

mogli izrađivati kao monokristali materijala (kao CsI) veće gustine, dovoljno velikih zapremina, mogli bi se dalje usavršiti.

Problem koji dugo perzistira je detekcija niskoenegetskog X zračenja brojačima visoke efikasnosti, za direktna merenja interne kontaminacije pluća alfa emiterima, uranom, radonom i dr. Taj problem je još uvek u krilima bogatih laboratorija.

Najveću neizvesnost merenja donosi procena geometrijske efikasnosti ekvivalencije etalon fantoma sa merenim ispitanikom. Primena metoda Monte Carlo obećava i problemi u tom smislu su u toku rešavanja .

Samostalna izrada etalona ^{40}K koji je u celom svetu jednakih obilnosti čini metrološku specifičnost ne postojanja potreba za pedigree (sledivost-traceability) etalona. No, interkomparacije razumljivo da imaju u ovoj oblasti možda i najveći značaj.

Literatura

- [1] Spornol A.und Lerch, Eine auf 0,2% genau Zahlung von Alphateilchen mit Plastikdetektoren. Nucl.Instrum. Methods, 32, 293.(1965)
- [2] Korun, M., Efficiency calibration of gamma-ray spectrometers volume sources. Appl.Radiat.Isot. 43 (1992) 29.
- [3] Korun, M., Determination of efficiencies of semiconductor gamma-ray detectors for inhomogenous samples. NIM. A 335 (1993) 148
- [4] M Krizman. Coincidence summing in gamma and X-Ray spectrometry. NIM A 325 (1993) 478.
- [5] Z. Arh. Activity calculation for voluminous samples in the presence of coincidence summing effects. NIM A 355 (1995) 600
- [6] Krizman, M., Measurements of the total to peak ratio of a semiconductor gamma-ray detector, NIM A 385 (1997) 511.
- [7] Djukic, Z., Bek-Uzarov, Dj., Simonovic, J., Merenje radioaktivnosti izotopa ^{40}K i ^{137}Cs u ljudskom telu. Zbornik radova sa sastanka nuklearne medicine. Beograd. 1976. str. 341
- [8] Bek-Uzarov, Dj., Simonovic, J., Difuzija radionuklida ^{137}Cs is biosfere. XI Jugoslovenski simpozijum o zastiti od zracenja. Zbornik radova . Portoroz. 21-24 april. 1981. Str. 137-140.



Merenje aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine: analiza podataka iz upitnika o tehničkim karakteristikama merila i uslovima merenja aktivnosti

Vesna Spasić-Jokić¹, Dragana Popović², Gordana Đurić³, Aleksandar Kandić⁴, Jelena Ajtić⁵

Kratak sadržaj: U radu su analizirani podaci o uslovima merenja aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine u naučnim institucijama u našoj zemlji dobijeni iz *Upitnika o tehničkim karakteristikama merila i uslovima merenja aktivnosti*, sastavljenog prema međunarodnom standardu EML Procedures Manual "Quality Control and Quality Assurance in Radioactivity Measurements" HASL-300. Podaci treba da omoguće formiranje baze podataka o tehničkim, metrološkim i opštim uslovima kontrole radioaktivnosti u životnoj sredini u našoj zemlji. Analiza obuhvata podatke o stručnosti osoblja, prostornim uslovima i metodologiji merenja: metodama merenja, tehničkim karakteristikama merila, postupcima uzorkovanja i pripreme uzoraka, načinu obrade i prezentacije rezultata, s posebnim osvrtom na postupke ocene sigurnosti i kvaliteta merenja.

