Radiološka svojstva tla u Republici Hrvatskoj

Šoštarić, Marko

Doctoral thesis / Disertacija

2017

Degree Grantor / Ustanova koja je dodijelila akademski / stručni stupanj: **University of Zagreb, Faculty of Science / Sveučilište u Zagrebu, Prirodoslovno-matematički fakultet**

Permanent link / Trajna poveznica: https://urn.nsk.hr/urn:nbn:hr:217:948742

Rights / Prava: In copyright / Zaštićeno autorskim pravom.

Download date / Datum preuzimanja: **2024-03-28**

Repository / Repozitorij:

Repository of the Faculty of Science - University of Zagreb

Sveučilište u Zagrebu

Prirodoslovno-matematički fakultet
Fizički odsjek

Marko Šoštarić

RADIOLOŠKA SVOJSTVA TLA U REPUBLICI HRVATSKOJ

DOKTORSKI RAD

Mentor: Dr. sc. Dinko Babić

Zagreb, 2017.

University of Zagreb

Faculty of science
Physics Department

Marko Šoštarić

RADIOLOGICAL PROPERTIES OF SOIL IN THE REPUBLIC OF CROATIA

DOCTORAL THESIS

Supervisor: Dr Dinko Babić

Zagreb, 2017

Mentor: dr. sc. Dinko Babić

Diplomirao (1990.) i doktorirao (1996.) fiziku na Sveučilištu u Zagrebu. Usavršavao se na Sveučilištu u Cambridgeu (Velika Britanija) 1998. i Sveučilištu u Baselu (Švicarska) 1998. - 2001., a u više navrata u razdoblju 2002. - 2009. boravio kao gostujući znanstvenik na Sveučilištu u Regensburgu (Njemačka). Docent na Prirodoslovno-matematičkom fakultetu Sveučilišta u Zagrebu 2002. - 2010. Znanstveni suradnik (2010. – 2011.), viši znanstveni suradnik (2011. - 2016.) i znanstveni savjetnik (2016. -) na Institutu za medicinska istraživanja i medicinu rada u Zagrebu.

ZAHVALE

Zahvaljujem voditelju doktorskog rada dr. sc. Dinku Babiću na besprijekornom vođenju i svakodnevnoj pomoći, te na preciznim i stručnim savjetima pri izradi doktorskog rada. Svojim bogatim znanstvenim iskustvom i znanjem značajno je utjecao na konačan oblik koji je rad poprimio.

Zahvaljujem svim djelatnicima Jedinice za zaštitu od zračenja Instituta za medicinska istraživanja i medicinu rada na doprinosu i pomoći. Posebno zahvaljujem kolegi Maku Avdiću na pomoći kod prikupljanja i pripreme uzoraka za mjerenje.

Hvala mojoj obitelji, Dragutinu, Đurđici, Tomislavu i Lani Šoštarić, na pruženoj podršci kroz vrijeme izrade doktorskog rada.

Također, hvala i uvijek prisutnim dugogodišnjim prijateljima Marku Dimjaševiću, Miroslavi Harči, Marku Matosoviću i Ivanu Sokoloviću.

SAŽETAK

U ovoj disertaciji prikazano je istraživanje radioloških svojstava tla na području Republike Hrvatske. U svrhu tog istraživanja provedeno je gama spektrometrijsko mjerenje 155 uzoraka tla, od čega 138 uzoraka s nekultiviranih površina i 17 uzoraka s poljoprivrednih površina. Uzorci nekultiviranog tla uzorkovani su sistematično na cijelom području Republike Hrvatske. Za poljoprivredne površine na kojima je provedeno uzorkovanje poznati su načini tretiranja i obrade, te fizikalni i kemijski parametri tla. Kako bi mjerenja uzoraka bila što preciznija, provedena je i korekcija samoatenuacije gama fotona pomoću metode koja je razvijena u sklopu provedenog istraživanja. Metoda je temeljena na mjerenju transmisija gama fotona kroz uzorke i na Monte Carlo simulacijama. Provedenim mjerenjima dobivene su koncentracije aktivnosti radionuklida u uzorcima, na temelju kojih je dobivena općenita slika stanja radioaktivnosti u tlu na području Republike Hrvatske. Određene su koncentracije aktivnosti radionuklida prirodne pojavnosti i antropogenih radionuklida, koje su prikazane na mapi Republike Hrvatske, tj. dobivene su radiološke mape pojedinih radionuklida. Od radionuklida prirodne pojavnosti promatrani su radionuklidi iz nizova ^{238}U i ^{232}Th, te ^{40}K, a od antropogenih radonuklida ^{137}Cs i ^{90}Sr. Koncentracije aktivnosti uspoređene su s parametrima tla, te s drugim geografskim i klimatološkim parametrima područja Republike Hrvatske. Na području primorske i planinske Hrvatske mjerene su najviše koncentracije aktivnosti radionuklida iz nizova ^{238}U i ^{232}Th, dok su na području panonske Hrvatske mjerene najviše koncentracije aktivnosti ^{40}K. Na području planinske Hrvatske mjerene su najviše, a na području Slavonije vrlo niske koncentracije aktivnosti ^{137}Cs. Na temelju mjerenih koncentracija aktivnosti izračunate su brzine apsorbiranih doza od vanjskog izlaganja zračenju radionuklida iz tla, koje su također prikazane na mapi. S obzirom na relativno velike geografske i klimatološke razlike na malom području Republike Hrvatske, opisano istraživanje idealno je za procjenu rizika od potencijalnih ispuštanja većih količina antropogenih radionuklida u okoliš. Istraživanje vezano uz poljoprivredna tla prvi je korak u proučavanju ulaska radionuklida u hranidbene lance. Osim provedenih istraživanja i donesenih zaključaka, razmotrene su i predložene smjernice za daljnja istraživanja vezana na ovu temu.

Ključne riječi: radionuklidi, tlo, Republika Hrvatska, koncentracija aktivnosti, apsorbirana doza, radiološka mapa, samoatenuacija.

ABSTRACT

In this thesis, a research on the radiological properties of soil in the Republic of Croatia is presented. This research is focused mostly on radionuclides that commonly appear in soil and which are the sources of ionizing radiation (α, β, and γ radiation). Of all the constituents of the environment, soil is generally the medium with the highest radionuclide concentrations. Radionuclides from the other media, air and water, may also end up in soil. Because of that, the presented research can be considered to be an indicator of the general state of the environmental radioactivity in Croatia, representing a starting point for an assessment of exposure of the population to ionizing radiation from the environment. Radionuclides that can be found in the environment, and which are mainly considered in this work, can be separated into two groups: naturally occurring radionuclides, and anthropogenic radionuclides. Primordial radionuclides, which form a majority of naturally occurring radionuclides, originate from the time before the formation of Earth, as they were produced in massive star explosions. These radionuclides have a half-life of a few billions years, hence they are present in the environment even today. The main representatives of the primordial radionuclides are ^{40}K, ^{238}U, ^{235}U, and ^{232}Th. The latter three of them are the first ones in their respective decay chains which undergo a series of around fifteen decays before ending up with a stable nucleus. Radionuclides which appear in the decay chains, for instance ^{226}Ra, ^{210}Pb, and ^{208}Tl, are called secondary radionuclides, and they are also considered in this work. The remaining naturally occurring radionuclides, which are not so abundant, are produced by the interactions of cosmic radiation with Earth's atmosphere, and they are therefore termed cosmogenic radionuclides. These radionuclides primarily appear in air, and they have not been considered in this work. Anthropogenic radionuclides are produced by human activity. The main source of anthropogenic radionuclides are nuclear fission reactions that occur in nuclear reactors or in nuclear weapon explosions. In nuclear power plants, anthropogenic radionuclides are produced in large amounts. In nuclear accidents such as those which occurred in Chernobyl or Fukushima, considerable quantities of anthropogenic radionuclides may end up in the environment, where they pose a serious threat to people and other living organisms. Anthropogenic radionuclides which are found in soil at the territory of Croatia are ^{137}Cs and ^{90}Sr. The presence of ^{137}Cs is mainly a consequence of the Chernobyl accident, whereas ^{90}Sr in larger part originates from atmospheric nuclear weapons tests. Both of them stay for a long time in the environment because of their relatively long half-live (~ 30 years). Radionuclides can negatively affect people and other living organisms by external

irradiation, inhalation, and ingestion, and those in soil take part in all of these three exposure mechanisms. People are normally in the proximity of soil, which causes an external irradiation. Some radionuclides can be released from soil into air, and people can therefore inhale them. Plants absorb radionuclides and incorporate them into the food chain with humans as the final consumers. Internal irradiation inside a body is very hazardous because radionuclides irradiate cells not only with γ radiation but also with α and β particles.

In order to carry out the investigations outlined above, gamma-ray spectrometry measurements on 155 soil samples were performed; of these, 138 referred to uncultivated soil and 17 to agricultural soil. Upmost 10 cm layer of soil was sampled. Samples of uncultivated soils were sampled systematically over the whole territory of Croatia. Measurements were carried out using two high purity germanium detectors. The detectors were calibrated using standards containing radionuclides of known activity. Every sample was measured for 24 hours. Measurements resulted in the spectra of gamma rays emitted from samples. By analysing every spectrum "peak by peak", activity concentrations of radionuclides were determined. Since germanium detectors measure only gamma rays, they cannot be used for the detection of radionuclides that are not gamma emitters. However, if a daughter nucleus emits gamma photons and have a half-life considerably shorter than that of its parent, the activity of the latter radionuclide can be determined even if it is not a gamma emitter. This property was used to determine the activity concentrations of some radionuclides that are not gamma emitters.

In order to obtain more accurate measurement results, corrections for coincidence summing and for gamma ray attenuation effects were carried out. Coincidence summing correction was performed using the EFFTRAN freely available software. Gamma ray self-attenuation correction generally depends on sample composition, which has not been known for measured samples of soil. Methods for performing gamma ray self-attenuation correction require either a laboratory setup with collimated gamma ray sources or the knowledge of the linear attenuation coefficient of a sample. None of these was applicable to this research. In order to solve this problem, a new method for determining a gamma ray self-attenuation correction was developed. The method combines gamma ray transmission measurements and Monte Carlo simulations. The source of gamma rays for transmission measurements was the sample used for detector calibration. To facilitate Monte Carlo simulations, a software, written in the "R" programming language, was developed. The software uses data from transmission measurements as the input, and calculates correction factors as the output. To calculate the correct activity concentration of a radionuclide, a measured activity concentration is multiplied

by the calculated factor. Besides calculating the correction factors, the method also provides the linear attenuation coefficient of a measured sample.

On the basis of the measured activity concentrations of radionuclides in soil samples, a general overview of the radioactivity of soil in Croatia has been obtained. Of naturally occurring radionuclides, results for ^{40}K, ^{238}U, ^{232}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb, and ^{208}Tl have been presented, which is usual in studies of that kind. Besides these, results for anthropogenic ^{137}Cs and ^{90}Sr have also been shown. Measured activity concentrations have been presented on the map of Croatia. Each of these maps shows a distribution of the activity concentration of a given radionuclide. Measured activity concentrations have been correlated with geographical, geological, and climatological parameters, as well as with generic soil properties. For easier comparison with radionuclide distributions, some of these parameters have been shown on the map as well. Naturally occurring radionuclides display a correlation with the geological parameters of soil, i.e., with parent material of soil. In the highland and coastal parts of Croatia, where soil parent materials are limestone and dolomite, the activity concentrations of radionuclides from decay series of ^{238}U and ^{232}Th are above average. Within these decay chains, ^{226}Ra shows the best correlation with the distribution of limestone and dolomite. In the Pannonian part of Croatia, where soil parent materials are loess, loams, sand, and clay, the activity concentration of ^{40}K is above average. Significantly higher activity concentrations of ^{137}Cs are found in the highland part of Croatia, while very low concentrations appear in Slavonia. Moreover, a good correlation between ^{137}Cs and the amount of precipitation has been found. Measurements on agricultural soil, where physical and chemical parameters like texture, porosity, water capacity, and cation exchange capacity have been known, indicate that there are other soil parameters which can affect ^{137}Cs retention in soil. On the basis of the measured activities, absorbed doses for external irradiation from naturally occurring radionuclides and ^{137}Cs in soil have been calculated and presented on the map. Very diverse geological, geographical, pedological, and climatological conditions on a relatively small area make Croatia a suitable place for investigating the effects and risks of a possible release of anthropogenic radionuclides into the environment. Measurements of activity concentrations in agricultural soil is the first step towards investigating the transport of radionuclides through the food chain. In addition to the obtained data, observed trends, and drawn conclusions on the radioactivity of soil in Croatia, this work has also resulted in certain general conclusions on the relations between soil properties and the concentrations of radionuclides therein. Systematic and precise measurements of a large number of samples strongly support conclusions. Guidelines for possible future investigations related to this research are also outlined.

Key words: radionuclides, soil, Republic of Croatia, activity concentration, absorbed dose, self-attenuation correction.

SADRŽAJ

1. UVOD 1

2. IZVORI RADIOAKTIVNOSTI U OKOLIŠU I RADIOEKOLOGIJA 7

2.1. Radionuklidi prirodne pojavnosti 7

2.2. Antropogeni radionuklidi 12

2.3. Radionuklidi u medicini 16

3. FIZIKA I RADIOAKTIVNOST U OKOLIŠU 19

3.1. Fizikalna svojstva radionuklida 19

3.2. Koncentracija aktivnosti radionuklida u okolišu 25

3.3. Biološki utjecaj radionuklida 26

3.4. Kvantifikacija utjecaja ionizirajućeg zračenja 28

3.5. Radioekologija i interdisciplinarnost kod proučavanja okolišne radioaktivnosti 30

4. EKSPERIMENTALNI PRISTUP ISTRAŽIVANJU RADIOAKTIVNOSTI TLA .. 32

4.1. Uzorkovanje i pripremanje uzoraka 32

4.2. Visokorezolucijska gama spektrometrija 33

4.2.1. Detektorski sustav 34

4.2.2. Kalibracija energije i efikasnosti 39

4.2.3. Korekcija samoatenuacije 41

4.2.4. Korekcija koincidentnog zbrajanja 55

4.2.5. Analiza spektra 56

4.3. Određivanje koncentracija aktivnosti ^{90}Sr 59

5. REZULTATI I RASPRAVA 61

5.1. Svojstva tla na području RH i utjecaj na radioaktivnost 62

5.2. Mjerene koncentracije aktivnosti 64

5.2.1. Koncentracije aktivnosti radionuklida prirodne pojavnosti 64

5.2.2. Koncentracije aktivnosti ^{137}Cs 73

5.2.3. Koncentracije aktivnosti ^{90}Sr 77

5.3. Određivanje brzina apsorbiranih doza 78

5.3.1. Brzine apsorbiranih doza od radionuklida prirodne pojavnosti 79

5.3.2. Brzine apsorbirana doza od ^{137}Cs ... 80
5.3.3. Ukupna brzina apsorbirane doze ... 82
5.4. Radiološka svojstva nekih poljoprivrednih tla u RH ... 83
5.5. Usporedba s drugim područjima Europe i svijeta ... 87

6. ZAKLJUČAK ... 90

7. POPIS LITERATURE ... 93

PRILOZI ... 100
PRILOG A. Lokacije uzorkovanja nekultiviranih tla ... 100
PRILOG B. Newton-Raphsonova iterativna metoda ... 101
PRILOG C. Koncentracije aktivnosti odabranih radionuklida iz nizova raspada u uzorcima nekultiviranih tla. ... 102
PRILOG D. Koncentracije aktivnosti ^{137}Cs i ^{40}K, omjer ^{137}Cs i K u uzorcima nekultiviranih tla, te količina oborine na lokacijama uzorkovanja ... 105
PRILOG E. Brzine apsorbiranih doza dobivene direktnim ozračivanjem od radionuklida iz nekultiviranih tla ... 108
PRILOG F. Koncentracije aktivnosti radionuklida u uzorcima tla s poljoprivrednih površina i u mineralnom gnojivu ... 110

1. UVOD

Ionizirajuće zračenje oblik je zračenja koje ima dovoljno energije da može ionizirati atome ili molekule. U ionizirajuće zračenje spadaju ubrzani ioni i subatomske čestice te dio elektromagnetskog spektra zračenja. Kod interakcije s tkivom živih organizama, ionizirajuće zračenje ionizira molekule stanica tkiva, što u konačnici može negativno utjecati na zdravlje cjelokupnog organizma. Negativan utjecaj na stanice dominantno se ostvaruje neposrednom ili posrednom interakcijom s DNK molekulama. Najčešće vrste ionizirajućeg zračenja kojima čovjek može biti izložen jesu α, β, γ i X zračenje. Radionuklidi, atomi čije se jezgre spontano raspadaju[1], izvori su α, β i γ zračenja koja zajednički nazivamo radioaktivnost. X zračenje stvara se raspršenjem nabijenih čestica u određenim materijalima putem zakočnog zračenja ili prijelazima između elektronskih stanja u atomu. γ i X zračenja spadaju u elektromagnetski spektar, mogu imati istu energiju, a razlikuju se po mjestu stvaranja; γ zračenje nastaje u jezgri, a X zračenje u elektronskom omotaču atoma. Prirodno ili čovjekovom aktivnošću nastali radionuklidi, kao izvori α, β i γ zračenja mogu se naći u svim medijima (tlo, voda i zrak) koji okružuju čovjeka, dok je izloženost čovjeka X zračenju najčešća putem dijagnostike ili terapije u medicini. Kako bi se umanjio utjecaj ionizirajućeg zračenja na čovjeka, potrebno je provoditi istraživanja vezana uz izvore i mehanizme putem kojih čovjek može biti izložen ionizirajućem zračenju.

U ovoj disertaciji razmotrit će se radionuklidi kao izvori ionizirajućeg zračenja, tlo kao medij u kojem se radionuklidi nalaze i njihov potencijalni utjecaj na zdravlje šire populacije ljudi. Također, pored općenitih razmatranja vezanih uz radionuklide u tlu kao mediju, disertacija će se baviti tlom Republike Hrvatske, jer sustavna radiološka istraživanja tla Republike Hrvatske ne postoje. Tlo kao medij prirodno sadrži veće koncentracije radionuklida nego što sadrže voda i zrak. Također, radionuklidi koji prirodno ili djelovanjem čovjeka nastaju ili budu ispušteni u zrak, raznim procesima kroz određeno vrijeme u konačnici završe u tlu. Veća zastupljenost radionuklida u tlu predstavlja i veću opasnost za čovjeka, zbog čega kod radiološke karakterizacije okoliša posebnu pozornost treba usmjeriti na radionuklide u tlu. Jedan aspekt opasnosti od radionuklida iz tla za čovjeka dolazi od direktnog izlaganja γ zrakama. Pri nuklearnim prijelazima, tj. α i β raspadima, jezgre često emitiraju i γ fotone relativno visokih energija i visoke prodornosti, koji mogu direktno ozračivati tijelo čovjeka i

[1] Za raspad vrijedi da je promjena broja neraspadnutih jezgara proporcionalna broju neraspadnutih jezgara, a iz tog svojstva proizlazi eksponencijalni zakon radioaktivnog raspada.

izazivati štetne učinke. Drugi aspekt opasnosti od radionuklida iz tla je prijenos radionuklida iz tla u tijelo čovjeka putem hranidbenog lanca ili udisanjem. Ovdje glavnu opasnost predstavljaju α i β zračenja koja su posebno štetna ako su emitirana unutar tijela čovjeka. Određene radionuklide mnoge biljke ili gljive vrlo dobro apsorbiraju iz tla i uvode ih u hranidbene lance kojima je čovjek na vrhu. Takvi se radionuklidi, kako u organizmima hranidbenog lanca tako i u čovjeku, obično dulje biološki zadržavaju, a time i više ionizirajućeg zračenja emitiraju unutar čovjeka. Određivanje količine i vrste radionuklida u okolišu od važnosti je za procjenu izloženosti populacije ljudi i za eventualno poduzimanje mjera kojima bi se umanjio ili spriječio negativan utjecaj ionizirajućeg zračenja koje dolazi od radionuklida, pri čemu posebnu pozornost treba usmjeriti na radioaktivnost tla jer je ona, kako je već istaknuto, najveća kad se usporede svi prirodni mediji u okolišu.

