se umnožavanje, distribucija i javno saopštavanje djela, pod uslovom da se navede ime izvornog autora (onako kako je izvorni autor ili davalac licence odredio). Djelo se ne može mijenjati, preoblikovati ili koristiti u drugom djelu.

Licenca dozvoljava komercijalnu upotrebu djela.

Autorstvo – dijeliti pod istim uslovima

Dozvoljava se umnožavanje, distribucija i javno saopštavanje djela, pod uslovom da se navede ime izvornog autora (onako kako je izvorni autor ili davalac licence odredio). Ukoliko se djelo mijenja, preoblikuje ili koristi u drugom djelu, prerade se moraju distribuirati pod istom ili sličnom licencom.

Ova licenca dozvoljava komercijalnu upotrebu djela i prerada. Slična je softverskim licencama, odnosno licencama otvorenog koda.

Autorstvo – nekomercijalno

Dozvoljavaju se prerade, umnožavanje, distribucija i javno saopštavanje djela, pod uslovom da se navede ime izvornog autora (onako kako je izvorni autor ili davalac licence odredio).

Komercijalna upotreba djela nije dozvoljena.

Autorstvo – nekomercijalno – bez prerada

Licenca kojom se u najvećoj mjeri ograničavaju prava korišćenja djela. Dozvoljava se umnožavanje, distribucija i javno saopštavanje djela, pod uslovom da se navede ime izvornog autora (onako kako je izvorni autor ili davalac licence odredio). Djelo se ne može mijenjati, preoblikovati ili koristiti u drugom djelu.

Komercijalna upotreba djela nije dozvoljena.

Autorstvo – nekomercijalno – dijeliti pod istim uslovima

Dozvoljava se umnožavanje, distribucija, javno saopštavanje i prerada djela, pod uslovom da se navede ime izvornog autora (onako kako je izvorni autor ili davalac licence odredio). Ukoliko se djelo mijenja, preoblikuje ili koristi u drugom djelu, prerada se mora distribuirati pod istom ili sličnom licencom.

Djelo i prerade se ne mogu koristiti u komercijalne svrhe.