Radionuclide activity measurement in environmental samples: Questionnaire on Instrumentation and Methods in Radioactivity Measurements

Abstract. The paper analyses data obtained from the Questionnaire on Instrumentation and Methods in Radioactivity Measurements which was composed

¹ dr Vesna Spasić-Jokić, rukovodilac Grupe za jonizujuća zračenja u Metrološko razvojnom sektoru, Savezni zavod za mere i dragocene metale, 11000 Beograd, Mike Alasa 14

² dr Dragana Popović, vanredni profesor, Katedra za fiziku, Fakultet veterinarske medicine, Bulevar JNA 18, 11000 Beograd

³ dr Gordana Đurić, redovni profesor, Katedra za radiologiju i radijacionu higijenu, Fakultet veterinarske medicine

⁴ mr Aleksandar Kandić, Savezni zavod za mere i dragocene metale

⁵ Jelena Ajtić, asistent-pripravnik, Katedra za fiziku, Fakultet veterinarske medicine, Bul.JA 18, 11000 Beograd

in accordance with the international standard EML Procedures Manual "Quality Control and Quality Assurance in Radioactivity Measurements" HASL-300. The Questionnaire was distributed to the laboratories and institutions involved in environmental radioactivity monitoring in our country. The Questionnaire should provide a data base on instrumentation, methods, personnel, sampling procedures and general working conditions and improve Quality Assurance and Quality Control procedures in the institutions involved in environmental radioactivity measurements.

1. Uvod

Merenje aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine predstavlja složen proces koji obuhvata niz specifičnih postupaka obzirom na metodologiju sakupljanja i pripreme uzoraka, izbor i standardizaciju merila i mernih metoda, kao i način obrade i prezentacije rezultata. Posebno treba razmotriti probleme koji su vezani za ograničenja mernih metoda i merila (detekcionog sistema) koja se koriste u procesu merenja (granice detekcije mernog sistema, stabilnost i kalibracija, izbor referentnih standardnih materijala) i postupak kontrole sigurnosti i kontrole kvaliteta [1].

Shodno tome, u cilju formiranja odgovarajuće baze podataka o tehničkim, metrološkim i opštim mernim uslovima kontrole radioaktivnosti u životnoj sredini u našoj zemlji. Radna grupa za aktivnost pri Komisiji za jonizujuća zračenja Saveznog zavoda za mere i dragocene metale u Beogradu je sastavila *Upitnik o tehničkim karakteristikama merila i uslovima merenja aktivnosti*, koji je dostavila naučnim institucijama koje se bave ovom delatnošću. Upitnik je sastavljen prema međunarodnom standardu: EML Procedures Manual "Quality Control and Quality Assurance in Radioactivity Measurements" HASL-300, 1990/92. [2], a prilagođen našim uslovima. Upitnikom su obuhvaćeni podaci o prostornim uslovima rada, stručnom profilu i osposobljenosti osoblja, i metodologiji merenja: metodama merenja, tehničkim karakteristikama merila, postupcima za uzorkovanje, pripremu i čuvanju uzoraka, načinu obrade i prezentacije rezultata, s posebnim osvrtom na ocenu sigurnosti i kvaliteta merenja [3].

2. Opšti uslovi, prostor i kadar

Upitnik je popunilo 12 institucija koje se bave merenjem aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine i to: Institut bezbednosti iz Beograda, Institut za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta iz Novog Sada, Institut za primenu nuklearne energije - INEP iz Zemuna, Geoinstitut iz Beograda, Prirodno-matematički fakultet iz Podgorice, Zavod za zdravstvenu zaštitu radnika iz Niša, Institut za medicinu rada i radiološku zaštitu "Dr Dragomir Karajović" iz Beograda, Vojnomedicinska akademija iz Beograda, Institut za fiziku iz Beograda, Vojnotehnički institut iz Beograda i Institut za nuklearne nauke VINČA iz Beograda. Sve institucije se merenjem aktivnosti radionuklida bave u okviru kontrole radioaktivnosti životne sredine i naučnoistraživačkog rada. Korisnici rezultata su republička i savezna ministarstva za nauku, zdravlje i zaštitu životne sredine, vojska Jugoslavije i privredna preduzeća i drugi naručioci.