Radionuklidi se najčešće identificiraju i kvantificiraju pomoću raznih brojača i spektrometara, posredno preko za pojedini radionuklid karakterističnog α, β ili γ zračenja. Kako γ zračenje najlakše prolazi od uzorka do detektora i ima precizno definiranu energiju karakterističnu za pojedini radionuklid, veliki se broj različitih radionuklida najlakše detektira preko γ zračenja. Najčešća metoda za identifikaciju i kvantifikaciju radionuklida, koja je korištena i za potrebe ove disertacije, je visokorezolucijska gama spektrometrija. Za detektiranje γ zračenja koristi se poluvodički kristal vrlo čistog germanija u konfiguraciji zaporno polarizirane diode. γ foton u poluvodičkom kristalu stvara elektrone i šupljine, a broj stvorenih parova proporcionalan je energiji fotona, što je osnova za dobivanje spektra. Prednosti ove metode jesu visoka rezolucija γ zraka, mogućnost mjerenja relativno malih aktivnosti i preciznost samog mjerenja, dok su njeni nedostaci nemogućnost direktnog mjerenja radionuklida koji ne emitiraju ili slabo emitiraju γ zračenje, relativno visoka cijena detektora i opreme te nužnost hlađenja detektora na temperaturu tekućeg dušika.

Općenito, određeni radionuklidi prirodno postoje u okolišu i nazivamo ih radionuklidima prirodne pojavnosti (PP radionuklidi, eng. *naturally occurring radionuclides*), a druge svojim djelovanjem stvara čovjek i nazivamo ih antropogenim radionuklidima. U skupinu PP radionuklida spadaju primordijalni, kozmogeni i potomci primordijalnih radionuklida. Primordijalni radionuklidi nastali su prije formiranja Sunčevog sustava u procesima eksplozija masivnih zvijezda, a u okolišu ih opažamo zbog dugog vremena poluraspada[2]. Najznačajniji primordijalni radionuklidi s aspekta radioekologije jesu ^{40}K, ^{232}Th, ^{238}U i ^{235}U. Posljednja tri prelaze nizom nuklearnih raspada preko potomaka do stabilne jezgre.

[2] Vrijeme poluraspada je vrijeme za koje broj jezgara radionuklida padne na polovinu početnog broja jezgara.

Pri svakom od prijelaza emitira se ionizirajuće zračenje, α ili β, a obično je popraćeno i γ zračenjem. Pored primordijalnih radionuklida i njihovih potomaka, u skupinu PP radionuklida spadaju još i kozmogeni radionuklidi. Oni nastaju sudaranjem kozmičkog zračenja sa stabilnim jezgrama atoma Zemljine atmosfere. Primjeri takvih radionuklida jesu ^{7}Be, ^{14}C, ^{3}H, ^{32}P, i mogu se detektirati na površini Zemlje. Pored zračenja emitiranog od PP radionuklida (PP radioaktivnost) potrebno je spomenuti i kozmičko zračenje koje u manjem dijelu također doprinosi ukupnom ionizirajućem zračenju kojem je čovjek izložen. Antropogeni radionuklidi nastaju kao produkt nuklearnih reakcija koje inducira čovjek u razne, uglavnom korisne svrhe. Najviše ih se stvara u reaktorima nuklearnih elektrana procesom nuklearne fisije u svrhu dobivanja toplinske, tj. električne energije. Također, određeni radionuklidi dobiveni u nuklearnim elektranama ili pomoću raznih akceleratora nalaze svoju široku primjenu prvenstveno u medicini, a i u mnogim drugim industrijskim djelatnostima. Kod procesa dobivanja nuklearne energije i u postupcima korištenja radionuklida poduzimaju se opsežne mjere u zaštiti osoblja i u sprječavanju ispuštanja radionuklida u okoliš. Unatoč brojnim sigurnosnim mjerama na više razina, određeni propusti i malo vjerojatni događaji mogu dovesti do nuklearnih nesreća, tj. do ispuštanja radionuklida u okoliš. Najpoznatiji primjeri takvih događaja jesu akcidenti u nuklearnim elektranama u Černobilu i Fukushimi, nakon kojih su u okolišu čovjeka završile velike količine radionuklida kao što su ^{131}I, ^{134}Cs, ^{137}Cs i ^{90}Sr [1,2]. Pored navedenih nuklearnih nesreća potrebno je spomenuti i pokuse s atmosferskim nuklearnim eksplozijama koji su provođeni 50-ih i 60-ih godina 20-tog stoljeća i kojima su također u atmosferu ispuštene velike količine radionuklida [3]. Određene količine nastale pokusima još uvijek se nalaze u gornjim slojevima atmosfere i polagano raznim atmosferskim procesima dospijevaju na tlo [4]. Radionuklidi dospjeli u okoliš nakon nuklearnih nesreća i pokusa nuklearnih eksplozija, koji imaju dovoljno dugo vrijeme poluraspada kao što su ^{137}Cs i ^{90}Sr, i danas se mjere u okolišu [5–7], a također i na području Republike Hrvatske [8–10]. Radionuklidi ispušteni za vrijeme i nakon nuklearnih akcidenata mogu dospjeti i na velike udaljenosti od mjesta ispuštanja, pa su tako na području Europe [11–13] i RH [14,15] mjereni radionuklidi ispušteni iz nuklearne elektrane u Fukushimi.

Zbog svijesti o štetnosti ionizirajućeg zračenja, istraživanja i mjerenja provode se u svim dijelovima svijeta. Nakon nuklearne nesreće u Černobilu 1986. godine gotovo cijela Europa primila je određene količine antropogenih radionuklida, što je uvelike intenziviralo mjerenja [7,16–18]. Također, nakon nuklearne nesreće u Fukushimi 2011. godine, mjerenja su intenzivirana na području Japana i Istočne Azije [19–21]. Radionuklide s relativno dugim

vremenima poluraspada, kao što su ^{137}Cs i ^{90}Sr,[3] potrebno je nadzirati dugi niz godina nakon što dođu u okoliš. Što se tiče PP skupine radionuklida, veće koncentracije mogu se naći u materijalima koji prolaze kroz određene industrijske ili tehnološke procese, a njihove sirovine obično dolaze iz rudnika. Primjeri takvih materijala jesu fosfogips iz petrokemijske industrije [22] i šljaka dobivena spaljivanjem ugljena u termoelektarnama [23,24]. Također, rudnici i okoliš rudnika obično sadrže povećane količine PP radionuklida [25,26]. Od tih radionuklida, posebna se pozornost posvećuje ^{222}Rn jer je inertan plin i iz tla se lagano oslobađa u zrak koji čovjek udiše. Povezuje se s povećanom pojavnošću karcinoma pluća, zbog čega se provode brojna mjerenja i istraživanja [27–30]. Praćenje radioaktivnosti okoliša u RH provodi se konstantno od 1959. godine. S druge strane, radioaktivnost tla kao medija koji sadrži najveće količine radionuklida mjerena je samo na nekoliko lokacija u RH, a sustavnih mjerenja na većem broju lokacija nije bilo. Za razliku od RH, većina zemalja Europe provela je mjerenja radionuklida u tlu na većem broju lokacija unutar vlastitog teritorija [16], pa je jedan od ciljeva ove disertacije da se i RH uklopi u taj trend.

PP radionuklidi količinom su zastupljeniji u okolišu od antropogenih radionuklida, a time i više doprinose ukupnoj količini ionizirajućeg zračenja kojoj je čovjek izložen. Iznimka su okoline mjesta velikih nuklearnih nesreća kao što su Černobil i Fukushima. Evolucijom, živi organizmi i čovjek razvili su se na način da je utjecaj zračenja od PP radionuklida na njihovo zdravlje gotovo zanemariv, zbog čega je posebna pozornost posvećena mjerenju antropogenih radionuklida jer predstavljaju dodatak na zračenje s kojim je čovjek evoluirao. Utjecaj na zdravlje u ovisnosti o količini apsorbiranog zračenja dijeli se na deterministički i stohastički utjecaj. Velike količine zračenja izazivaju determinističke efekte, dok male količine izazivaju stohastičke učinke. Kod determinističkog područja djelovanja jasno se zna koja oboljenja će zračenje izazvati. Za stohastičko područje vrijedi tzv. linearni model, tj. vjerojatnost oboljenja proporcionalna je količini apsorbiranog zračenja. Iako potvrđen za veće količine, linearni model nije dovoljno istražen za male količine, tj. za količine ionizirajućeg zračenja bliske nuli. Eksperimentalno nije jednostavno utvrditi utjecaj malih količina zračenja, tj. ne zna se sa sigurnošću je li vjerojatnost oboljenja od malih količina zračenja jednaka nuli ili različita od nule. Općenito, ljudi su uglavnom izloženi malim količinama ionizirajućeg zračenja, a utjecaj malih količina ne razumije se u potpunosti, što je danas predmet brojnih istraživanja [31,32]. Pored mjerenja radionuklida u okolišu, provode se brojna istraživanja prenošenja radionuklida iz okoliša putem hranidbenih lanaca u tijelo čovjeka [33,34]. O biološkom ponašanju

[3] Vrijeme poluraspada ^{137}Cs iznosi 30,07 godina, a ^{90}Sr 28,78 godina.

radionuklida u tijelu i posljedičnom utjecaju na tijelo, također se provode brojna istraživanja [35].

Ideja ove disertacije je dobivanje sveobuhvatne slike o stanju radioaktivnosti tla na području RH, što uključuje: identifikaciju i kvantifikaciju PP i antropogenih radionuklida u uzorcima tla s područja RH, interpretaciju sa stanovišta fizike, unapređenje metode mjerenja, interpretaciju s obzirom na vrstu tla i oborine, razmatranje utjecaja poljoprivrede, proračun direktne izloženosti stanovništva i dobivanje smjernica za daljnja istraživanja. U tu svrhu prikupljeno je i mjereno 155 uzoraka tla. Svi su uzorci mjereni visokorezolucijskom gama spektrometrijom, a na manjem broju uzoraka provedeno je radiokemijsko određivanje ^{90}Sr. 138 uzoraka nekultiviranog (neobrađenog) i netretiranog površinskog tla prikupljeno je na različitim lokacijama preko cijelog teritorija RH, a 17 na pokusnim poljoprivrednim površinama. Sva mjerenja provedena su na Institutu za medicinska istraživanja i medicinu rada. Uzorci s pokusnih poljoprivrednih površina dobiveni su kroz suradnju s Agronomskim fakultetom Sveučilišta u Zagrebu.

Disertacija sadrži tri bitna znanstvena doprinosa. Prvo, uvedena je vlastita metoda određivanja samoatenuacijskih korekcija kombinacijom transmisijskih mjerenja i Monte Carlo simulacija [36], čime je unaprjeđeno mjerenje gama spektrometrijom na općenitoj razini. Metoda je primijenjena na svim mjerenjima provedenim za potrebe ove disertacije, a nužnost tog postupka proizlazi iz nepoznavanja pojedinosti kemijskog sastava i strukture uzoraka. Drugo, na temelju mjerenja 138 uzoraka tla uzorkovanih na cijelom teritoriju RH, dobivene su mape koje prikazuju koncentracije pojedinih radionuklida i izračunata je vanjska izloženost stanovništva za sva područja. Treće, na temelju mjerenja uzoraka poljoprivrednih tla, kojima su detaljnije poznata svojstva, doneseni su zaključci o radioaktivnosti tla s obzirom na način obrade, tretiranje mineralnim gnojivima i s obzirom na dobro definirane parametre tla [37].

Disertacija je podijeljena na nekoliko poglavlja. Nakon uvoda, drugo poglavlje govori o radioaktivnosti u okolišu općenito. Opisano je što čini radioaktivnost u okolišu i što dosadašnja istraživanja govore o prosječnoj izloženosti čovjeka od pojedinih izvora. Nakon toga detaljno su opisane vrste radionuklida s obzirom na njihov nastanak. Također, opisana je radioekologija, interdisciplinarno područje znanosti koje uključuje i fiziku, a proučava utjecaj radioaktivnosti na ekosustav u kojem se i čovjek nalazi. Treće poglavlje govori o ulozi fizike u proučavanju radioaktivnosti. Uvedene su fizikalne veličine koje su predmet promatranja i objašnjena je njihova važnost u području radioekologije. Navedene su njihove tipične vrijednosti i efekti koje mogu izazvati. Opisani su razlozi i mehanizmi zbog kojih su pojedini radionuklidi više štetni, a drugi manje, tj. opisano je njihovo biološko ponašanje u tijelu

čovjeka. Uveden je pojam doze i efektivne doze, te objašnjena problematika vezana uz određivanje efektivne doze. Također, objašnjena je važnost fizike u radioekologiji. U četvrtom poglavlju opisan je eksperimentalni pristup u istraživanju radioaktivnosti tla. Opisan je način na koji je provedeno uzorkovanje i priprema uzoraka za mjerenje. Opisana je visokorezolucijska gama spektrometrija kojom je mjeren veći dio uzoraka za potrebe disertacije. Opisan je način na koji je provedena kalibracija uređaja. Objašnjen je način na koji se provodi analiza dobivenih spektara i prikazana na primjeru tipičnih radionuklida. Opisan je i način na koji se gama spektrometrijom kvantificiraju i radionuklidi koji ne emitiraju γ fotone. Zasebno su opisane korekcije samoatenuacije i koincidentnog sumiranja. Na proširen način opisana je korištena metoda korekcije samoatenuacije, koja je razvijena za potrebe mjerenja u disertaciji i koja predstavlja originalni znanstveni doprinos općenitog tipa. Na kraju poglavlja ukratko je opisana radiokemija i postupak određivanja ^{90}Sr koji je proveden na manjem dijelu uzoraka. Peto poglavlje prikazuje rezultate mjerenja. Izmjerene vrijednosti koncentracija aktivnosti pojedinih radionuklida i izračunate doze vanjskog izlaganja upotrebom QGIS softvera prikazane su na mapi RH. Razmotrena je povezanost mjerenih koncentracija aktivnosti s parametrima tla i s drugim okolišnim parametrima. Uz dobivene rezultate dane su interpretacije rezultata i doneseni zaključci. U šestom poglavlju iznesen je sažetak zaključaka proizašlih iz dobivenih mjerenja i analiza. U prilogu su navedeni podaci dobiveni mjerenjima.

2. IZVORI RADIOAKTIVNOSTI U OKOLIŠU I RADIOEKOLOGIJA

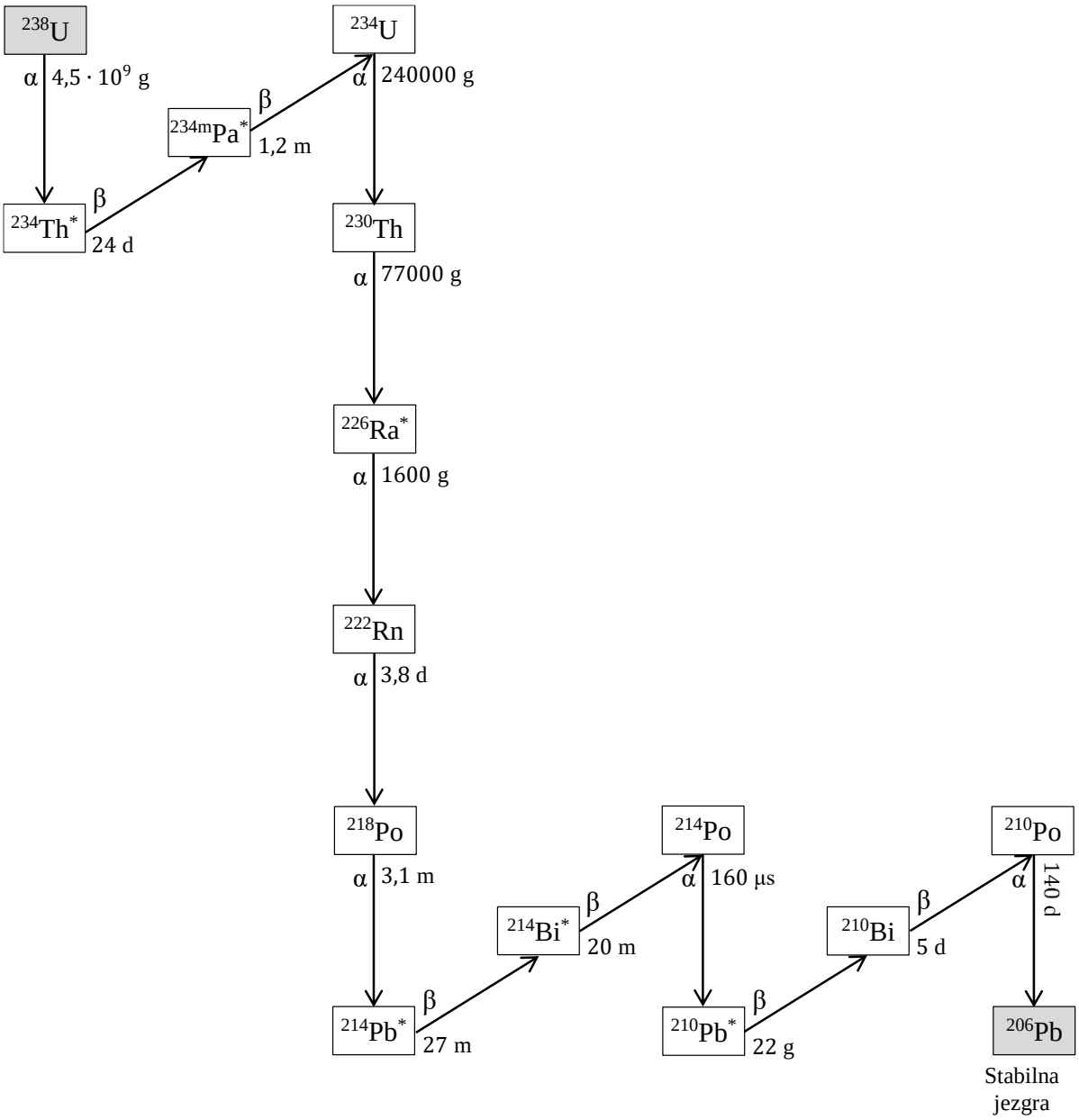
Izvore radioaktivnosti u okolišu čine nestabilne jezgre koje spontanim raspadom emitiraju α, β ili γ zračenje. Poznato je na tisuće nestabilnih jezgara, a samo neke od njih imaju dovoljno dugo vrijeme poluraspada i zastupljenost u okolišu da bismo ih opažali. Radionuklidi se nalaze u svim dijelovima okoliša[4], a najviše su zastupljeni u tlu, stijenama i unutrašnjosti Zemlje. Općenito, radionuklide dijelimo na PP radionuklide i antropogene radionuklide. Grana znanosti koja proučava sve aspekte ionizirajućeg zračenja u okolišu, kao i utjecaj na čovjeka, naziva se radioekologija. Uključuje područja fizike, kemije, biologije i ekologije.