Podaci o prostornim i opštim radnim uslovima u kojima se obavljaju merenja aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine ukazuju na značajne razlike između pojedinih institucija. Ukupna radna površina iznosi od 30 m² do 400 m², a broj prostorija od 2 do 21. Laboratorije za merenje aktivnosti uglavnom se nalaze u za to namenski građenim prostorijama, ali i u adaptiranim prostorijama, u prizemlju ili na spratu. Zgrade u kojima se laboratorije nalaze koriste se i u druge svrhe i samo u tri institucije, laboratorije se nalaze u posebnoj zgradi. U njihovoj neposrednoj blizini, u podrumima zgrada u kojima su smeštene, često se nalaze izvori elektromagnetnog i jonizujućeg zračenja koji se koriste za druge potrebe (⁶⁰Co, ²⁴¹Am, ²²⁶Ra). Laboratorijske prostorije su većinom klimatizovane. U najvećem broju institucija, prostorije za prijem, pripremu, odlaganje i čuvanje uzoraka su zajedničke, a često su zajedničke i prostorije za osoblje, elektroniku i arhiviranje podataka. Detektori i radioaktivni izvori za kalibraciju se nalaze u za to posebnim prostorijama u više od polovine institucija. Samo u dve institucije postoje niskofonske komore: jedna zapremine 1 m³, sa zidovima debljine 25 cm od čelika proizvedenog pre perioda atomskih proba, i druga sa vodenim ekvivalentom (20 m).

Merenje aktivnosti radionuklida obavlja visoko stručan kadar – diplomirani fizičari i fiziko-hemičari, magistri i doktori nauka (broj osoblja varira od 4 do 16, zavisno od laboratorije), uz relativno mali broj tehničkih saradnika. Organizacija rada se uglavnom odvija na principu "svi rade sve", odnosno bez posebne podele prema određenim metodama. Takođe, lica koja obavljaju merenja, najčešće i procenjuju rezultate merenja i daju mišljenje o nivoima aktivnosti i proceni upotrebljivosti uzoraka (u zdravstvenim ustanovama, to rade lekari).

Rezultati se zapisuju i obrađuju i ručno i pomoću kompjutera, ali se arhiviraju uglavnom elektronski. Procena kvaliteta merenja, odnosno sigurnosti rezultata, takođe se obavlja putem kompjutera. Rezultati se saopštavaju delom kroz izveštaje korisniku, a delom publikuju u domaćim i stranim naučnim časopisima i zbornicima sa međunarodnih i domaćih skupova, pre svega u institucijama koje se bave i naučnoistraživačkim radom.

3. Uzorkovanje

U institucijama koje su dostavile podatke o merenjima aktivnosti radionuklida kontroliše se i meri veliki broj uzoraka iz životne sredine: aerosoli, namirnice, stočna hrana, voda za piće, vazduh, zemlja, građevinski materijali, artikli opšte upotrebe (novinski papir, vuna, pamuk), prirodni stenski i rudni uzorci. Godišnje se izmeri u proseku od 50 do 1000 uzoraka (maksimum 6000). Utisak je međutim, da metodologija uzorkovanja nije dovoljno usaglašena i kontrolisana: u najvećem broju institucija uzorke dostavlja naručilac, pa laboratorija nema potpuni uvid u postupak uzorkovanja. Takođe, osim u jednom slučaju gde se uzorci sakupljaju mesečno ili sezonski na 8 mernih mesta, ne postoji organizovana merna mreža i standardizovana metodologija uzorkovanja. Danas sistem mernih mreža za sakupljanje uzoraka iz životne sredine koji se kontrolišu na radioaktivnost postoji u svim evropskim zemljama: u Poljskoj, na primer sistem obuhvata 200 mernih stanica, sa kompletnim fundusom uzoraka po jednoj lokaciji (vazduh, aerosol, zemlja, trava, namirnice, voda) [4]. Osim toga, svega u 4 institucije odlaganje uzoraka i RA izvora se obavlja

u posebnim, za to namenski građenim bunkerima. Precizni podaci o tome koliko dugo se izmereni uzorci čuvaju i gde se kasnije odlažu ili bacaju nisu dostavljeni.