2.1. Radionuklidi prirodne pojavnosti

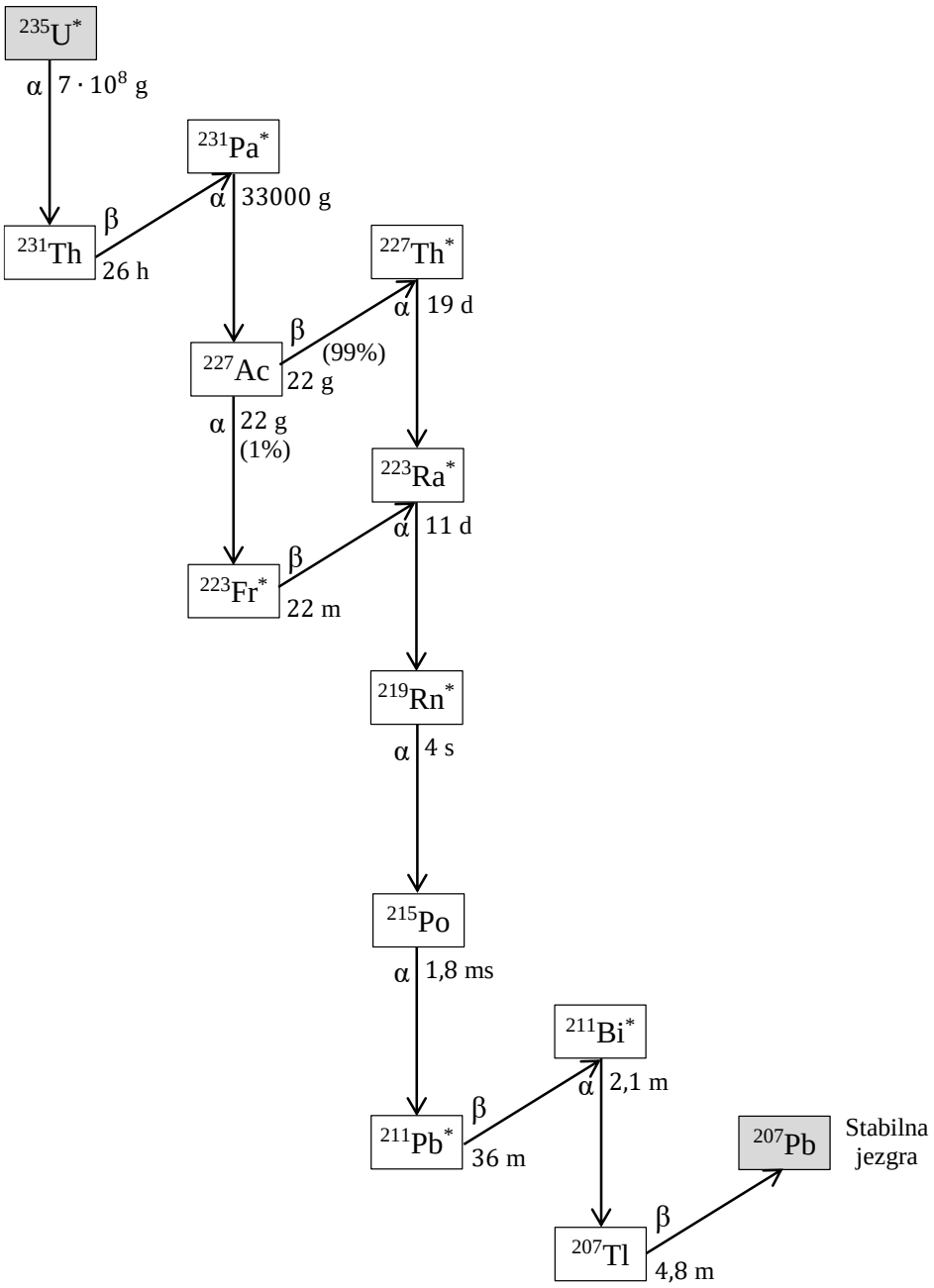
Najzastupljeniji PP radionuklidi u okolišu jesu primordijalni radionuklidi, a u prirodi ih nalazimo 32. Većina ih je nastala kroz r-proces[5] (eng. *rapid neutron capture*) u eksplozijama masivnih zvijezda, tj. u supernovama, a manji dio u drugim procesima istih masivnih zvijezda. Opaženi primordijalni radionuklidi imaju relativno dugo vrijeme poluraspada, gdje ^{235}U ima najkraće ($7{,}04 \cdot 10^{8}$ godina)[6], a ^{128}Te najdulje ($2{,}41 \cdot 10^{24}$ godina). Ostale formirane radionuklide s vremenom poluraspada kraćim od 10^{8} godina ne opažamo u prirodi jer su se raspali od vremena prije formiranja Sunčeva sustava pa do danas. Primordijalni radionuklidi s vremenima poluraspada duljim od 10^{10} godina nisu značajni sa stanovišta radioekologije, jer je njihova aktivnost[7] relativno mala i ne doprinose značajno ukupnoj PP radioaktivnosti. Tako su sa stanovišta radioekologije najznačajniji primordijalni radionuklidi ^{235}U, ^{40}K, ^{238}U i ^{232}Th. Njihova vremena poluraspada redom iznose $7{,}04 \cdot 10^{8}$, $1{,}25 \cdot 10^{9}$, $4{,}47 \cdot 10^{9}$ i $1{,}40 \cdot 10^{10}$ godina. Elementarni uranij gotovo se u potpunosti sastoji od ^{235}U i ^{238}U, sa zastupljenošću 0,72% ^{235}U i 99,275% ^{238}U. Elementarni torij gotovo se u potpunosti sastoji od ^{232}Th, tj. 99,98%. Zastupljenost ^{40}K u ukupnom elementarnom kaliju iznosi 0,012%. Prosječna zastupljenost

[4] Okolišem smatramo ono s čime čovjek dolazi u doticaj, a to su tlo, voda, zrak, hrana i biota koja ulazi u hranidbeni lanac čovjeka.
[5] Opisuje nastanak teških jezgara bogatih neutronima nizom brzih uhvata neutrona.
[6] Svi navedeni podaci u disertaciji o fizikalnim svojstvima radionuklida, kao npr. vrijeme poluraspada ili način raspada, preuzeti su s internet stranice http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/. U suprotnom je navedena referenca.
[7] Aktivnost radionuklida definirana je kao broj raspada u jedinici vremena. Izražava se jedinicom bekerel (Bq), što odgovara jednom raspadu u sekundi.

navedenih radionuklida u tlu iznosi 1,8 ppm (^{235}U i ^{238}U zajedno), 120 ppm (^{40}K) i 9 ppm (^{232}Th) [38]. Također, smatra se da doprinose grijanju zemljine jezgre i plašta [39]. ^{40}K se raspada β^- raspadom s vjerojatnošću od 89.28% u stabilni ^{40}Ca i uhvatom elektrona (EC od eng. *electron capture*) s vjerojatnošću od 10,72% u stabilni ^{40}Ar. Kod prijelaza u ^{40}Ar, emitira gama zraku od 1460,82 keV pomoću koje se detektira u gama spektrometriji. ^{238}U, ^{235}U i ^{232}Th α raspadom započinju nizove raspada od kojih svaki stvara desetak ili više novih radionuklida. Nizovi završavaju stabilnim jezgrama ^{206}Pb, ^{207}Pb i ^{208}Pb, a prikazani su na slikama 2.1, 2.2 i 2.3. Uz svaki radionuklid navedeni su način raspada (α ili β) i vrijeme poluraspada. Vrijeme poluraspada izraženo je u godinama (g), danima (d), satima (h), minutama (m), sekundama (s),



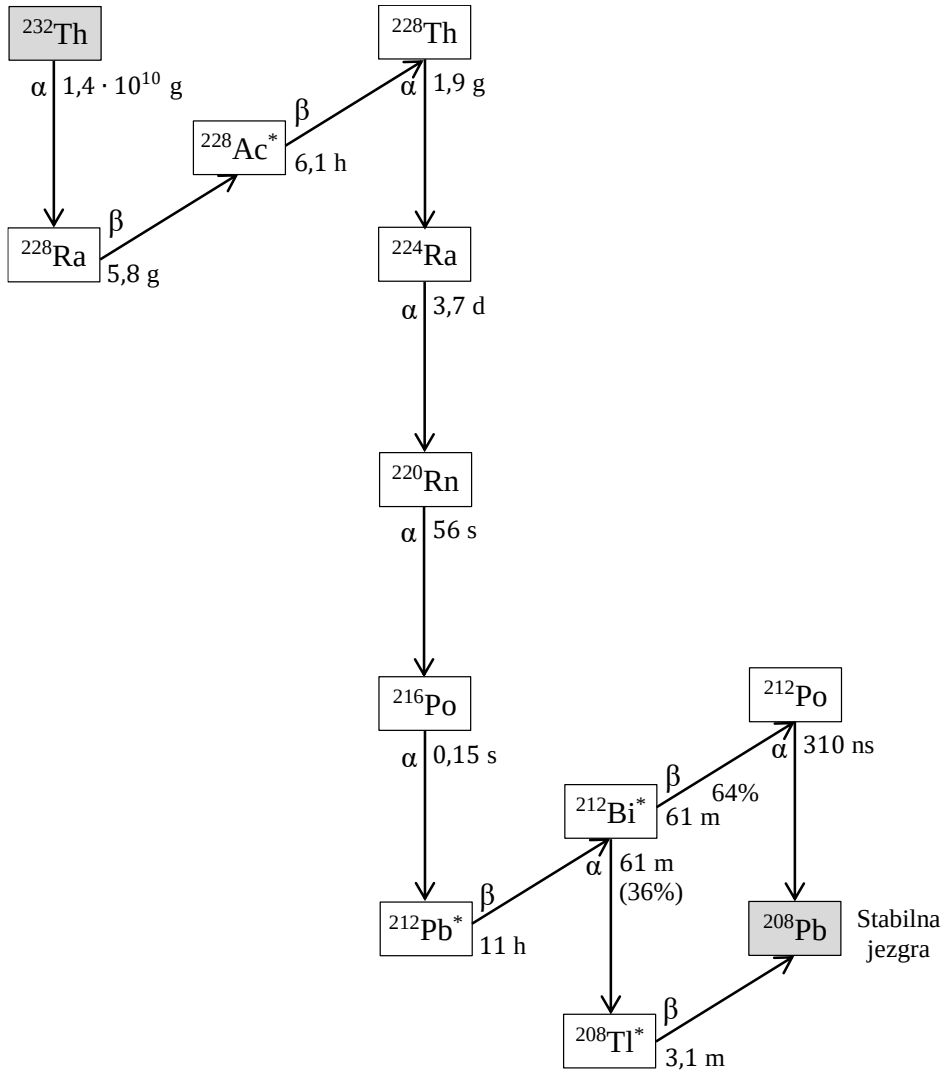
Slika 2.1 Niz raspada koji počinje ^{238}U.



Slika 2.2 Niz raspada koji počinje ^{235}U.

milisekundama (ms), mikrosekundama (μs) i nanosekundama (ns). Zvjezdicom su označeni radionuklidi koji prilikom raspada emitiraju i γ fotone u značajnoj količini[8]. Uz radionuklide s dva moda raspada stoji vjerojatnost izražena postocima za pojedini mod raspada. U kontekstu navedenih nizova raspada, ^{238}U, ^{235}U i ^{232}Th nazivamo primarnim, a novonastale radionuklide sekundarnim radionuklidima. Vrijeme poluraspada sekundarnih radionuklida daleko je kraće od vremena poluraspada početnih radionuklida, a ovisno o radionuklidu iznosi od 310 ns (^{212}Po)

[8] Značajnom količinom smatra se količina γ fotona koja se može opaziti visokorezolucijskom gama spektrometrijom.



Slika 2.3 Niz raspada koji počinje ^{232}Th.

do 240000 g (^{234}U). Radionuklidi s početka nizova raspada uglavnom imaju dulje, a oni s kraja kraće vrijeme poluraspada. U nizovima raspada od početne pa do stabilne jezgre emitiran je veći broj α i β čestica. Tako niz ^{238}U daje 8 α i 6 β čestica, niz ^{235}U daje 7 α i 4 β čestica, a niz ^{232}Th daje 6 α i 4 β čestice. Navedeni primordijalni radionuklidi i njihovi potomci u okolišu čovjeka najviše se zastupljeni u tlu, a zastupljenost ^{40}K povećana je i u živim organizmima zbog neophodne uloge kalija u raznim biološkim procesima. Aktivnost sekundarnih radionuklida u tlu do na red veličine jednaka je aktivnosti primarnih radionuklida iz lanaca [38]. Razlog tome je kraće vrijeme poluraspada sekundarnih od vremena poluraspada primarnih radionuklida, zbog čega približno postižu ravnotežu raspada.

Od sekundarnih radionuklida posebno treba istaknuti određene izotope. Izotop radija, ^{226}Ra kemijski je sličan kalciju, zbog čega ga biljke apsorbiraju iz tla i na taj način ulazi u hranidbene lance. Također, ponovno zbog sličnosti s kalcijem i relativno dugim vremenom

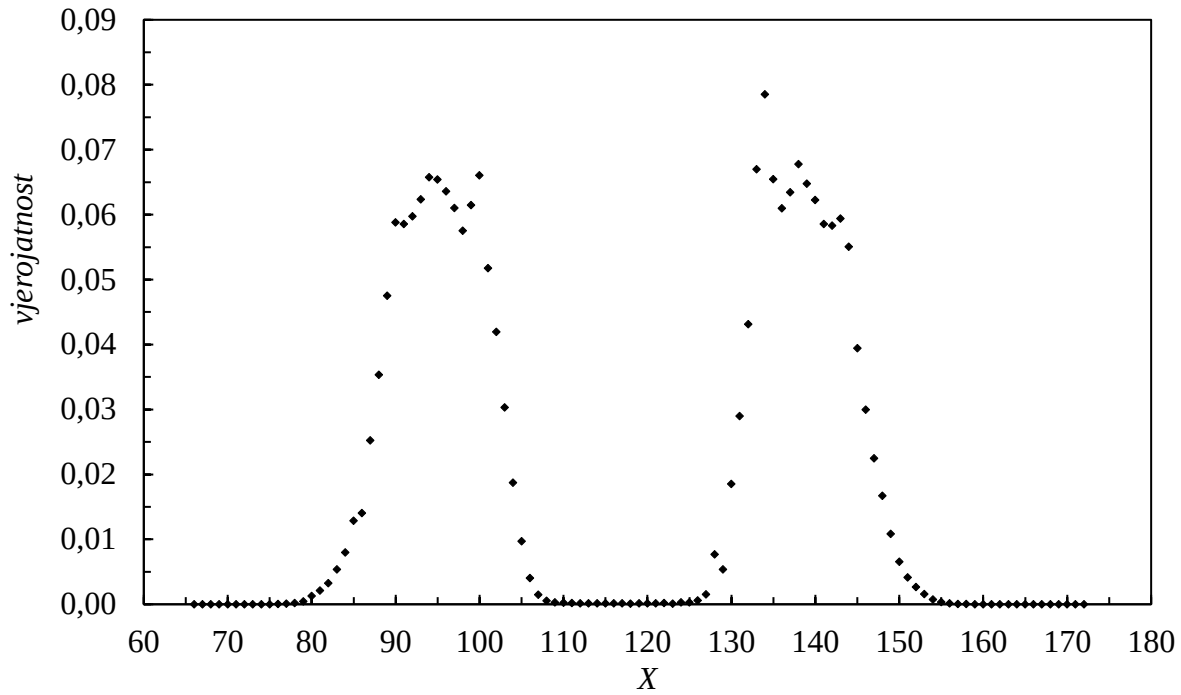
poluraspada, nakon unošenja u organizam hranom, ^{226}Ra se veže u kosti i na taj se način u organizmu zadržava godinama. Njegovi potomci promijene kemijska svojstva, ali zbog relativno kratkog vremena poluraspada ne stignu biološki izaći iz tijela, a zračenje koje emitiraju bude uglavnom emitirano unutar tijela. I drugi izotopi radija pojavljuju se u nizovima, ali zbog kraćeg vremena poluraspada imaju manju sposobnost ulaska u hranidbene lance. Također su važni i izotopi radona, koji se pojavljuju u sva tri niza i specifični su zbog činjenice da je radon plemeniti plin. Zbog svojstva da kao plemeniti plin vrlo slabo interagira s ostalim atomima i molekulama, radon vrlo lagano difuzijom prolazi kroz sitne pore mnogih materijala. Jednako tako vrlo lagano prolazi kroz tlo i izlazi iz tla u zrak koji čovjek udiše. Također, teži je od ostalih plinova u zraku, pa se zadržava uz tlo gdje čovjek obično boravi. Uglavnom se u zraku pojavljuje ^{222}Rn iz niza ^{238}U, jer ima dovoljno dugo vrijeme poluraspada (3,8 d) da stigne iz tla u zrak. Osim iz tla, ^{222}Rn dolazi u zrak i iz raznih stijena i građevnih materijala. Udisanje radona predstavlja povećanu opasnost, jer na taj način i radon i svi njegovi potomci emitiraju ili α ili β zračenje unutar tijela čovjeka. Kao što je navedeno u uvodnom poglavlju, radon se povezuje s povećanom pojavnošću raka pluća zbog čega se i provode brojna mjerenja i istraživanja vezana uz radon. Osim što je inertan, što njegovo uzorkovanje čini zahtjevnim, ^{222}Rn ne emitira značajne količine γ fotona i nije ga moguće mjeriti gama spektrometrijom direktno. ^{210}Pb kao potomak ^{222}Rn s relativno dugim vremenom poluraspada (22,2 g), mjeri se u zraku i povezuju s aktivnošću ^{222}Rn u zraku [40,41]. Čovjek ga unosi u tijelo disanjem. Također, zbog relativno dugog vremena poluraspada, ^{210}Pb se nakuplja na površini biljaka, na taj način ulazi u hranidbene lance i u konačnici može završiti u tijelu čovjeka [42,43]. Također, poznato je da se i pušenjem duhana u tijelo unosi ^{210}Pb koje se nakuplja na listovima duhana [44]. ^{210}Po koji nastaje nakon ^{210}Pb iznimno je štetan za tijelo jer emitira α zračenje unutar tijela. Istraživanja su pokazala povećane koncentracije ^{210}Pb i ^{210}Po u plućima i kostima pušača [45]. Ukupno, ^{210}Pb i ^{210}Po obično na tri načina mogu doći u tijelo čovjeka - udisanjem ^{222}Rn, udisanjem ^{210}Pb i nakupljanjem ^{210}Pb iz zraka na biljkama. Radionuklidi iz opisanih nizova raspada u velikoj mjeri doprinose ukupnoj količini radioaktivnosti kojoj je čovjek izložen.

Izloženost čovjeka ionizirajućem zračenju dolazi i od kozmičkog zračenja. Približno 89 % kozmičkog zračenja čine protoni, 9 % α čestice, 1 % elektroni, 1 % jezgre teže od α čestice i jako mali dio čine antičestice kao antiprotoni i antielektroni. Navedene čestice čine primarno kozmičko zračenje, a njihovim sudaranjem s atomima atmosfere (uglavnom kisikom i dušikom) nastaje sekundarno kozmičko zračenje koje čine X-zrake, mioni, neutroni, protoni, α čestice, elektroni, pioni itd. Veći dio primarnog zračenja dolazi iz izvora izvan Sunčeva sustava, a manji dio od Sunca. Povećani udio kozmičkog zračenja sa Sunca povezan je za s povećanom

aktivnošću Sunca i sunčevim bakljama. Najveći dio kozmičkog zračenja usmjerenog prema Zemlji zaustavljaju atmosfera i zemljino magnetsko polje. S povećanjem visine raste i količina kozmičkog zračenja, zbog čega putnici u avionu, a posebno piloti, budu izloženi većim količinama kozmičkog zračenja [46]. PP radionuklidima u čovjekovu okolišu pripadaju i kozmogeni radionuklidi. U većem dijelu nastaju interakcijom kozmičkih zraka s atomima atmosfere (stratosfera i gornji dio troposfere), a u manjem dijelu s atomima Zemljine površine. Najviše prisutni kozmogeni radionuklidi jesu: ^{7}Be, ^{3}H, ^{14}C, ^{22}Na, ^{10}Be, ^{26}Al, ^{32}Si, ^{32}P, ^{33}P, ^{35}S, ^{36}Cl, ^{37}Ar, ^{39}Ar, ^{81}Kr itd. Prva četiri najviše doprinose izloženosti čovjeka zračenju od kozmogenih radionuklida.

2.2. Antropogeni radionuklidi

Antropogene radionuklide stvara čovjek svojim djelovanjem. Nastaju u reaktorima nuklearnih elektrana, eksplozijama nuklearnog oružja i u akceleratorima čestica. Najveće količine nastaju u reaktorima nuklearnih elektrana procesom nuklearne fisije. Kao gorivo u nuklearnim elektranama koristi se uranij. Prirodni uranij sastoji se od 0,7% ^{235}U i 99,3% ^{238}U i kao takav nije pogodan kao gorivo. Za dobivanje energije i održavanje nuklearnih reakcija u reaktoru potreban je veći udio ^{235}U, koji ulazi u osnovnu reaktorsku reakciju. Proces povećanja udjela ^{235}U u prirodnom uraniju naziva se obogaćivanje uranija. Za potrebe nuklearnih elektrana uranij se obogaćuje do približnog udjela od 3% ^{235}U. Apsorpcijom neutrona u reaktoru, jezgra ^{235}U raspada se na fisijske fragmente uz emisiju neutrona i oslobađanje energije. U prosjeku iz reakcije izlazi 2,4 neutrona i 215 MeV energije. Nastali neutroni ulaze u daljnje reakcije s ^{235}U čime se održava tzv. lančana reakcija. Oko 75% oslobođene energije nalazi se u kinetičkoj energiji nastalih fragmenata. Preostalu energiju odnose γ fotoni, neutroni i produkti raspada fisijskih fragmenata. U raspada ^{235}U uglavnom nastaju dva fisijska fragmenata, u 99,7% slučajeva. Iz preostalih raspada nastaju tri fisijska fragmenta, gdje je uglavnom ^{4}He treći fragment. Na slici 2.4 prikazan je graf vjerojatnosti nastanka pojedinog fragmenta fisijom ^{235}U. Vjerojatnost je dana u ovisnosti o masenom broju X. Neutroni koji uzrokuju fisiju su termalni, energije 0,0253 eV. Na grafu se mogu vidjeti dva područja atomskih brojeva s povećanom vjerojatnošću nastanka jezgara (fragmenata). Kod fisije ^{235}U i nastanka dva fragmenta, jedan od fragmenata nalazi se u prvom, a drugi u drugom području. Izračunate srednje vrijednosti za dva područja iznose: $X_1 = 95$ i $X_2 = 139$. Jedan primjer od mnogo mogućih reakcija je



Slika 2.4 Vjerojatnost nastanka pojedinih fragmenata fisijom ^{235}U. Podaci za graf preuzeti s web stranice Japanske agencije za atomsku energiju (http://wwwndc.jaea.go.jp/cgi-bin/FPYfig?zlog=unset)

$$^{235}U + n \rightarrow {}^{236}U^{*} \rightarrow {}^{140}Xe + {}^{94}Sr + 2n\,.$$

Kako veći dio atomske mase ^{235}U pripada neutronima, fragmenti nastali fisijom sadrže više neutrona nego protona. Suvišak neutrona nad protonima uzrokuje β^- raspade nastalih fragmenata, što znači da fisijom ^{235}U uglavnom nastaju radioaktivne jezgre, tj. radionuklidi. Nastali radionuklidi nazivaju se fisijskim radionuklidima i svi su β emiteri[9]. Većina fisijskih radionuklida kratkog je vremena poluraspada, od nekoliko sekundi do nekoliko dana, a manji dio ima vrijeme poluraspada mjereno u godinama. U tablici 2.1 navedeni su tipični radionuklidi iz nuklearnog reaktora, njihovo vrijeme poluraspada i aktivnosti. Podaci se odnose na reaktor koji je radio kontinuirano dvije godine i isključen je na jedan dan. Aktivnost je izražena u terabekerelima (TBq) za dobiveni megavat (MW) snage iz tone (t) goriva. Radionuklidi kao što je ^{3}H mogu unaprijed biti ugrađeni u gorivo, zbog čega je ^{3}H naveden u tablici 2.1, a nema ga na slici 2.4. ^{3}H nastaje i u interakciji neutrona s vodom koja odvodi toplinu od reaktorskog goriva [47]. Pored fisijskih radionuklida, interakcija neutrona s materijalima od kojih je konstruiran reaktor stvara radionuklide kao što su ^{51}Cr, ^{54}Mn, ^{55}Fe, ^{59}Fe, ^{58}Co, ^{60}Co, ^{65}Zn itd. Njihovo vrijeme poluraspada uglavnom je manje od jedne godine, uz iznimku ^{55}Fe (2,7 g) i ^{60}Co (5,3 g). Također, ^{238}U iz goriva uhvatom neutrona stvara dugoživuće transuranijske

[9] Većina fisijskih radionuklida uz emisiju β zračenja emitira i γ zračenje.

Tablica 2.1 Nastali radionuklidi i njihove aktivnosti u reaktorskom gorivu. Podaci preuzeti iz [38]

Radionuklid	Vrijeme poluraspada	Aktivnost (TBq MWt^{-1})
^{3}H	12,3 g	0.1591
^{85}Kr	10,7 g	9.25
^{89}Sr	51 d	888
^{90}Sr	28,9 g	66.6
^{90}Y	64 h	66.6
^{91}Y	58,8 d	1184
^{99}Mo	66,6 h	1480
^{131}I	8,03 d	1036
^{133}Xe	5,3 d	1998
^{134}Cs	2,06 g	22.57
^{132}Te	78 h	1258
^{133}I	20,8 h	814
^{136}Cs	13 d	27.38
^{137}Cs	30,2 g	88.8
^{140}Ba	13 d	1702
^{140}La	40,2 h	1813
^{144}Ce	284,4 d	1295

nuklide kao što su ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu i ^{241}Am. Njihova su vremena poluraspada redom 24100 g, 6560 g, 14,3 g i 433 g. Svi su α emiteri. Slično kao i kod nuklearnih reaktora, eksplozija fisijske nuklearne bombe stvara radionuklide. Vjerojatnosti nastanka pojedinih nuklida malo se razlikuju od onih na slici 2.4. Srednje vrijednosti područja povećanih vjerojatnosti sa slike 2.4, pomaknute su prema većim masenim brojevima, jer se kao fisijski nuklid obično koristi ^{239}Pu. Fuzijske eksplozije ostavljaju u okolišu veće količine ^{3}H [48], a ostali radionuklidi nastaju interakcijom brzih neutrona s okolnim materijalima. Istrošeno nuklearno gorivo također sadrži velike količine navedenih dugoživućih radionuklida, zbog čega predstavlja opasnost za okoliš i zahtjeva opsežne sigurnosne mjere kod zbrinjavanja.

Od mnogo radionuklida nastalih fisijom ili fuzijom, nekoliko njih predstavlja znatno veću opasnost ukoliko budu ispušteni u okoliš. To su dugoživući radionuklidi ^{137}Cs, ^{134}Cs, ^{90}Sr i ^{3}H. Razlog za to su dugo vrijeme poluraspada i biokemijska svojstva zbog kojih se spomenuti radionuklidi duže vrijeme zadržavaju u organizmima. Duže zadržavanje u tijelu čini ih posebno opasnima zbog toga što više ionizirajućeg zračenja emitiraju unutar tijela. Cezij kao element pripada istoj skupini elemenata kao i kalij, zbog čega mu je kemijski sličan. Kalij ima važnu ulogu u biološkim procesima, a zamijeniti ga mogu elementi sa sličnim kemijskim svojstvima. Navedena sličnost pogoduje zadržavanju ^{137}Cs i ^{134}Cs u živim organizmima. Čovjek unosi ^{137}Cs i ^{134}Cs iz okoliša u tijelo uglavnom preko hrane, tj. preko hranidbenih lanaca. U hranidbene

lance ulaze iz tla na način da ih apsorbiraju biljke, gljive, alge i lišajevi, ili iz zraka taloženjem na listovima biljaka. ^{90}Sr je kemijski sličan kalciju, koji također ima važnu biokemijsku ulogu u živim organizmima. Kalcij je važan element u izgradnji kostiju, zbog čega se ^{90}Sr unesen u organizam veže u kosti umjesto kalcija i tamo zadržava godinama. Jednako kao i ^{137}Cs i ^{134}Cs , čovjek unosi ^{90}Sr u organizam uglavnom preko hrane, tj. preko hranidbenih lanaca. ^{3}H se vrlo dobro veže u kemijske spojeve, zbog čega vrlo jednostavno može doći u tijelo čovjeka [49]. Od kratkoživućih radionuklida potrebno je izdvojiti ^{131}I, zbog uloge joda u metaboličkim procesima štitne žlijezde. Unesen u organizam, ^{131}I se nakuplja u štitnoj žlijezdi zbog čega je sva njegova aktivnost lokalizirana na malom području tijela. Zbog kratkog vremena poluraspada visoka mu je aktivnost[10]. Ukupno, ^{131}I iznimno je opasan zbog velike količine emitiranog ionizirajućeg zračenja u kratkom vremenu i na malom području tijelu. S druge strane, kratko vrijeme poluraspada (8,03 d) znači da će se za relativno kratko vrijeme nakon ispuštanja u okoliša potpuno raspasti. Ostali kratkoživući radionuklidi u kratkom se vremenu potpuno raspadnu i ne predstavljaju dugoročnu opasnost.

Kao što je već navedeno u uvodu, najviše fisijskih radionuklida ispušteno je u okoliš pokusima nuklearnih eksplozija i nakon nuklearnih akcidenata u Černobilu i Fukushimi. U tablici 2.2 navedene su količine aktivnosti ^{3}H, ^{131}I, ^{137}Cs, ^{134}Cs, ^{90}Sr, ^{239}Pu, ^{240}Pu i ^{241}Pu ispuštene u zrak atmosferskim pokusima s nuklearnim oružjem i nakon akcidenata u Černobilu i Fukushimi[11]. Podaci se temelje na brojnim mjerenjima, modelima i izračunima. U svijetu je u razdoblju od 1945. do 1980. godine izvedeno 543 atmosferskih eksplozija [50], ostale su bile podzemne. Fisijski doprinos procijenjen je na 189 Mt, a fuzijski na 251 Mt [50]. Dio radionuklida izbačen je u gornje slojeve atmosfere, koji se tamo zadržavaju dugi niz godina i polagano spuštaju na površinu Zemlje. Zbog atmosferske dinamike radionuklidi su rasprostranjeni oko cijele Zemlje, a dominantno na sjevernoj hemisferi. Radionuklidi ispušteni iz nuklearnih elektrana nakon akcidenata većim dijelom završe u donjim slojevima atmosfere, zbog čega je njihov utjecaj više lokaliziran[12]. Ispuštane količine i rasprostiranje u okolišu ovise o kemijskim svojstvima radionuklida, vezanju u molekule i veće čestice, meteorološkom uvjetima i brojnim drugim parametrima okoliša i samog reaktora. U tablici 2.2, na primjeru ^{137}Cs i ^{90}Sr može se vidjeti velika razlika u ispuštenoj količini pojedinog radionuklida, iako se u približno jednakim količinama stvaraju u reaktoru i imaju približno jednako vrijeme

[10]Aktivnost je obrnuto proporcionalna vremenu poluraspada.
[11]Akcidentom u Fukushimi velike količine radionuklida ispuštene su i u Tihi ocean, što nije obuhvaćeno tablicom 2.2.
[12] Lokaliziranost ovdje znači rasprostranjenost do nekoliko tisuća kilometara od izvora, a ne oko cijele zemaljske kugle.

Tablica 2.2 Aktivnosti radionuklida ispuštenih u zrak pokusima nuklearnog oružja [50] i akcidentima u nuklearnim elektranama u Černobilu i Fukushimi [1].

Radionuklid	Vrijeme poluraspada	Aktivnost (10^{15} Bq)		
		Pokusi nuklearnog oružja 1945.-1980. god.	Černobil 1986. god.	Fukushima 2011. god.
^{3}H	12,3 g	186000	1,4	-
^{131}I	8,03 d	5300	1760	150
^{137}Cs	30,08 g	948	85	12
^{134}Cs	2,07 g	-	47	11,8
^{90}Sr	28,78 g	622	10	0,02
^{239}Pu	24100 g	6,52	0,013	-
^{240}Pu	6560 g	4,35	0,018	-
^{241}Pu	14,35 g	142	2,6	$1,8 \cdot 10^{-4}$

poluraspada. Veće količine aktivnosti ^{131}I rezultat su kratkog vremena poluraspada. Veća rasprostranjenost radionuklida iz atmosferskih eksplozija rezultira njihovom manjom koncentracijom lokalno i manjim utjecajem na pojedinu osobu. Kod ispuštanja iz nuklearnih elektrana učinak je suprotan, tj. lokalno su ljudi više izloženi negativnom utjecaju. Ukupno gledano, zagađenja okoliša radionuklidima vrlo su složena. Ovise o brojnim parametrima izvora zagađenja, atmosfere i meteorološkim uvjetima, te o fizikalnim i kemijskim svojstvima radionuklida ispuštenih u okoliš. Takva zagađenja vrlo su zahtjevna za sanaciju, iziskuju opsežne i pravodobne reakcije, visok stupanj organizacije, specijalno educirano osoblje i visoke financijske troškove. Posljedice za okoliš su dugotrajne.

2.3. Radionuklidi u medicini

Određeni radionuklidi mogu se zbog svojih fizikalnih i biokemijskih svojstava iskoristiti u medicinskoj terapiji i dijagnostici. Spadaju u antropogene radionuklide, ali zbog primjene najčešće se svrstavaju u posebnu grupu, tj. kao radionuklidi u medicini. Zračenja koja emitiraju koriste se na različite načine. Poznato je da je negativan utjecaj ionizirajućeg zračenja povećan za stanice koje se brže dijele. To svojstvo brzog dijeljenja posjeduju stanice karcinoma, tj. stanice karcinoma brže se dijele od normalnih zdravih stanica. Određena količina ionizirajućeg zračenja uništi stanice karcinoma, dok normalne stanice prežive. Ovo svojstvo koristi se kod liječenja karcinoma. Izvori ionizirajućeg zračenja za ovakve terapije često mogu biti i radionuklidi. α ili β zračenje emitirano iz radionuklida, unutar tijela ima vrlo kratak doseg, pa može djelovati samo u okolini mjesta nakupljanja radionuklida. Do ciljanog mjesta ili tkiva u

tijelu, radionuklidi se prenose vezani u molekuli koja se zove radiofarmaceutik, a koja do ciljanog mjesta dolazi zbog svojih biokemijskih svojstava. Također i određeni radionuklidi zbog svojih biokemijskih svojstava, nakon unošenja u tijelo, odlaze na točno određeno mjesto u tijelu. Npr. ^{131}I na taj se način koristi kod liječenja karcinoma ili drugih oboljenja štitne žlijezde. Također, zatvoreni radionuklidi mogu se umetnuti unutar ili pored karcinoma. Emitirano ionizirajuće zračenje uništava stanice karcinoma dok okolne stanice budu sačuvane. Izvor je zatvoren da se ne može metaboličkim procesima prenositi po tijelu. Postupak se zove brahiterapija, a njime se obično tretiraju karcinomi prostate, maternice, dojke i kože. Primjeri korištenih radionuklida u brahiterapiji jesu: ^{60}Co, ^{137}Cs, ^{198}Au, ^{192}Ir, ^{125}I, ^{103}Pd [51]. Pomoću radionuklida koji emitiraju γ zrake visokih energija, na određeno tkivo ili tumor može se djelovati i izvorom koji se nalazi izvan tijela. Obično se to radi u slučajevima kad nije moguć kirurški tretman, npr. za slučaj tumora u mozgu. Veći broj izvora bude postavljeno oko mjesta koje se tretira, a kolimatori su postavljeni na način da se γ zrake svih izvora sijeku na određenom području. Na taj način stanice na sjecištu γ zraka budu uništene, dok okolne stanice prežive. Metoda je tzv. gama nož, a obično se kao izvor γ zračenja koristi ^{60}Co.

Osim u terapijske svrhe, radionuklidi se u medicini koriste i za potrebe dijagnostike. Položaj određene molekule unesene u tijelo, kao i promjena položaja molekule u vremenu karakteriziraju određeno stanje ili oboljenje u tijelu. Ako je na takvu molekulu vezan radionuklid koji emitira određeno zračenje, tada se preko zračenja emitiranog iz tijela može pratiti položaj molekule. Emitirano zračenje mjeri se za veći broj kutova oko tijela, a trodimenzionalna raspodjela radionuklida odredi se matematičkim algoritmom koji se naziva tomografija. Dvije najvažnije dijagnostičke metode koje se temelje na principu emisijske tomografije jesu SPECT (eng. *Single Photon Emission Tomography*) i PET (eng. *Positron Emission Tomography*). Za metodu SPECT koriste se radionuklidi koji su γ emiteri, a za metodu PET β^+ emiteri. Detektori PET uređaja mjere fotone nastale anihilacijom emitiranog pozitrona (β^+) s obližnjim elektronom. U tablici 2.3 navedeni su najčešće korišteni radionuklidi za metode SPECT i PET, kao i njihovo vrijeme poluraspada. Svi navedeni radionuklidi u tablici, osim ^{99m}Tc, dobivaju se pomoću ciklotrona [52]. ^{99m}Tc dobiva se iz ^{99}Mo, koji se dobiva iz nuklearnih reaktora.

Tablica 2.3 Najčešće korišteni radionuklidi za metode SPECT i PET [53].