4. Oprema i tehničke karakteristike merila

Institucije za merenje aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine u našoj zemlji, uglavnom, su opremljene detektorima gama zračenja: trenutno se u ove svrhe koristi 16 HPGe detektora, 4 NaI detektora i 1 Ge(Li)detektor, nekoliko tečnih scintilacionih beta detektora, dva protočna alfa-beta antikoincidentna brojača, nekoliko alfa poluprovodničkih brojača i nekoliko radiometrijskih laboratorija LARA. Vrste merila i vrste zračenja koje se meri su prikazani u tabeli 1.

Tabela 1. Merila aktivnost radioaktivnih izvora u institucijama u našoj zemlji

šifra institucije	vrsta merila	vrsta zračenja
01	HPGe, NaI(Tl), Si SBD, proporcionalni brojač	α , β , γ
02	HPGe, NaI(Tl)	γ
03	NaI(Tl)	γ
04	NaI(Tl), HPGe	γ
05	HPGe, NaI(Tl)	γ
06	HPGe, α - β protočni proporcionalni brojač	α , β , γ
07	HPGe, NaI(Tl), Si SBD, α - β antikoincidentni brojač, čvrsti scintilacioni brojač, tečni scintilacioni brojač	α , β , γ
08	HPGe	γ
09	HPGe, Ge(Li), NE - n detektor	γ i n
10	Si SBD, LR-M2	α , β
11	HPGe	γ
12	HPGe- p tip, HPGe - n tip sa Be prozorom, tečni scintilacioni brojač	β , γ i neki α

Instrumenti su standardnih tehničkih karakteristika u okviru svoje klase, međutim, sem jednog HPGe detektora nabavljenog 1992. godine, svi su stari deset i više godina. Kvarovi su česti, najčešće su to proboj vakuuma ili kvarovi u delu elektronike. Uglavnom se koristi komercijalna olovna zaštita (5 cm do 10 cm), u kombinaciji sa pleksiglasom, a neke laboratorije su konstruisale i posebne zaštitne kaveze od olovnih, bakarnih i kadmijumskih ploča.

Zavisno od zaštite, nivo prirodnog zračenja (fon) varira u opsegu od 0,8 impulsa po sekundi do 7 impulsa po sekundi za detektore gama zračenja; za alfa i beta detektore iznosi 0,1 impuls po sekundi za detektore alfa zračenja, 1,2 impulsa po sekundi za tečne scintilacione brojače i ispod 20 impulsa po sekundi za Na(I) detektore.

Preko 90 % laboratorija u uzorcima koje ispituju određuje aktivnost gama emitera, par laboratorija određuju i aktivnost alfa i beta emitera, i imaju razvijene i metode za merenje koncentracija radona, ili metode debeloslojnog uzorka za određivanje alfa i beta emitera. Od prirodnih radionuklida određuju se ^{235}U , ^{238}U ,

^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K , ^{220}Rn , ^7Be , ^3H , ^{210}Pb , ^{210}Po , a od fisionih ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{60}Co . Podaci o radiohemijskim metodama za određivanje stroncijuma i plutonijuma nisu dostavljeni.

5. Kalibracija, interkalibracija i interkomparacija merila i metoda

Standardni referentni materijali za aktivnost koji se koriste za kalibraciju merila u laboratorijama za određivanje aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine u našoj zemlji prikazani su u Tabeli 2. Opis i karakteristike materijala su preuzeti onako kako su navedeni u Upitniku, od strane laboratorija - institucija.