SPECT		PET	
Radionuklid	Vrijeme poluraspada	Radionuklid	Vrijeme poluraspada
^{99m}Tc	6,02 h	^{18}F	110 m
^{123}I	13,2 h	^{11}C	20,4 m
^{111}In	2,8 d	^{15}O	122 s
^{201}Tl	73 h	^{13}N	9,97 m
^{67}Ga	3,26 h	^{64}Cu	12,7 h

3. FIZIKA I RADIOAKTIVNOST U OKOLIŠU

3.1. Fizikalna svojstva radionuklida

Za potpuniji opis svojstava radionuklida i njihovo mjerenje potrebno je uvesti određene fizikalne veličine. Najvažnije svojstvo radionuklida je njihov raspad. Raspadi radionuklida odvijaju se prema principu koji kaže da je promjena broja neraspadnutih jezgara proporcionalna broju neraspadnutih jezgara. Iz navedenog principa slijedi jednadžba

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N\,, \tag{3.1}$$

gdje je N broj neraspadnutih jezgara, t vrijeme i λ kostanta radioaktivnog raspada. Predznak minus dolazi zbog smanjenja broja neraspadnutih jezgara kroz vrijeme. Rješenje jednadžbe (3.1) je

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t}\,, \tag{3.2}$$

gdje je $N_0 = N(t=0)$. Vrijeme poluraspada $T_{1/2}$ definira se kao vrijeme za koje broj neraspadnutih jezgara padne na pola od početnog broja neraspadnutih jezgara. Iz definicije vremena poluraspada i jednadžbe (3.2) slijedi

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda}\,. \tag{3.3}$$

Aktivnost radionuklida $\overline{A}$ definira se kao broj raspada u jedinici vremena. Mjerna jedinica za $\overline{A}$ je bekerel (Bq) i odgovara jednom raspadu u sekundi. $\overline{A}$ nam govori koliko je ionizirajućeg zračenja emitirano kroz neko vrijeme, zbog čega, za razliku od N, eksplicitnije prikazuje utjecaj na okoliš. Kombiniranjem definicije aktivnosti s jednadžbom (3.1) slijedi

$$\overline{A} = -\frac{dN}{dt} = \lambda N\,, \tag{3.4}$$

gdje negativan predznak ponovno dolazi zbog smanjenja broja neraspadnutih jezgara tijekom vremena. Uvrštavanjem jednadžbe (3.1) ili (3.2) u jednadžbu (3.4) dolazimo do izraza

$$\overline{A}(t) = \overline{A}_0 e^{-\lambda t}\,, \tag{3.5}$$

gdje je $\overline{A}(t=0) = \overline{A}_0 = \lambda N_0$. Kako za $\overline{A}(t)$ vrijedi (3.5), tada vrijedi i izraz

$$\frac{d\overline{A}}{dt} = -\lambda \overline{A}\,. \tag{3.6}$$

Za slučaj lanaca raspada od n radionuklida vrijede Bateman-ove jednadžbe

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1 \\ \frac{dN_i}{dt} &= \lambda_{i-1} N_{i-1} - \lambda_i N_i \qquad (\, i = 2, ..., n \,) \end{aligned} \tag{3.7}$$

gdje su N_1 i λ_1 broj neraspadnutih jezgara i konstanta raspada početnog radionuklida, te N_i i λ_i broj neraspadnutih jezgara i konstanta raspada *i*-tog radionuklida u lancu raspada. Broj neraspadnutih jezgara *n*-tog radionuklida, uz uvjete $N_1(0) \neq 0$ i $N_i(0) = 0$, dana je izrazom [54]

$$N_n(t) = \frac{N_1(0)}{\lambda_n} \sum_{i=1}^{n} \lambda_i \alpha_i e^{-\lambda_i t} \,, \tag{3.8}$$

gdje je

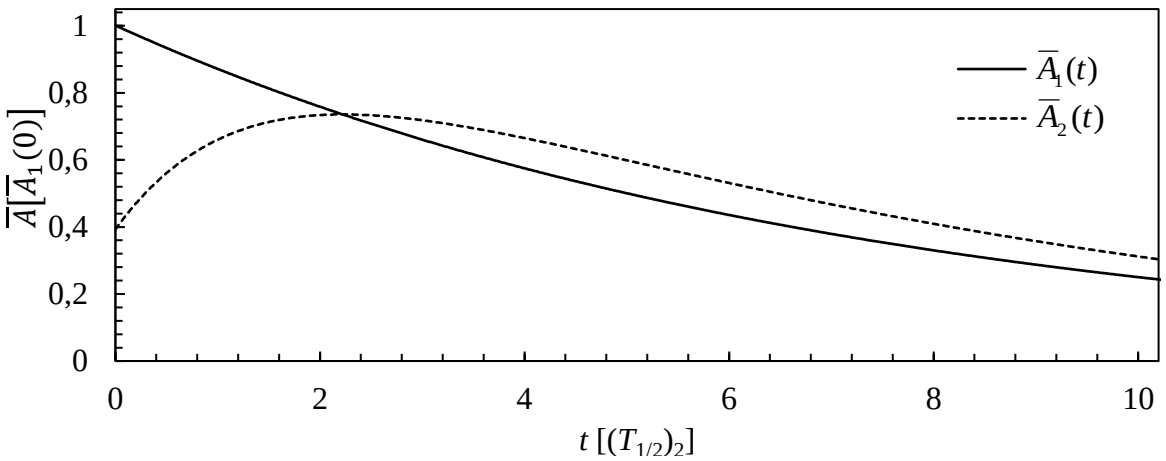
$$\alpha_i = \prod_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^{n} \frac{\lambda_j}{\lambda_j - \lambda_i} \,. \tag{3.9}$$

Za potrebe mjerenja i obrade rezultata u ovoj disertaciji najvažniji je slučaj $n = 2$. Iz jednadžbi (3.8), (3.9) i (3.4) slijedi

$$N_2(t) = N_1(0) \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \tag{3.10}$$

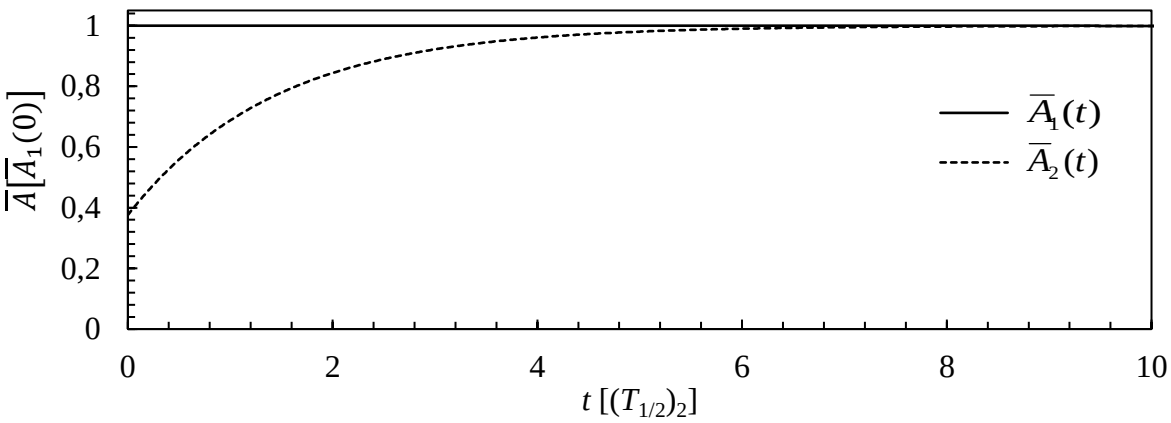
$$\overline{A}_2(t) = \overline{A}_1(0) \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \,. \tag{3.11}$$

Naime, ponekad radionuklidi ne emitiraju značajnu količinu γ zračenja, tj. nedovoljno za mjerenje gama spektrometrijom. Ako se takav radionuklid raspada u radionuklid potomak koji emitira značajnu količinu γ zračenja, na temelju mjerene aktivnosti potomka i relacije (3.11), u određenim slučajevima može se odrediti aktivnost početnog radionuklida. Na slikama 3.1 i 3.2 prikazane su aktivnosti takva dva radionuklida, koje su vezane relacijom (3.11). Početni radionuklid ima aktivnost $\overline{A}_1$ i vrijeme poluraspada $(T_{1/2})_1$, a radionuklid potomak ima aktivnost $\overline{A}_2$ i vrijeme poluraspada $(T_{1/2})_2$. Slika 3.1 prikazuje primjer u kojem je $(T_{1/2})_1 = 5(T_{1/2})_2$, a slika 3.2 primjer u kojem je $(T_{1/2})_1 = 10000(T_{1/2})_2$. Na obje slike puna linija prikazuje aktivnost $\overline{A}_1$, a isprekidana linija aktivnost $\overline{A}_2$. Za slučaj sa slike 3.1 nije moguće odrediti $\overline{A}_1(0)$, jer ne znamo početnu aktivnost $\overline{A}_2(0)$ u trenutku $t = 0$, tj. ne možemo primijeniti relaciju (3.11). Ako je $(T_{1/2})_1$ manje, jednako ili samo nekoliko puta veće od $(T_{1/2})_2$,



Slika 3.1 Prikaz promjene aktivnosti u vremenu radionuklida kojima je omjer vremena poluraspada $(T_{1/2})_1/(T_{1/2})_2 = 5$.

izračun aktivnosti $\overline{A}_1$ na temelju mjerene aktivnosti $\overline{A}_2$ nije moguć. U primjeru sa slike 3.2, $\overline{A}_1$ se gotovo ne mijenja tijekom vremena, dok se $\overline{A}_2$ izjednači s $\overline{A}_1$ kroz određeno vrijeme, bez obzira na početnu aktivnost $\overline{A}_2(0)$. Za taj prikazani slučaj kažemo da su radionuklidi nakon određenog vremena postigli ravnotežu aktivnosti, a $A_1(t)$ se može odrediti iz mjerenog $\overline{A}_2(t)$ ako s mjerenjem pričekamo dok ne prođe nekoliko $(T_{1/2})_2$. Bez obzira koliki je početni omjer aktivnosti, vrijedit će da je $\overline{A}_1(0) \approx \overline{A}_2(t)$. Jednakost se postiže samo uz uvjet da je $(T_{1/2})_1 >> (T_{1/2})_2$, a vrijeme koje treba proći prije mjerenja možemo odrediti iz $(T_{1/2})_1/(T_{1/2})_2$. Kasnije će biti navedeni primjeri određivanja aktivnosti radionuklida koji nisu gama emiteri, na temelju postignute ravnoteže s potomkom koji je gama emiter.



Slika 3.2 Prikaz promjene aktivnosti u vremenu radionuklida kojima je omjer vremena poluraspada $(T_{1/2})_1/(T_{1/2})_2 = 10000$.

Osim vremena poluraspada i aktivnosti, bitna karakteristika radionuklida je i način na koji se raspada ili relaksira, što određuje vrstu ionizirajućeg zračenja koju emitira. Glavni modovi raspada i relaksacije radionuklida, emitirane čestice (ionizirajuće zračenje) prilikom raspada i promjene u masenom broju X i atomskom broju Z prikazani su u tablici 3.1. Oznake p, n, e^-, e^+, ν_e i $\overline{\nu_e}$ redom označavaju proton, neutron, elektron, pozitron, elektronski neutrino i elektronski antineutrino. Tablica je podijeljena na tri dijela, u prvom dijelu navedeni su raspadi u kojima je iz jezgre izbačen jedan ili nekoliko nukleona, u drugom su navedeni β raspadi, a u trećem prijelazi između pobuđenih stanja u jezgri, odnosno vrste relaksacije. Od navedenih raspada u tablici 3.1, radionuklidi se najčešće raspadaju ili relaksiraju α raspadom, β^- raspadom, β^+ raspadom, uhvatom elektrona, γ prijelazom i izomernim prijelazom, zbog čega su α, β i γ ionizirajuća zračenja koja emitiraju radionuklidi. ν_e i $\overline{\nu_e}$ vrlo slabo interagiraju s materijom[13], zbog čega je njihov utjecaj zanemariv u svim aspektima ove disertacije. α raspad događa se uglavnom kod teških jezgara bogatih protonima[14] s $X > 150$ [55]. Kinetička energija emitiranih α čestica nalazi se u intervalu od 4 do 9 MeV, a vrijednosti su diskretne [55]. Kod β raspada neutroni prelaze u protone ili obrnuto, a raspadi se događaju na cijelom području A za odstupanje od stabilnog omjera n i p. β^- raspadi događaju se kod jezgara bogatih neutronima, a β^+ raspadi kod jezgara bogatih protonima. Emitirane β čestice, e^- i e^+ , poprimaju kontinuirane vrijednosti kinetičke energije između nulte i maksimalne kinetičke energije, a razlog tome je činjenica da dio energije odnosi emitirani ν_e ili $\overline{\nu_e}$. Očekivane vrijednosti energije β čestica odgovaraju približno $1/3$ maksimalne kinetičke energije [56], tj. od emitiranih čestica veći dio odnosi ν_e ili $\overline{\nu_e}$. Maksimalne vrijednosti kinetičke energije β čestica imaju vrijednosti od 10 keV do 4 MeV [56]. Određeni nuklidi mogu se raspadati kroz više modova raspada, obično to bude dijelom kroz α, a dijelom kroz β raspad. Također, α i β raspadima često nastaju jezgre koje se nalaze u pobuđenom stanju, a u osnovno ili niže energijsko stanje prelaze uz emisiju jednog ili više γ fotona, tj. γ prijelazom. Tipična vremena takvih prijelaza iznose približno 10^{-12} s. Ako se nastali radionuklid zadrži u pobuđenom stanju dulje od 10^{-9} s, kažemo da je u metastabilnom ili izomernom stanju. Prijelazi iz takvih u niža stanja nazivaju se izomernim prijelazima, a prijelazom je također emitiran γ foton. Vremena raspada metastabilnih stanja mogu imati vrijednosti i od nekoliko sati. Energije fotona nastalih γ raspadom ili izomernim

[13] S materijom stupaju u interakciju samo slabom nuklearnom silom.
[14] Postoji područje omjera broja protona i neutrona za koje su jezgre stabilne, tzv. dolina stabilnosti. Kažemo da je jezgra bogata protonima ako odstupa od stabilnih omjera u korist protona ili bogata neutronima ako odstupa od stabilnih omjera u korist neutrona.

Tablica 3.1 Glavni modovi raspada i relaksacije jezgara, pripadajuće emitirane čestice i maseni i atomski broj novonastale jezgre

Mod raspada	Emitirane čestice	Nastala jezgra
α raspad	α	$X-4,\ Z-2$
Emisija protona	p	$X-1,\ Z-1$
Emisija neutrona	n	$X-1,\ Z$
Dvostruka emisija protona	2p	$X-2,\ Z-2$
Spontana fisija	manje jezgre i nukleoni	
Inducirana fisija	manje jezgre i nukleoni	
β^- raspad	e^- i $\overline{\nu_e}$	$X,\ Z+1$
β^+ raspad	e^+ i ν_e	$X,\ Z-1$
Uhvat elektrona	ν_e	$X,\ Z-1$
Dvostruki β^- raspad	$2e^-$ i $2\overline{\nu_e}$	$X,\ Z+2$
Dvostruki β^+ raspad	$2e^+$ i $2\nu_e$	$X,\ Z-2$
Dvostruki uhvat elektrona	$2\nu_e$	$X,\ Z-2$
γ prijelaz	γ	$X,\ Z$
Izomerni prijelaz	γ	$X,\ Z$
Interna konverzija	e^- iz elektronskog omotača	$X,\ Z$

prijelazom imaju diskretne vrijednosti, a mogu iznositi do nekoliko MeV-a. Energiju pobuđenog stanja može direktno preuzeti i elektron iz elektronskog omotača (obično elektron iz najniže K ljuske), rezultat je izbacivanje elektrona iz atoma, a proces se naziva interna konverzija (IC od eng. *internal conversion*).

Način interakcije ionizirajućeg zračenja s materijom, tj. način na koji je energija zračenja predana određenom materijalu, bitna je odrednica ionizirajućeg zračenja. O načinu interakcije ovisi i utjecaj pojedinog zračenja, a time i pojedinog radionuklida, na čovjeka. Nabijene i neutralne čestice s materijom interagiraju na različit način. Nabijene čestice s materijom primarno interagiraju preko Coulombove sile, a masa čestice bitno utječe na putanju kojom se nabijena čestica giba kroz materijal. Zbog uloge mase i dvostruko većeg naboja, interakcija α čestice drugačija je od interakcije β čestice. Zbog velike mase, α čestica gubi vrlo mali dio svoje kinetičke energije u jednom sudaru s elektronskim omotačem atoma materijala, zbog čega ne mijenja smjer gibanja i kontinuirano usporava. Rezultat takve interakcije je pravocrtan, relativno kratak i približno jednak zaustavni put za sve α čestice jednake energije. Npr. vrijednosti zaustavnog puta u zraku za α čestice iz energijskog intervala 4 - 9 MeV-a iznose 2 - 9 cm [57]. Za isti energijski interval α čestica vodi, zaustavni put iznosi 30 - 150 μm [57]. β čestica je daleko brža, slabije ulazi u interakciju s elektronima materijala i kod pojedine

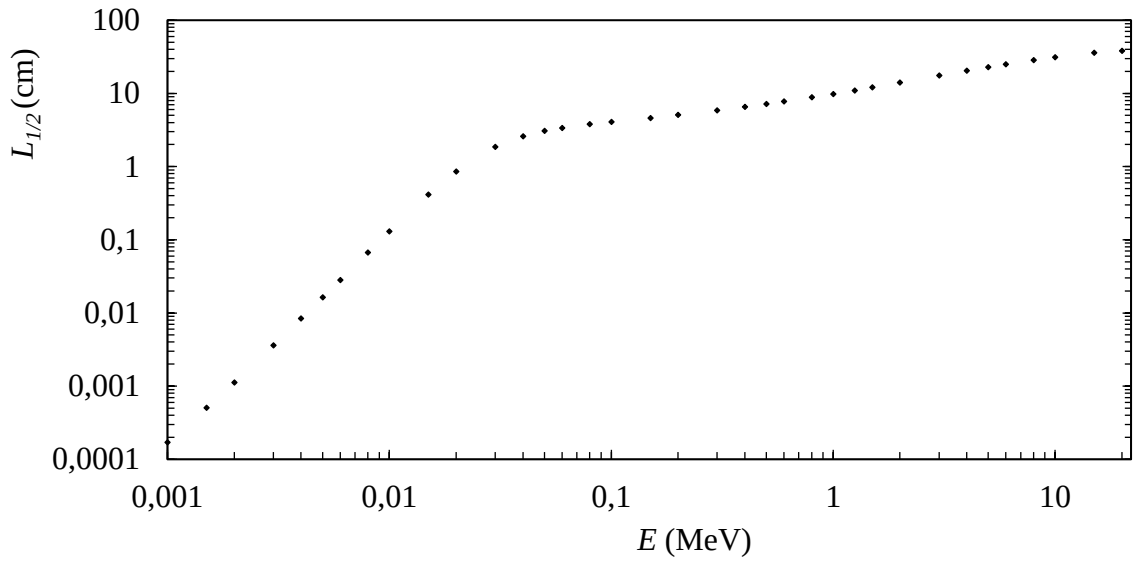
interakcije mijenja smjer zbog male mase. Rezultat takve interakcije je vijugava trajektorija, relativno dulji zaustavni put i različit zaustavni put između β čestica jednakih energija. Npr. vrijednosti zaustavnog puta u vodi, β čestica iz energijskog intervala 0,15 - 3,5 MeV-a, iznose 0,03 - 1,7 cm [57]. γ foton prije interakcije u materijalu prelazi relativno dug put, a u interakciji predaje ukupnu ili veći dio svoje energiju. Dominantne interakcije γ fotona s materijom jesu fotoelektrični efekt, Comptonovo raspršenje i tvorba para e^- - e^+. Transmisija γ fotona kroz materijal za određenu energiju stohastički se odvija prema relaciji [58]

$$I = I_0 e^{-\mu l}, \tag{3.12}$$

gdje je I_0 intenzitet prije ulaska u materijal, I intenzitet nakon izlaska iz materijala, l debljina materijala, a μ linearni atenuacijski koeficijent materijala. Transmisija raste s energijom γ fotona, a opada s atomskim brojem i gustoćom materijala. Kao mjera zaustavljanja γ fotona može se koristiti put $L_{1/2}$ koji je definiran kao put kroz materijal nakon kojeg intenzitet padne na $1/2$ početne vrijednosti. Iz definicije i relacije (3.12) slijedi

$$L_{1/2} = \frac{\ln 2}{\mu}. \tag{3.13}$$

Na slici 3.3 prikazana je ovisnost $L_{1/2}$ o energiji γ fotona za vodu kao materijal. Voda kao materijal je odabrana za prikaz zbog svoje zastupljenosti u tkivima ljudskog tijela, kao i u ostalim organizmima . Iz grafa sa slike 3.3 slijedi da se za tipično područje energija γ fotona od



Slika 3.3 $L_{1/2}$ u vodi u ovisnosti o energiji γ fotona. Podaci za graf preuzeti s web stranice http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/ComTab/water.html.

0,05 do 2 MeV-a vrijednosti $L_{1/2}$ nalaze u intervalu od 3 do 14 cm. Kako najveći dio radionuklida u okolišu emitira γ fotone u tom području energija, taj $L_{1/2}$ je prikladna ocjena za interakciju γ zračenja iz okoliša sa živim organizmima.

3.2. Koncentracija aktivnosti radionuklida u okolišu

Prisutnost radionuklida istražuje se za sve medije koji okružuju čovjeka. Obično se njihova prisutnost izražava kao koncentracije aktivnosti A, tj. kao aktivnost $\overline{A}$ podijeljena s masom, volumenom ili množinom. Na temelju mjerenih podataka procjenjuje se vanjska izloženost γ zračenju i unutrašnja izloženost od α, β i γ zračenja, tj. ukupni utjecaj na čovjeka. Aktivnosti radionuklida mjere se u zraku, oborini, tlu, hrani, biljkama i životinjama. Najviše informacija o koncentracijama pojedinih radionuklida u uzorcima iz okoliša dobiva se gama spektrometrijom. U tablici 3.2 navedene su tipične koncentracije aktivnosti određenih radionuklida, mjerene na području RH. Sve koncentracije aktivnosti navedenih radionuklida, osim ^{90}Sr, određene su gama spektrometrijom. Koncentracije aktivnosti u zraku dobivaju se mjerenjem aktivnosti filtera kroz koji su pumpa velika količina zraka (~500 000 m^3). Može se vidjeti da se najviše koncentracije radionuklida nalaze u tlu, što je i jedan od motiva za izradu ove disertacije. Podaci za hranu dobiveni su mjerenjem skupnog uzorka iz studentske menze.

Tablica 3.2 Tipične vrijednosti koncentracija određenih radionuklida na području RH u 2015. i 2016. god. Podaci preuzeti iz godišnjeg izvještaja koji je izradio IMI[15] po narudžbi DZRNS-a[16].

Radionuklid	Zrak A(Bq/m^3)	Oborina A(Bq/m^3)	Tlo A(Bq/kg)	Hrana A(Bq/kg)
^{40}K	10^{-5}	28	600	54
^{137}Cs	10^{-6}	0,6	15	0,04
^{7}Be	$3\cdot10^{-3}$	2330	-	0,2
^{238}U	-	-	55	-
^{232}Th	-	-	50	0,05
^{226}Ra	-	0,9	58	0,05
^{210}Pb	$8\cdot10^{-4}$	230	75	0,5
^{90}Sr	$2\cdot10^{-7}$	0,5	0,5	0,05

[15] Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada.
[16] Državni zavod za radiološku i nuklearnu sigurnost Republike Hrvatske.

Kontrole radioaktivnosti posebno su usmjerene na hranu i zrak, jer su to mediji putem kojih radionuklidi mogu doći u tijelo čovjeka. Također, u svim se uzorcima redovito kontrolira ^{131}I, a dodatno se mjeri i u posebnim filterima za jod kroz koje se također pumpa veća količina zraka. Zbog kratkog $T_{1/2}$, ^{131}I se ne bi trebao nalaziti u čovjekovu okolišu, zbog čega je pouzdan pokazatelj mogućih ispuštanja antropogenih radionuklida u okoliš, tj. potencijalnih nuklearnih akcidenata. Također, provode se i mjerenja posebnih filtera kojima se prikuplja ^{222}Rn iz zraka, jer zajedno sa svojim potomcima značajno doprinosi ukupnoj količini zračenja kojoj je čovjek izložen. Osim navedenih medija, koncentracije ^{40}K, ^{238}U, ^{235}U, ^{232}Th, ^{226}Ra, kao i ostalih PP radionuklida, kontroliraju se u ugljenima, građevinskim materijalima, mineralnim gnojivima i sličnim materijalima za koje postoji mogućnost sadržavanja značajnih koncentracija tih radionuklida.

3.3. Biološki utjecaj radionuklida

Kod proučavanja ionizirajućeg zračenja i radionuklida u okolišu, najvažnija informacija je ukupan utjecaj na čovjeka. Osim fizikalnih svojstava i količine (koncentracije), važna karakteristika radionuklida je i biološka interakcija s čovjekom i ukupan utjecaj na čovjekovo tijelo. Iz opisane interakcije ionizirajućeg zračenja s materijom, u prvom dijelu ovog poglavlja, može se vidjeti da α i β zračenje gotovo ne predstavljaju opasnost ako se nalaze izvan tijela čovjeka. Već nekoliko centimetara zraka zaustavi α zračenje, a β zračenje zaustavi koža na tijelu. γ zračenje, tj. radionuklidi koji ga zrače predstavljaju opasnost i izvan tijela čovjeka. Ukupan utjecaj svih vrsta zračenja proporcionalan je energiji koju predaju cijelom tijelu ili određenom dijelu tijela. Predana energija jednaka je umnošku ukupnog broja apsorbiranih čestica i energije koju predaje pojedina čestica zračenja. Također, određena količina energije apsorbirana na malom području tijela stvara veći utjecaj od iste količine energije raspršene na veći dio tijela. α zračenje je zbog tog razloga iznimno opasno jer svu svoju energiju deponira lokalno, dok energija β i γ zračenja bude raspršena na većem volumenu u tijelu. Kod vanjskog izlaganja γ zračenju, utjecaj opada s kvadratom udaljenosti od izvora zračenja. Bitan parametar je i vrijeme izlaganja zračenju; što je tijelo dulje izloženo, više će energije apsorbirati. S druge strane, jednaku količinu energije opasnije je apsorbirati u kraćem nego u duljem vremenu, jer se stanice tkiva kroz dulje vrijeme stignu više obnoviti. Također, kao što je već spomenuto u 2. poglavlju, ista količina zračenja više djeluje na stanice koje se brže dijele od onih koje se sporije dijele, zbog čega određeni organi budu više oštećeni ionizirajućim zračenjem od drugih.

Iznimno je važno i kemijsko, tj. metaboličko, ponašanje radionuklida u tijelu, jer je tim svojstvom određeno i vrijeme izbacivanja radionuklida iz tijela, a time i količina emitiranog ionizirajućeg zračenja u tijelu. U svrhu opisivanja utjecaja radionuklida na tijelo, uvedi se biološko vrijeme izbacivanja iz tijela T_{bio}, a odgovara vremenu za koje pola radionuklida[17] bude izbačeno iz tijela. Iako su T_{bio} i $T_{1/2}$ definirani na jednak način, izbacivanje radionuklida iz tijela složenije je od eksponencijalnog zakona svojstvenog radioaktivnom raspadu, ali eksponencijalni zakon često puta bude dobra aproksimacija. Kako količina emitiranog ionizirajućeg zračenja u tijelu ovisi i o $T_{1/2}$ i o T_{bio}, uvodi se efektivno vrijeme T_{ef} koje je definirano kao

$$\frac{1}{T_{\mathrm{ef}}} = \frac{1}{T_{\mathrm{bio}}} + \frac{1}{T_{1/2}} . \tag{3.14}$$

Efektivno vrijeme daje mjeru broja raspada, tj. mjeru emitiranog ionizirajućeg zračenja unutar tijela. U tablici 3.3 navedeno je fizikalno $T_{1/2}$, biološko T_{bio} i efektivno T_{ef} vrijeme za određene radionuklide. T_{bio} radionuklida ovisi uvelike o kemijskim i metaboličkim svojstvima radionuklida. Npr. ^{90}Sr, ^{226}Ra i ^{239}Pu imaju iznimno dugo vrijeme zadržavanja u tijelu zbog činjenice da se vežu u koštano tkivo. ^{131}I će se gotovo u potpunosti raspasti u tijelu, jer se zadržava u štitnoj žlijezdi i to s T_{bio} daleko većim od $T_{1/2}$.Iznimno su opasni radionuklidi koji se relativno dugo zadržavaju u tijelu, a pri tome još i emitiraju α zračenje, kao npr. ^{226}Ra i ^{239}Pu. Potrebno je napomenuti i da je izbacivanje radionuklida iz tijela vrlo složen proces i nije ga

Tablica 3.3 Fizikalno, biološko i efektivno vrijeme za određene radionuklide [59]

Radionuklid	$T_{1/2}$	T_{bio}	T_{ef}
^{3}H	12,3 g	12 d	12 d
^{131}I	8,03 d	138 d	7,6 d
^{90}Sr	28,9 g	50 g	18,3 g
^{137}Cs	30,08 g	70 d	70 d
^{238}U/^{235}U	$4{,}47\cdot10^{9}$ g	15 d	15 d
^{226}Ra	1600 g	44 g	42,8 g
^{210}Pb	22,2 g	10 g	6,9 g
^{210}Po	138,4 d	60 d	41,8 d
^{239}Pu	24110 g	200 g	198,4 g

[17] Osim kod radionuklida, pojam biološkog vremena koristi se i kod drugih tvari koje se mogu zadržavati u tijelu.

jednostavno modelirati. Proces izbacivanja varira od osobe do osobe. I samo mjerenje izbacivanja je vrlo složeno i podložno pogreškama. Zbog navedenih razloga, T_{bio} ima relativno veliko statističko rasipanje, a podaci se mogu značajno razlikovati u ovisnosti o odabranoj literaturi.

3.4. Kvantifikacija utjecaja ionizirajućeg zračenja

Da bi se utjecaj ionizirajućeg zračenja mogao kvantificirati, potrebno je uvesti s utjecajem vezane fizikalne veličine. Kako je opisano u prethodnom poglavlju, najvažnija veličina koja je povezana s utjecajem ionizirajućeg zračenja je apsorbirana energija. Važan je i podatak kolika je masa apsorbirala određenu količinu energije. Zbog dva navedena razloga definira se apsorbirana doza Δ kao apsorbirana energija E po jedinici mase m, a izražava se kao

$$\Delta = \frac{dE}{dm}. \tag{3.15}$$

Mjerna jedinica kojom se izražava Δ je grej (1 Gy = 1 J/kg). Također, definira se brzina apsorbirane doze $\dot{\Delta}$ kao

$$\dot{\Delta} = \frac{d\Delta}{dt}. \tag{3.16}$$

Kako je navedeno u prethodnom poglavlju, za istu apsorbiranu energiju utjecaj zračenja ovisi i o vrsti ionizirajućeg zračenja i o tkivu koje ga apsorbira. Za organ ili tkivo Ω, ozračeno vrstama ionizirajućeg zračenja Λ, uvodi se ekvivalentna doza H_Ω, definirana kao

$$H_\Omega = \sum_\Lambda w_\Lambda \Delta_{\Omega,\Lambda}, \tag{3.17}$$

gdje je $\Delta_{\Omega,\Lambda}$ apsorbirana doza zračenja Λ na tkivu Ω, a w_Λ radijacijski težinski faktor zračenja Λ. H_Ω je mjera utjecaja ionizirajućeg zračenja na tkivo Ω. Sumira se po svim vrstama zračenja Λ kojima je tkivo izloženo. Mjerna jedinica za H_Ω je sivert (1 Sv = 1 J/kg). Također, definira se i ukupni štetni utjecaj na tijelo veličinom koja se naziva efektivna doza H i računa kao

$$H = \sum_\Omega w_\Omega H_\Omega, \tag{3.18}$$

gdje je w_Ω težinski faktor za tkivo Ω. Sumira se po svim tkivima Ω u tijelu čovjeka. Definiraju se i brzina ekvivalentne doze, te brzina efektivne doze kao $\dot{H}_\Omega$ i $\dot{H}$. Faktori w_Λ i w_Ω povezuju apsorbiranu energiju i stvarni utjecaj određene količine zračenja na određeno tkivo ili cijelo čovjekovo tijelo. Faktori w_Λ navedeni su u tablici 3.4, a faktori w_Ω u tablici 3.5. Određivanje utjecaja ionizirajućeg zračenja na tkivo i cjelokupnog čovjeka prilično je komplicirano, jer je tijelo čovjeka vrlo složeno. Mjerenja nije jednostavno provoditi. Uređaji za mjerenje određuju elektromagnetsku interakciju ionizirajućeg zračenja s određenom vrstom detektora, tj. kvantificiraju električne signale, što se razlikuje od interakcija zračenja s tkivom čovjeka. Podaci iz tablica 3.4 i 3.5, a posebno iz tablice 3.5, podložni su izmjenama i neprestano se nadopunjuju. Također, u tablici 3.4 može se vidjeti da w_Λ za neutrone ovisi i o energiji, što znači da ovisnost H_Ω o energiji nije sadržana samo u $\Delta_{\Omega,\Lambda}$, nego i u w_Λ. U prethodnom poglavlju spomenuta ovisnost utjecaja ionizirajućeg zračenja o vremenu izlaganja, ali za fiksnu energiju, nije obuhvaćena definiranom H_Ω i H. Npr. efektivna doza od 1 Sv apsorbirana u jednom satu ima smrtonosne posljedica, dok jednaka efektivna doza apsorbirana kroz cijeli život gotovo i ne predstavlja opasnost za zdravlje. Utjecaj ionizirajućeg zračenja (α, β i γ) koje emitiraju radionuklidi dodatno je složen zbog biokemijskog ponašanja radionuklida u tijelu.

Tablica 3.4 Radijacijski težinski faktori w_Λ za vrste zračenja Λ i energije E [60].

Λ	E	w_Λ
γ	sve energije	1
β^-, β^+, mioni	sve energije	1
neutroni[18]	< 10 keV	5
	10 keV – 100 keV	10
	100 keV – 2 MeV	20
	2 MeV – 20 MeV	10
	> 20 MeV	5
protoni	> 2 MeV	5
α, fisijski fragmenti, teške jezgre	sve energije	20

[18] Za neutrone se ovisnost w_Λ o energiji može izraziti analitičkom funkcijom [60].

Tablica 3.5 Težinski faktori za tkivo Ω [60].

tkivo Ω	w_Ω	$\sum w_\Omega$
crvena koštana srž, debelo crijevo, pluća, želudac, dojke	0,12	0,6
gonade	0,08	0,08
mjehur, jednjak, jetra, štitnjača	0,04	0,16
površina kosti, mozak, žlijezde slinovnice,	0,01	0,04
Ostala tkiva zajedno: nadbubrežne žlijezde, torakalna regija, žučni mjehur, srce, bubrezi, limfni čvorovi, mišići, usna sluznica, gušterača, prostata, tanko crijevo, slezena, timus, maternica	0,12	0,12
ukupno		1

3.5. Radioekologija i interdisciplinarnost kod proučavanja okolišne radioaktivnosti

Radioekologija je grana znanosti koja: proučava kretanje radionuklida kroz prirodne i agrikulturne ekosisteme u kojima se nalaze biljke, životinje i ljudi; proučava utjecaj okolišne radioaktivnosti na biljke, životinje i ljude na razini populacija i zajednica; koristi radionuklide kao markere kod proučavanja raznih ekoloških procesa [61]. Radioekologija je multidisciplinarna grana znanosti koja uključuje fiziku, kemiju, geofiziku, geografiju, meteorologiju, geokemiju, hidrologiju, agronomiju, biokemiju, molekularnu i staničnu radiobiologiju, citologiju, genetiku. Fizika u radioekologiji zauzima bitnu ulogu zbog poznavanja prirode radionuklida i ionizirajućeg zračenja, korištenja preciznih mjernih tehnika, korištenja sofisticiranih detektorskih sustava, izrade raznih modela i simulacija, korištenja zahtjevnijih matematičkih alata i striktne interpretacije rezultata mjerenja. Vrlo bitnu odrednicu radionuklida čine dva neovisna fizikalna svojstva radionuklida; s jedne strane o jezgri ovisi raspad i emisija zračenja, a s druge strane elektronski omotač determinira ponašanje i kretanje radionuklida u okolišu. Sadržavanje ova dva neovisna svojstva u jednom sustavu čini radionuklide i njihov utjecaj na okoliš vrlo složenim za proučavanje i zahtijeva uključenost više znanstvenih disciplina.

Složenost i multidisciplinarnost radioekologije i utjecaj radionuklida na okoliš može se vidjeti na primjeru akcidenta u nuklearnoj elektrani u Černobilu i ispuštenih radionuklida u

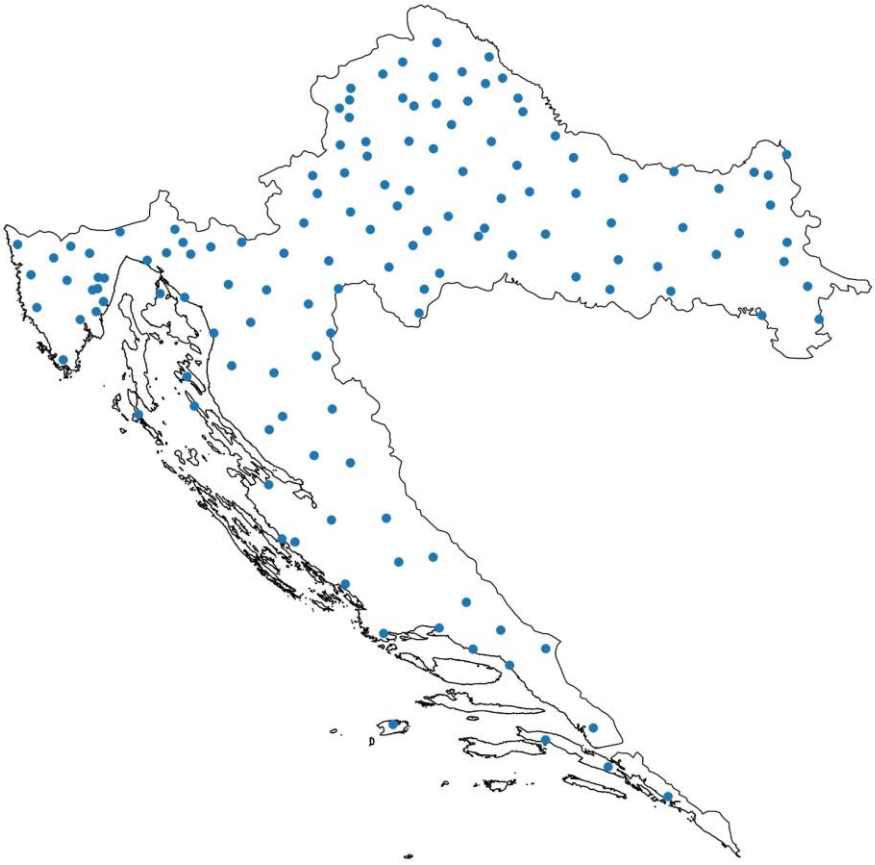
okoliš. Ispušteni radionuklidi vežu se na veće molekule i čestice koje se nalaze u zraku, a njihovo vezanje određeno je kemijskim svojstvima. Na njihovo rasprostiranje bitno utječu meteorološki parametri kao što su vjetar i oborine. Do čovjekova tijela dolaze putem zraka, vode i hrane. Radionuklidi kao što su ^{137}Cs i ^{90}Sr duže vrijeme se nalaze u okolišu zbog relativno dugog vremena poluraspada. Također, dugoživući se radionuklidi zadržavaju se u površinskim slojevima tla, a njihovo zadržavanje ovisi o brojnim parametrima tla. Prenošenje iz tla i okoliša do tijela čovjeka isprepleteno je brojnim kemijskim i biološkim parametrima. Osim zadržavanja u tlu, radionuklidi iz zraka i oborine nakupljaju se i na površini biljaka. Pored nakupljanja na njihovoj površini, biljke apsorbiraju radionuklide iz tla ili vode i time ih dovode u hranidbene lance i do čovjeka. Dodatno, nakon što radionuklidi dođu u tijelo čovjeka, njihovo ponašanje i utjecaja na pojedine organe i cijeli organizam je ponovno vrlo složen, a ovisi o brojnim biokemijskim parametrima organizma i kemijskim svojstvima samog radionuklida. Utjecaj radionuklida na žive organizme obično je stohastičke prirode, pa je potrebno promatrati veći broj jedinki određene vrste ili veću skupinu ljudi. Također, utjecaj bitno ovisi i o vremenu izlaganja, koje je relativno dugo, zbog čega je istraživanja potrebno provoditi tijekom više godina. Informacije o količinama radionuklida u okolišu najčešće se dobivaju preko odabranih uzoraka iz okoliša. Određivanje koncentracija aktivnosti radionuklida u okolišnim uzorcima često puta zahtijeva složene kemijske metode koje prethode samim mjerenjima pomoću detektora. Detektori mjere emitirano ionizirajuće zračenje iz uzorka, a na temelju mjerenja i raznih kalibracija odredi se koncentracija aktivnosti pojedinog radionuklida iz uzorka. Fizika kao disciplina najčešće pokriva razna mjerenja u području proučavanja okolišne radioaktivnosti.

U konačnici, primarna svrha proučavanja okolišne radioaktivnosti je zaštita okoliša i ljudi od ionizirajućeg zračenja. Pored navedenih znanstvenih disciplina koje su uključene u proučavanje okolišne radioaktivnosti, često puta je potrebno uključiti i druge djelatnosti ili provoditi druge aktivnosti. Tako je primarno potrebno provoditi sve mjere sigurnosti da ne dođe do ispuštanja radionuklida u okoliš. Potrebno je razviti i organizirati sustave za brzo djelovanje i minimiziranje posljedica ispuštanja radionuklida u okoliš, educirati veći broj ljudi koji mogu djelovati u takvim situacijama, educirati stanovništvo koje potencijalno može biti izloženo. Također, potrebno je i educirati stanovništvo da su vjerojatnosti za takva ispuštanja vrlo male i da je korištenje radionuklida u najvećem djelu korisno za stanovništvo.