Tabela 2. Standardni referentni materijali za aktivnost koji se koriste u institucijama u našoj zemlji

Šifra institucije	Standardni referentni materijali za aktivnost
01	1. mešani izvor Marinelli 0,5 l (Amersham) 2. Marinelli 1 l, ^{152}Eu , ^{133}Ba , ^{137}Cs (Amersham) 3. ^{241}Am + ^{239}Pu + ^{244}Cm , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{244}Cm
02	1. set od 9 referentnih tačkastih gama izvora (Amersham) 2. standardni uzorak mulja SRM4350b (NBS) 3. standardni uzorak zemlje MIX (OMH SZ 91-090) 4. kvarcni pesak QCY-44 (OMH) 5. uzorak fosfata (Vinča)
03	1. set kalibracionih tačkastih izvora ^{241}Am , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{144}Ce , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{22}Na , ^{85}Sr , ^{88}Y (IZINTA, Mađarska) 2. Marinelli sa silikonskom smolom, homogeno dispergovani ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{203}Hg , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{88}Y (CMI, Prag)
04	1. NLB 103 (USAEC) 0,05 % U 2. NLB 107 0,1 % Th 3. KCl
05	1. multi gama referentni izvor QCY-44 (Amersham) - rastvor 2. set izvora za energetska kalibraciju ^{22}Na , ^{60}Co , ^{137}Cs 3. referentni izvori ^{137}Cs , ^{40}K , (VINIM)
06	1. gama izvori u Marinelli 1 l: ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{139}Ce , ^{203}Hg , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{88}Y (Amersham, 1991.) 2. tačkasti izvor ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu (Nucleus90) 3. 200 mg i 400 mg K_2CO_3 , planšete prečnika 2,5 cm i 5 cm
07	1. gama izvori u Marinelli 1 l (Amersham): ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{139}Ce , ^{203}Hg , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{88}Y 2. ^{226}Ra 3. tačkasti izvori (Amersham): ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{133}Ba , ^{88}Y , ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{203}Hg 4. mešavina ^{244}Cm , ^{241}Am , ^{239}Pu 5. ^{210}Po , ^{90}Sr (Amersham) 6. ^{239}Pu (Amersham) 7. ^3H (Amersham)
08	gama emiteri u Marinelli 1 l (Amersham)

09	^{252}Cf ; ^{241}Am ; ^{137}Cs ; ^{60}Co
10	1. tačkasti ^{90}Sr - ^{90}Y 2. debeloslojni KCl 3. tačkasti ^{241}Am
11	tačkasti ^{22}Na , ^{60}Co , ^{137}Cs
12	1. standardi Marinelli ^{152}Eu 2. tačkasti standardi ^{152}Eu (ORIS LMRI) 3. set tačkastih NES 101S DU Pont 4. IAEA Fil.Pap-083 5. Soil-6, IAEA

Analiza podataka prikazanih u Tabeli 2. pokazuje da, u odnosu na period pre 1986. g. [5], laboratorije koje se bave merenjem aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine, raspolazu znatno većim brojem referentnih etaloni materijala, kako onih komercijalnog tipa (Amersham), tako i referentnim radioaktivnim izvorima za kalibraciju koje same pripremaju ili nabavljaju od međunarodnih organizacija (International Atomic Energy Agency-IAEA, iz Beča) ili drugih laboratorija (National Office of Measure – OMH iz Budimpešte). Međutim, kontrola kvaliteta i pouzdanosti merenja uglavnom se i dalje obavlja unutar same laboratorije, a ne putem standardizovanih postupaka interkomparacije i interkalibracije sa drugim srodnim laboratorijama unutar institucije, ili sa drugim srodnim institucijama na nacionalnom i međunarodnom nivou. Takođe, izgleda da se mnogi, po međunarodnim standardima uobičajeni postupci kontrole kvaliteta i pouzdanosti merenja (pomoću "blank" i "repricate" uzoraka, na primer) ne primenjuju. Kao uzorci za kontrolu kvaliteta merenja navedeni su isti referentni izvori i materijali koji se koriste za kalibraciju merila, sa standardnim karakteristikama: srednja merna nesigurnost do 5 %, nivo pouzdanosti 90 %, LLD za ^{137}Cs 0,5 Bq/kg, srednja LLD 3 sigma fona. Podatke o metodama kontrole kvaliteta dalo je svega 40 % laboratorija.[3]