4. EKSPERIMENTALNI PRISTUP ISTRAŽIVANJU RADIOAKTIVNOSTI TLA

4.1. Uzorkovanje i pripremanje uzoraka

Kako bi se provela radiološka karakterizacija tla određenog područja, potrebno je provesti uzorkovanje tla na što više lokacija i u uzorcima odrediti koncentracije aktivnosti PP i antropogenih radionuklida. U svrhu izrade ove disertacije, tj. radiološke karakterizacije tla na području RH, uzorkovano je 138 uzoraka tla tijekom 2015. i 2016. godine na lokacijama koje su prikazane na slici 4.1. Uzorci su uzeti na površinama na koje čovjek nije bitno utjecao, tj. koje nisu obrađivane. Nakon uzorkovanja uzorci su pripremljeni za mjerenje gama spektrometrijom. Lokacije uzorkovanja približno su jednoliko raspoređene na području RH.



Slika 4.1 Prikaz lokacija uzorkovanja tla. Na ovoj i svim ostalim slikama u ovoj disertaciji koje sadrže geografske mape, koordinate i rezultati mjerenja uneseni su u mapu pomoću softvera QGIS. Mapa RH („*geopackage file”*) preuzeta je s internet stranice www.gadm.org i predstavljena je u Mercatorovoj projekciji (EPSG: 3785).

Koordinate (geografska širina N i geografska dužina E) i nazivi lokacija navedeni su u tablici u prilogu A. Osim približno jednolike raspodjele, lokacije uzorkovanja odabrane su tako da predstavljaju naseljena mjesta i mjesta koja bi potencijalno, iz određenih razloga, mogla imati povišene koncentracije aktivnosti radionuklida. Također, nazivi lokacija u tablici u prilogu A određeni su prema najbližem naseljenom mjestu. Uzorkovan je površinski sloj tla, od 0 do 10 cm, na površinama koje nisu obrađivane[19], tj. kojima površinski sloj tla nije miješan s unutarnjim slojevima. Neposredno prije uzorkovanja, s površine tla uklonjena je vegetacija. Na površini od 1 m^2, s desetak uboda korerom (metalni cilindrični alat za uzorkovanje tla) u tlo do dubine od 10 cm, uzeto je desetak manjih volumena tla koji su miješanjem pretvoreni u jedan uzorak koji predstavlja uzorak s jedne lokacije. Tako dobiven uzorak tla, u laboratoriju je posušen na temperature od 105 ˚C i usitnjen u prah. Vlažnost tla promjenjiva je veličina o kojoj ovisi masa uzorka, što nije pogodno za iskazivanje koncentracije aktivnosti. Sušenjem na 105 ˚C uzorak izgubi svu vodu, a koncentracije aktivnosti iskazane su preko mase uzorka bez vode, tj. na jedinstven način za sve uzorke. Cilindrična plastična posuda volumena 100 mL napunjena je tako posušenim i usitnjenim tlom. Posuda je zatvorena poklopcem koji uglavnom ne dozvoljava prolazak plinova. Tako pripremljeno i zatvoreno tlo u posudi predstavlja konačni uzorak za mjerenje visokorezolucijskom gama spektrometrijom. Pored mjerenja aktivnosti uzoraka neobrađenog tla s cijelog području RH, mjereni su i uzorci tla sa 17 poljoprivrednih površina, kako bi se dobio uvid u utjecaj poljoprivrednih postupaka i tretiranja na radiološka svojstva tla. Uzorci poljoprivrednog tla pripremljeni su za mjerenja na jednak način kao i uzorci neobrađenog tla. Zbog postizanja ravnoteže aktivnosti radionuklida unutar nizova ^{238}U, ^{235}U i ^{232}Th, od zatvaranja uzoraka u kutije do mjerenja prošlo je barem 30 dana. Opisane procedure uzorkovanja, te pripreme uzoraka tla za mjerenje gama spektrometrijom, preuzete su iz [62]. Mjerenje svakog od uzorka trajalo je približno 24 sata. Ukupno je za izradu doktorskog rada uzorkovano, pripremljeno i mjereno 156 uzoraka; 138 uzoraka neobrađenog tla s cijelog područja RH, 17 uzoraka obrađenog poljoprivrednog tla, te jedan uzorak mineralnog gnojiva.

4.2. Visokorezolucijska gama spektrometrija

Visokorezolucijska gama spektrometrija je metoda kojom se može dobiti najviše informacija o koncentracijama aktivnosti radionuklida u pojedinom uzorku. Kao što naziv kaže,

[19] Osobnom procjenom i razmatranjem okoline utvrđeno je koje površine tla nisu obrađivane i na njima je uzet uzorak.

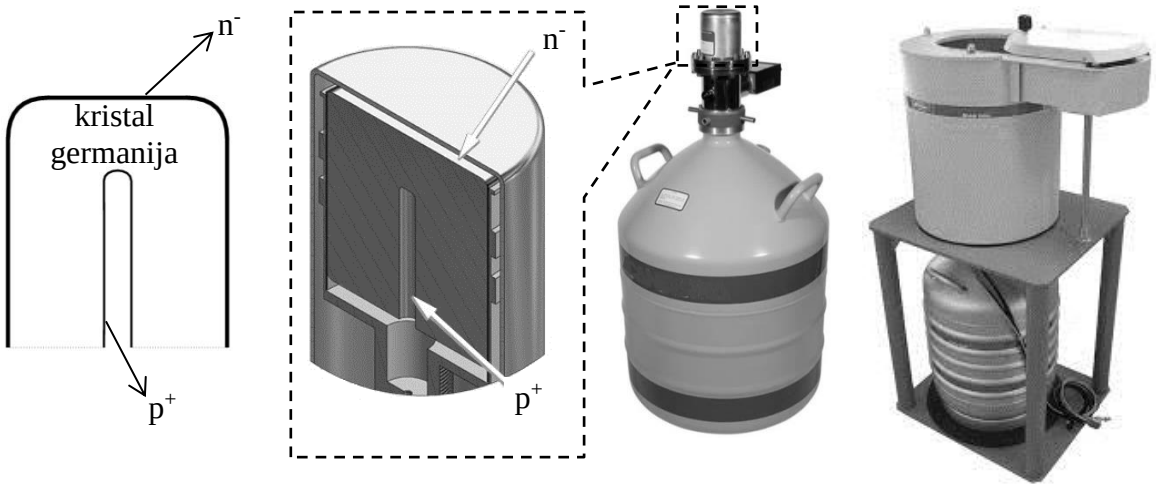
koncentracije aktivnosti određuju se pomoću γ fotona emitiranih iz uzorka, specifičnih za pojedini radionuklid u uzorku. Aktivnost radionuklida može se odrediti samo za radionuklide koji emitiraju γ fotone, uz iznimku određenih radionuklida iz lanaca raspada koji ne emitiraju γ fotone, a mogu se odrediti preko ravnoteže s radionuklidima koji emitiraju γ fotone. Veći dio radionuklida od interesa u radioekologiji može se mjeriti gama spektrometrijom. Potrebno je napomenuti da se mjeri foton nastao γ prijelazom pobuđenog radionuklida koji je potomak α ili β raspada. Npr. ^{137}Cs β raspadom prelazi u pobuđeno stanje ^{137}Ba koji u kratkom vremenu (~ 10^{-12} s) prelazi u osnovno stanje uz emisiju γ fotona, a taj foton se mjeri i predstavlja raspad ^{137}Cs. Općenito, gama spektrometrija povezuje mjerene fotone s aktivnošću radionuklida u mjerenom uzorku, a za to povezivanje služi detektorski sustav koji se sastoji od: detektora, predpojačala, pojačala, multikanalnog analizatora, računala i softvera za analizu dobivenog spektra.

4.2.1. Detektorski sustav

Najvažniji dio detektorskog sustava je detektor od kristala germanija visoke čistoće[20] (HPGe od eng. *high purity germanium*) koji γ foton pretvara u električni signal. Mjerenje se provodi na način da se uzorak stavi što bliže detektoru, obično na sam detektor. Detektor čini p-i-n spoj u zapornoj polarizaciji. P-sloj dobiva se ionskom implantacijom bora, a n-sloj difuzijom litija na površinu germanija. P-sloj ima debljinu do 1 μm, a n-sloj do 1000 μm. i-sloj čini sam kristal nedopiranog germanija, a njegova debljina iznosi do nekoliko centimetara, ovisno o namjeni detektora. Germanij čini aktivni dio detektora, u njemu se događa detekcija fotona, tj. apsorpcija fotona i stvaranje električnog signala. P-sloj i n-sloj su neaktivni dijelovi detektora, tj. u njima se ne događa detekcija. Foton u interakciji s valentnom vrpcom kristala germanija pobudi elektrone u vodljivu vrpcu, a u valentnoj vrpci ostaju šupljine. Električni signal čine tako nastali elektroni i šupljine, koji budu privučeni naponom postavljenim na krajevima p-i-n spoja. Za kristal intrinsičnog germanija svojstvena je umjerena energija ionizacije, tj. između valentne i vodljive vrpce je energijski procjep od 0,7 eV. Zbog osrednje velikog energijskog procjepa, pri apsorpciji jednog fotona stvara se znatan broj parova elektron-šupljina, što u konačnici rezultira visokom energijskom rezolucijom u spektru (broj stvorenih parova elektron-šupljina n proporcionalna je energiji γ fotona, a relativno rasipanje rezultata

[20] Koncentracije nečistoća iznose 10^{-10} atoma /m^3.

proporcionalno je s $\sqrt{n}/n = 1/\sqrt{n}$, tj. rezolucija je veća što je veći n). S druge strane, energijski procjep dovoljno je velik da hlađenje na temperaturu tekućeg dušika čini termalna pobuđenja elektrona iz valentne u vodljivu vrpcu zanemarivim. Na slici 4.2a prikazana je skica germanijeva kristala kojem je s vanjske strane n-sloj (negativna elektroda), a s unutarnje strane p-sloj (pozitivna elektroda). Za detektor kojem je p-sloj unutrašnji, kažemo da je p-tip detektora. Za suprotnu konfiguraciju, u kojoj je n-sloj unutrašnji, kažemo da je n-tip detektora. Detektori najčešće imaju cilindrični oblik, što je u presjeku prikazano na slici 4.2b. Oko detektora nalazi se vakuum, koji služi kao termička izolacija od okoline, ostvaren u konfiguraciji metalnog kriostata. U šupljini u sredini detektora, vidljivoj na slici 4.2a i 4.2b, ostvaren je termički spoj sa spremnikom tekućeg dušika, čime se detektor hladi. Na slici 4.2c može se vidjeti detektor u kriostatu spojenom s Dewarovom posudom napunjenom tekućim dušikom. Uzorak se obično mjeri u cilindričnoj posudi koja se stavi na detektor. Da bi se smanjio utjecaj okolnog zračenja na mjerenje, detektor se zajedno s uzorkom nalazi u olovnom oklopu debljine do 15 cm, što je prikazano na slici 4.2d. Također, da bismo iz detektora dobili spektar, na detektor se nadovezuje predpojačalo, elektronika za oblikovanje pulseva, pojačalo, multikanalni analizator i računalo. Za mjerenja uzoraka u svrhu izrade ove disertacije korištena su dva detektorska sustava, jedan s n-tipom, a drugi s p-tipom detektora, a proizvode ih Ortec[21] i Canberra[22].

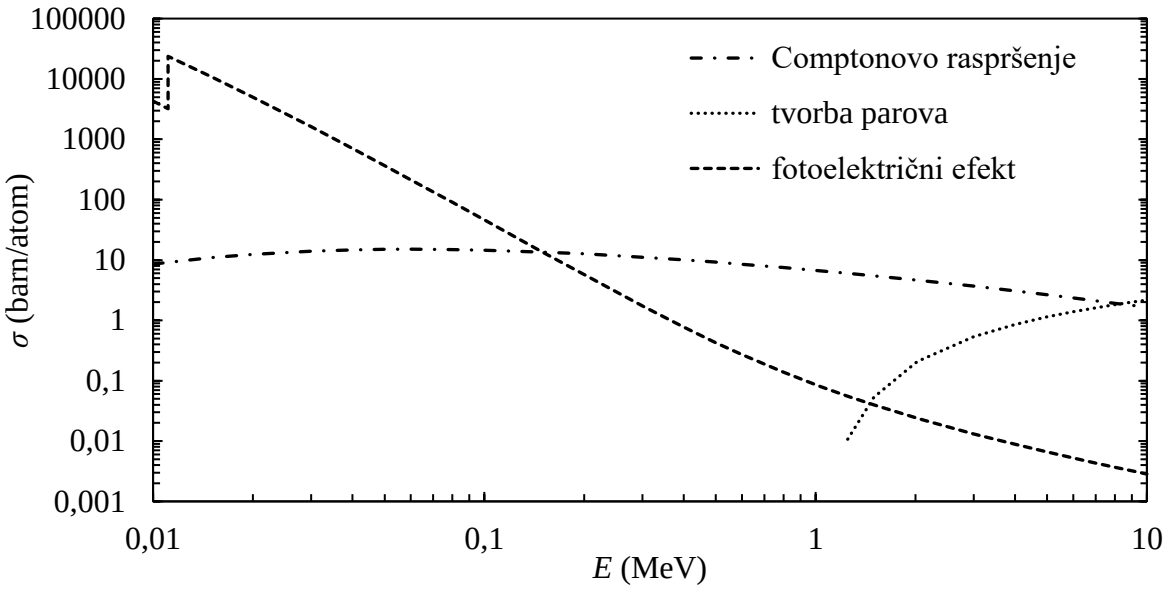


(a) (b) (c) (d)

Slika 4.2 (a) skica poluvodičkih elemenata detektora, (b) presjek kroz detektor cilindričnog oblika, (c) detektor u kriostatu spojen na Dewarovu bocu s tekućim dušikom, (d) olovni oklop oko detektora i Dewarova boca ispod. Slike preuzete s web stranica http://canberra.com i http://nats-usa.com i prilagođene.

[21] Ortec, Advanced Measurement Technology, 801 South Illinois Avenue, Oak Ridge, Tennessee 37830, United States.
[22] Canberra Industries, Inc., 800 Research Parkway, Meriden, Connecticut 06450, United States.

Svrha visokorezolucijske gama spektrometrije je određivanje aktivnosti radionuklida u uzorku na temelju interakcije fotona s detektorom, tj. na temelju signala koji nastaje iz te interakcije. U osnovi je potrebno svakom signalu pridružiti energiju, izbrojati signale na tako pridruženoj energiji i na temelju tih podataka odrediti aktivnosti radionuklida u uzorku. Da bi se mogla napraviti valjana poveznica između tako mjerenih podataka i aktivnosti radionuklida potrebno je detaljnije razmotriti moguće načine interakcije u detektoru i posljedično stvaranje signala. Kao što je već rečeno, γ foton s kristalom germanija interagira na tri načina: fotoelektričnim efektom, Comptonovim raspršenjem i tvorbom e^- - e^+ para. Na slici 4.3 prikazana je ovisnost udarnih presjeka[23] σ o energiji E za navedene tri vrste interakcija fotona s kristalom germanija. Udarni presjek proporcionalan je vjerojatnosti pojedine interakcije. Sa slike se može vidjeti da je na energijama nižim od 150 keV-a dominantna interakcija fotoelektrični efekt, dok je na višim energijama to Comptonov efekt, a tvorba para je dominantna tek na energijama iznad 10 MeV-a. O dimenzijama detektora i o vrijednostima udarnih presjeka sa slike 4.3 bitno ovisi mogućnost detektorskog sustava da signalu detektiranog fotona pridruži pravu vrijednost energije u spektru i da broj mjerenih signala pridruženih određenoj energiji bude valjano povezan s aktivnošću radionuklida. Također, detektor i elektronika imaju svoju vremensku rezoluciju, tj. sve interakcije koje se u detektoru dogode u određenom vremenskom intervalu detektorski sustav registrira kao jedan signal. Konkretnije, taj interval traje nekoliko μs.



Slika 4.3 Udarni presjek za dominantne interakcije γ fotona s kristalom germanija. Podaci za graf preuzeti su sa Internet stranice http://physics.nist.gov/cgi-bin/Xcom/xcom3_1.

[23] Jedinica udarnog presjeka barn odgovara površini 10^{-28} m^2.

U svrhu razumijevanja podataka u spektru, u daljnjem tekstu će kroz nekoliko crtica biti razloženi mogući načini interakcije i značenje tako dobivenih signala [63].

- Fotoelektrični efekt – tom je interakcijom u potpunosti energija fotona predana valentnoj vrpci, a posljedično je odgovarajući broj elektrona prebačen u vodljivu vrpcu i stvoren je vodljivi električni naboj, tj. signal. Signal će biti pridružen valjanoj energiji u spektru.
- Comptonovo raspršenje i transmisija raspršenog fotona van detektora – ovom interakcijom foton samo dio svoje energije predaje vrpci, a raspršeni foton se ne apsorbira u detektoru. Dobiveni signal ne odgovara energiji fotona, a od brojnih fotona koji tako interagiraju, u spektru se stvara kontinuirana Comptonova pozadina.
- Comptonovo raspršenje uz apsorpciju raspršenog fotona u detektoru – nakon prvog raspršenja foton ponovno interagira fotoelektričnim efektom u detektoru i ukupna energija početnog fotona predana je detektoru. Kako je vrijeme između dvije navedene interakcije daleko kraće od vremenske rezolucije detektora, signali obje interakcije zbrojeni su u jedan signal koji je smješten na valjanom energijskom mjestu u spektru.
- Višestruko Comptonovo raspršenje uz apsorpciju zadnjeg raspršenog fotona u detektoru – nakon jednog Comptonovog raspršenja u detektoru, može se dogoditi još jedno ili više raspršenja, a da zadnji raspršeni foton interagira fotoelektričnim efektom. Kao i u prethodnom primjeru, signali od svake pojedine interakcije biti će zbrojeni u jedan signal koji će biti smješten na valjanom energijskom mjestu u spektru.
- Tvorba parova – mogu interagirati samo fotoni čija je energija veća od 1,022 MeV. Nastali e^+ i e^- interagiraju istovremeno u detektoru, a dio kinetičke energije mogu predati vrpci i stvoriti signal. e^+ anihilira u detektoru i stvori dva fotona energije 0,511 MeV, od kojih oba mogu izaći iz detektora, jedan izaći i jedan intereagirati ili oba interagirati. Jednako kao i kod Comptonove interakcije, samo fotoni potpuno apsorbirani u detektoru daju odgovarajući signal i nalaze se na odgovarajućoj energiji u spektru, tj. to se dogodi samo u slučaju kad oba fotona nastala anihilacijom budu apsorbirana u detektoru. Potpuna apsorpcija oba fotona vrlo rijetko se dogodi, a apsorpcija jednog fotona nešto češće, zbog čega se u spektru uvijek vidi signal na 0,511 MeV.