Osim toga, iako je Zakonom o mernim jedinicama i merilima [6] predviđen obavezan pregled merila jonizujućeg zračenja od strane Saveznog zavoda za mere i dragocene metale, samo pet od dvanaest institucija je u skladu sa tim pregledalo svoja merila (tri laboratorije 1992. godine, dve 1997. godine). Poslednja interkalibracija merila jonizujućeg zračenja (spektrometara gama zračenja) na nacionalnom nivou obavljena je 1991/92. godine, pod nadzorom Saveznog zavoda za mere i dragocene metale i u njoj je učestvovalo 7 od 12 navedenih laboratorija. Poslednja interkomparacija rezultata određivanja aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine metodom spektrometrije gama zračenja (uzorak lucerke u različitim geometrijama merenja) na nacionalnom nivou obavljena je neposredno posle nesreće u nuklearnoj elektrani u Černobilu, 1986. godine, u organizaciji Laboratorije za nuklearnu fiziku Instituta za fiziku PMF, u Novom Sadu [5]. Dve laboratorije su 1997. godine u Atini, učestvovala u međunarodnoj interkomparaciji metoda za određivanje koncentracije radona u vazduhu, jedna laboratorija je 1985. godine učestvovala u međunarodnoj interkomparaciji metoda za određivanje tricijuma, u organizaciji Međunarodne Atomske Agencije u Beču, a 1991. godine, jedna od laboratorija je takođe u organizaciji Međunarodne Atomske Agencije, učestvovala u međunarodnoj interkomparaciji metode spektrometrije gama zračenja (merni uzorak mulja). [3]

6. Zaključak

Na osnovu analize podataka dobijenih iz *Upitnika o tehničkim karakteristikama merila i uslovima merenja aktivnosti* koje su dostavile laboratorije koje se bave merenjem aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine u našoj zemlji, može se zaključiti da ove institucije u najvećoj meri raspolazu adekvatnim prostorom, kvalifikovanim kadrom i odgovarajućom instrumentacijom za obavljanje ove aktivnosti. Međutim, u cilju ostvarivanja boljeg kvaliteta merenja i pouzdanosti rezultata u skladu sa međunarodnim standardima i našim zakonodavstvom, potrebno je uvesti redovne kontrole merila jonizujućeg zračenja, organizovati redovne interkalibracije merila i interkomparacije metoda za merenje aktivnosti na nacionalnom nivou, kao i uključiti se u ove postupke na međunarodnom nivou. Od posebnog je značaja organizovanje nacionalnog mrežnog sistema stanica za prikupljanje uzoraka iz životne sredine, kao i bolja kontrola i standardizacija metodologije uzorkovanja u svim njenim fazama. Formiranje nacionalne baze podataka o uslovima merenja aktivnosti radionuklida u uzorcima iz životne sredine treba da predstavlja prvi korak u tom pravcu.

Literatura

- [1] Fisenne, I.M., *Long lived radionuclides in the Environment, in Food and Human Beings*. In "CEC Report on Natural Radiation Environment, EUR 14411 EN, Luxembourg, 1993.
- [2] EML Procedures Manual "*Quality Control and Quality Assurance in Radioactivity Measurements*", HASL-300, US Energy Department. New York, 1990/92.
- [3] Godišnji izveštaj Radne grupe za aktivnost Komisije za jonizujuća zračenja, *Savezni zavod za mere i dragocene metale*, Beograd, 1997.
- [4] IAEA Technical Report Series - IAEA TECDOC/964,1,11, IAEA, Vienna, 1996.
- [5] Marinkov, L., Bikit, J., Slivka, I., Čonkić, Lj., *Izveštaj o interkomparaciji gama spektrometara u Jugoslaviji*, Zbornik radova II jug.simp. o zaštiti životne sredine, Kragujevac, 1986.
- [6] Pravilnik o metrološkim uslovima za poluprovodničke brojače - spektrometre gama zračenja ("Službeni list SFRJ" 22/91) i Metrološko uputstvo za pregled poluprovodničkih brojača - spektrometara gama zračenja ("GLASNIK" Saveznog zavoda za mere i dragocene metale, 2/91)