Navedene crtice o interakcijama fotona u detektoru odnose se samo na događaje u kojima samo jedan foton iz uzorka dođe do detektora i stvara daljnje interakcije. Za događaje u kojima dva ili više fotona dolaze u detektor i stvaraju interakciju, potrebno je dodatno razmatranje. Da bi se izbjeglo prikazivanje u spektru dviju vremenski bliskih interakcija u detektoru, nakon što jedan signal prođe predpojačalo, elektronika ne propušta drugi signal kroz

kratko vrijeme koje je potrebno da se prvi signal procesira. Svaki signal nastao u vremenu kad se prvi signal procesira bude odbačen. U suprotnom bi dva ili više signala bili zbrojeni i u spektru pridruženi krivoj energiji. To vrijeme u kojem se jedan signal procesira, a ostali budu odbačeni, naziva se mrtvo vrijeme i određuje vremensku rezoluciju dva signala. Kod mjerenja uzoraka u svrhu disertacije, mrtvo vrijeme je bilo podešeno na 4,6 μs. Ukupno zbrojeno mrtvo vrijeme tijekom mjerenja iznosilo je od 0,2 do 0,3 % od ukupnog vremena mjerenja. Smanjenjem mrtvog vremena, tj. povećanjem vremenske rezolucije, veći broj događaja bude registriran, ali time se gubi na energetskoj rezoluciji u spektru. Mogućnost podešavanja mrtvog vremena ograničena je elektronikom. Također, ukupno mrtvo vrijeme raste s aktivnošću uzorka koji se mjeri. Neke jezgre iz pobuđenog stanja prelaze u osnovno stanje kroz dva ili više γ raspada koji se događaju s vremenskim razmacima od ~10^{-12} s. Takvi signali daleko nadmašuju brzinu detektora i elektronike, a detektorski sustav ih prepoznaje kao istovremene. Nazivamo ih koincidentnim događajima. Zbrojeni su u jedan signal i u spektru su smješteni na krivu energiju, tj. na energiju koja odgovara zbroju njihovih energija.

Iz opisa detektorskog sustava može se vidjeti da je potrebno provesti određene izračune i analize kako bi se od mjerenih fotona, tj. nastalih fotovrhova u spektru, odredila aktivnost radionuklida u uzorku. Veličini dobivenog električnog signala u detektoru treba se pridružiti energija u spektru, a to se radi kalibracijom energije. Efikasnost detekcije ovisi o obliku i veličini detektora, obliku i veličini uzorka, a na temelju slike 4.3 može se zaključiti da ovisi i o energiji. Povezivanje aktivnosti radionuklida u uzorku određenih dimenzija s brojem detektiranih fotona određene energije, na detektoru određenih dimenzija, provodi se pomoću energijski ovisne kalibracije efikasnosti koja se dobiva mjerenjem uzorka koji se naziva kalibracijski standard. Kalibracijski standard u pravilu se razlikuje gustoćom i kemijskim sastavom od uzoraka koji se mjere, pa je potrebno raditi i korekciju samoatenuacije fotona u uzorku. To se posebno odnosi na guste uzorke poput tla. Mnogo jezgra od interesa raspada se uzastopnim γ raspadima, a mjereni koincidentni događaji unose sistematsku pogrešku u mjerenje aktivnosti radionuklida u uzorku. Da bi se uklonila pogreška uvodi se korekcija koincidentnog sumiranja. Također, analiziranje spektra zahtijeva određena znanja i iskustva, kojima se doprinosi većoj pouzdanosti mjerenih aktivnosti radionuklida u uzorku. Za analizu spektara za potrebe ove disertacije korišteni su komercijalni softveri GammaVision i Genie, koje proizvode već spomenuti Ortec i Canberra.

Potrebno je i napomenuti da se HPGe detektori razlikuju u ovisnosti o namjeni, tj. o aktivnosti uzoraka koji se mjere. Veličina kristala i oblik bitno utječe na efikasnost mjerenja. Za niske aktivnosti potreban je što veći, a za visoke aktivnosti dovoljan je i manji detektor.

Visoke aktivnosti stvaraju veliko mrtvo vrijeme, što utječe na rezoluciju detektorskog sustava. Bitan parametar je i cijena detektorskog sustava, u kojoj sam detektor čini najveći dio. Trenutačno cijene detektorskih sustava za visokorezolucijsku gama spektrometriju okolišnih uzoraka iznose oko 150 000 €.

4.2.2. Kalibracija energije i efikasnosti

Kalibracije energije i efikasnosti služe za određivanje aktivnosti radionuklida u uzorku na temelju veličine induciranog električnog signala (energija) i broja detektiranih fotona (efikasnost). Kalibracija se provodi pomoću kalibracijskog standarda, a to je uzorak u kojem se nalazi poznata količina određenih radionuklida. Radionuklidi su odabrani tako da fotoni koje emitiraju pokrivaju jednoliko cijelo energijsko područje od interesa za mjerenje. Radionuklidi u kalibracijskom standardu obično su otopljeni u vodi. Posuda u kojoj se nalazi kalibracijski standard jednaka je oblikom i volumenom posudi u kojoj se mjeri uzorak nepoznatih aktivnosti. Kalibracijski standardi komercijalno se proizvode, a za potrebe ove disertacije korišten je certificirani kalibracijski standard nabavljen od Češkog metrološkog instituta[24]. U tablici 4.1 navedeni su radionuklidi s pripadajućim energijama i emisivnostima fotona emitiranih u značajnoj količini iz kalibracijskog standarda. Emisivnost fotona p_E jednaka je vjerojatnosti emisije fotona energije E nakon raspada radionuklida. Kalibracija energije provodi se na način da se visini napona mjerenog signala, tj. kanalu multikanalnog analizatora, pridruži poznata energija fotona iz kalibracijskog standarda. Ovisnost između napona, tj. broja kanala, i energije

Tablica 4.1 Radionuklidi kalibracijskog standarda s pripadnim energijama i emisivnostima emitiranih fotona.

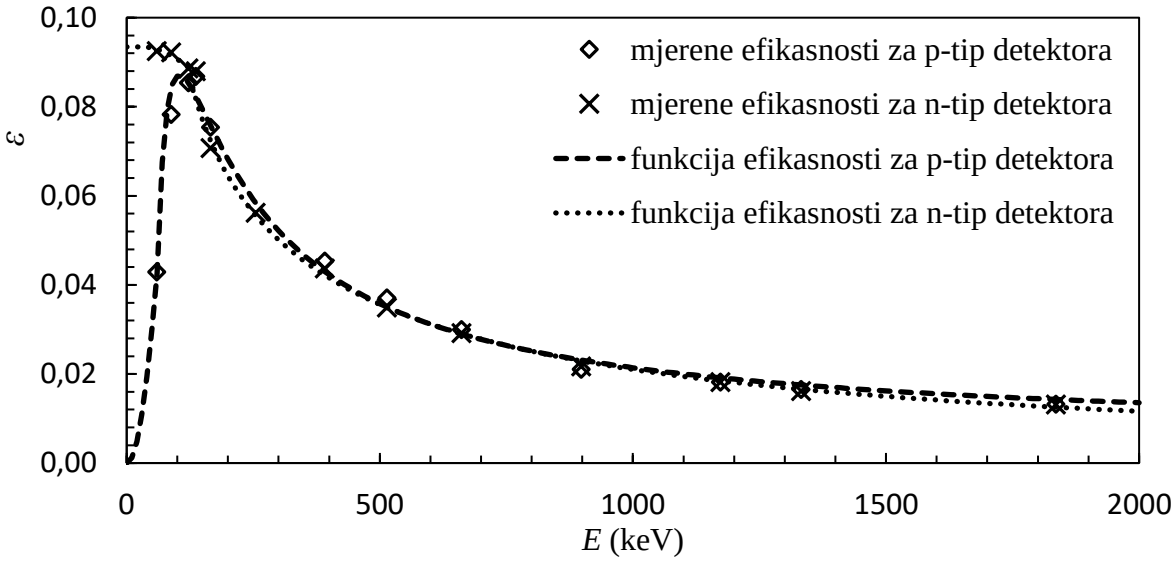
Radionuklid	Energija (keV)	Emisivnost
^{241}Am	59,54	0,363
^{109}Cd	88,04	0,038
^{139}Ce	165,85	0,8
^{57}Co	122,07 i 136,43	0,856 i 0,106
^{60}Co	1173,23 i 1332,51	0,998 i 0,999
^{137}Cs	661,62	0,846
^{113}Sn	255,04 i 391,71	0,642
^{85}Sr	513,99	0,993
^{88}Y	898,02 i 1836,01	0,94 i 0,994

[24] Český metrologický institut, Okružní 31, 63800 Brno, Česká republika.

je linearna, pa se linearnom regresijom dobije veza između broja kanala i energije za cijelo područje energija na kojem se provode mjerenja. Za provođenje kalibracije efikasnosti uspoređuju se poznate aktivnosti radionuklida u kalibracijskom standardu s detektiranim brojem impulsa kroz vrijeme mjerenja. Od fotona emitiranih iz kalibracijskog standarda, samo će dio biti emitiran u smjeru detektora, od kojeg će dio biti atenuiran u kalibracijskom standardu i na putu do aktivnog dijela detektora, a ostatak će završiti u aktivnom dijelu detektoru. Od fotona koji završe u aktivnom dijelu detektora, samo će dio interagirati i dati valjani signal. Broj detektiranih fotona energije E u jedinici vremena, $R_{\mathrm{C};E}$, s aktivnošću određenog radionuklida iz kalibracijskog standarda, A_{C}, vezan je relacijom

$$p_E \cdot A_{\mathrm{C}} = \frac{R_{\mathrm{C};E}}{\varepsilon_E}, \tag{4.1}$$

gdje je ε_E efikasnost detektora za detektiranje fotona energije E. Kako se prilikom kalibracije efikasnosti mjeri $R_{\mathrm{C};E}$, a vrijednosti p_E i A_{C}[25] su poznate, pomoću (4.1) odredi se ε_E za energije fotona emitiranih iz kalibracijskog standarda. Točkama ε_E prilagodi se funkcija $\varepsilon(E)$ koja predstavlja efikasnost mjerenja detektora u ovisnosti o energiji. Na slici 4.4 prikazane su mjerene efikasnosti i njima prilagođene funkcije efikasnosti za n-tip i p-tip detektora koji su korišteni kod mjerenja uzoraka potrebnih za izradu ove disertacije. Pomoću ovako određenih funkcija efikasnosti mjere se aktivnosti radionuklida koji emitiraju fotone u intervalu energija



Slika 4.4 Mjerene efikasnosti i pripadne prilagođene funkcije efikasnosti za dva tipa detektora.

[25] Kako se aktivnosti radionuklida u kalibracijskom standardu smanjuju u vremenu, potrebno je pomoću relacije (3.5) odrediti aktivnost za trenutak u kojem se počinje raditi kalibracija efikasnosti.

od 40 do 2000 keV-a. Promatranjem $\sigma(E)$ za fotoelektrični efekt na slici 4.2, može se zaključiti da efikasnost treba biti veća na niskim energijama, a niža na višim energijama. Sa slike 4.4 vidimo da je to ostvareno za n-tip detektora, ali nije potpuno za p-tip detektora, jer se efikasnost približava nuli na niskim energijama. Razlog tome je vanjski neaktivni sloj debljine do 1000 μm kojeg ima p-tip detektora i koji zaustavlja fotone niske energije. Vanjski neaktivni sloj kod n-tipa detektora ima debljinu do 1 μm i zanemarivo zaustavlja fotone na niskim energijama.

Kad se provodi mjerenje aktivnosti u određenom uzorku, volumen i oblik uzorka moraju biti jednaki volumenu i obliku kalibracijskog standarda. Također, i relativni položaj i orijentacija uzorka u odnosu na detektor moraju biti jednaki kao i kod mjerenja kalibracijskog standarda. Aktivnosti A_{M} određenog radionuklida iz uzorka M odredi se pomoću relacije

$$A_{\mathrm{M}} = \frac{R_{\mathrm{M};E}}{\varepsilon(E) \cdot p_E}, \tag{4.2}$$

gdje je $R_{\mathrm{M};E}$ broj detektiranih fotona energije E emitiranih iz uzorka M. Mjeri se $R_{\mathrm{M};E}$, a $\varepsilon(E)$ i p_E su poznate veličine koje se implementiraju u već spomenute softvere GammaVision i Genie, koji osim za analizu spektara služe i za provođenje mjerenja.

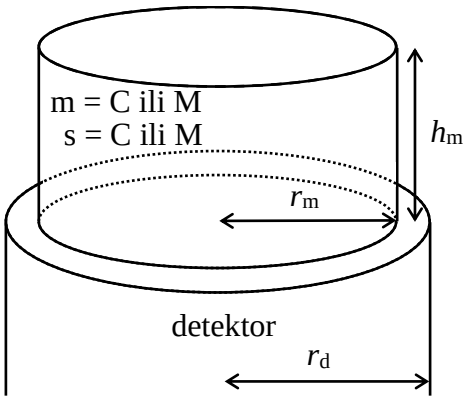
4.2.3. Korekcija samoatenuacije

Kod opisa kalibracije efikasnosti u prethodnom poglavlju, navedeno je da se radionuklidi u kalibracijskom standardu nalaze u vodi. Dio fotona emitiran u smjeru detektora atenuira pri prolasku kroz standard i taj dio fotona kompenziran je kalibracijom efikasnosti. S tako provedenom kalibracijom efikasnosti, mogu se mjeriti uzorci čiji su sastav i gustoća približno jednaki sastavu kalibracijskog standarda, tj. uzorci slični vodi po sastavu i gustoći. Za sve ostale uzorke koji se bitno razlikuju od vode, atenuacija je različita od one u kalibracijskom standardu, tj. radi se sistematska pogreška mjerenja koja je izraženija na nižim energijama. Često puta se ova pogreška zanemaruje, ponajviše pri mjerenju uzoraka u neznanstvene svrhe. U svrhu izrade ove disertacije, najviše su mjereni uzorci tla, koji se gustoćom i sastavom bitno razlikuju od vode, zbog čega je potrebno provesti korekciju samoatenuacije. Problem samoatenuacije može se riješiti određenim metodama. Prva metoda uključuje mjerenje transmisije γ fotona kroz uzorak, gdje je izvor γ zraka kolimiran, tj. kroz uzorak prolaze približno paralelne γ zrake [64,65]. Nedostatak ove metode je to što zahtijeva kolimirani izvor i određene preinake u mjernoj postavi. Druga metoda koristi Monte Carlo (MC) simulacije na

teorijskoj razini [66,67] i zahtijeva poznavanje sastava i gustoće pakiranja uzorka, tj. poznavanje linearnog atenuacijskog koeficijenta μ uzorka. Kod uzoraka tla, sastav i gustoća variraju od uzorka do uzorka, a određivanje sastava zahtijeva dodatne laboratorijske analize, što čini drugu metodu vrlo nepraktičnom. Ostale metode uključuju softvere za izračun samoatenuacije koji također zahtijevaju poznavanje μ [68,69], uključuju samo podatke mjerenih transmisija za različite gustoće uzoraka [70] ili koriste veći broj improviziranih kalibracijskih standarda različitog sastava [71]. Sve navedene metode imaju nedostatke, zbog čega je za potrebe ove disertacije razvijena vlastita metoda za korigiranje samoatenuacije, primjenjiva u većini standardnih laboratorijskih uvjeta. Metoda se temelji na kombinaciji jednostavnih transmisijskih mjerenja i MC simulacija [36]. U nastavku je metoda razložena kroz nekoliko cjelina.

MJERENJE UZORKA I KALIBRACIJSKOG STANDARDA

Najčešća konfiguracija mjerenja prikazana je na slici 4.5, kod koje je kalibracijski standard (uzorak C) ili uzorak kojem određujemo aktivnosti (uzorak M) postavljen na sredinu gornje baze detektora. Geometrijski odnosi između C i detektora, te između M i detektora, tj. visina h_b, radijus r_d, udaljenost od detektora i orijentacija u odnosu na detektor, jednaki su za oba uzorka. Općenito, materijal određenog sastava i gustoće pakiranja zovemo matrica i označavamo s m (npr. za uzorak kalibracijskog standarda m = C, a za uzorak kojem određujemo aktivnost m = M). Samo u slučaju kad su matrice C i M jednake po kemijskom sastavu i gustoći, samoatenuacija u C i M će biti jednaka, a kalibracija pomoću C će biti valjana. U slučaju kad



Slika 4.5 Uobičajeni mjerni postav za provedbu kalibracije efikasnosti i mjerenja u gama spektrometriji. Oznaka geometrije mjernog postava je $g = 1$, izvora gama zračenja je s (može biti C ili M) i matrice m (može biti C ili M).

su matrice C i M različite, potrebno je raditi korekciju samoatenuacije. U svrhu daljnjih razmatranja uvodi se oznaka s (s od eng. *source*) za uzorak koji je izvor γ zračenja (npr. s = C ili s = M). Za vezu između detektiranog broja fotona i aktivnosti koristi se jednadžba (4.1), tj. (4.2). Razmatra se mjerenje i emisija fotona na određenoj energiji (čiju oznaku nadalje, zbog jednostavnosti, ne navodimo u jednadžbama). Također, za emisivnost p_E, koja je unutrašnje svojstvo jezgre i nikako nema utjecaj na samoatenuaciju, pretpostavimo da je jednaka 1. Općenito, aktivnost uzorka $\overline{A}_s$ i broj detektiranih fotona $R_{\mathrm{m;g}}$ vezani su jednadžbom

$$\overline{A}_{\mathrm{s}} = \frac{R_{\mathrm{m;g}}}{\varepsilon_{\mathrm{m;g}}} = \frac{R_{\mathrm{m;g}}}{G_{\mathrm{g}} Y_{\mathrm{m;g}} D}, \tag{4.3}$$

gdje indeks s označava izvor fotona, indeks m označava matricu kroz koju fotoni prolaze, a indeks g geometriju, tj. položaj i orijentaciju uzorka s relativno u odnosu na detektor. Nadalje, efikasnost $\varepsilon_{\mathrm{m;g}}$ prikazana je kao umnožak faktora, od kojih je G_{g} geometrijski faktor mjerenja, $Y_{\mathrm{m;g}}$ transmisijski faktor, a D faktor detekcije fotona. Geometrijski faktor G_{g} je omjer broja fotona emitiranih prema detektoru (za geometriju g) i ukupnog broja izotropno emitiranih fotona. Transmisijski faktor $Y_{\mathrm{m;g}}$ je omjer broja fotona transmitiranih do detektora (transmitiranih kroz matricu m, za geometriju g) i broja fotona emitiranih u smjeru detektora. Faktor detekcije D je omjer broja fotona koji daju valjani signal i broja fotona pristiglih u detektor.

Vjerojatnost da foton prođe udaljenost x u materijalu linearnog atenuacijskog koeficijenta μ iznosi $e^{-\mu x}$ [jednadžba (3.12)], zbog čega se transmisijski faktor $Y_{\mathrm{m;g}}$ može zapisati u obliku

$$Y_{\mathrm{m;g}} = \frac{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{s}}} e^{-\mu_{\mathrm{m}} x_{i,\mathrm{g}}}}{N_{\mathrm{s}}}, \tag{4.4}$$

gdje je N_{s} broj fotona emitiranih iz izvora u smjeru detektora, μ_{m} je linearni atenuacijski koeficijent matrice m, $x_{i,\mathrm{g}}$ je duljina puta *i*-tog fotona kroz matricu u smjeru detektora za geometriju g. Za slučaj prikazan na slici 4.5, geometriju označimo s $\mathrm{g} = 1$. Kad mjerimo kalibracijski standard, tj. provodimo kalibraciju efikasnosti, vrijedi da je $\mathrm{s} = \mathrm{C}$ i $\mathrm{m} = \mathrm{C}$, uvrštavanjem u (4.3) i (4.4) slijedi

$$\overline{A}_{\mathrm{C}} = \frac{R_{\mathrm{C};1}}{G_1 Y_{\mathrm{C};1} D} \tag{4.5}$$

i

$$Y_{\mathrm{C};1} = \frac{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{C}}} e^{-\mu_{\mathrm{C}} x_{i,1}}}{N_{\mathrm{C}}} . \tag{4.6}$$

Kad mjerimo uzorak M, u geometriji $\mathrm{g} = 1$ kao na slici 4.5, vrijedi da je $\mathrm{s} = \mathrm{M}$ i $\mathrm{m} = \mathrm{M}$, te uvrštavanjem u (4.3) i (4.4) slijedi

$$\overline{A}_{\mathrm{M}} = \frac{R_{\mathrm{M};1}}{\mathrm{G}_1 Y_{\mathrm{M};1} D} , \tag{4.7}$$

i

$$Y_{\mathrm{M};1} = \frac{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{M}}} e^{-\mu_{\mathrm{M}} x_{i,1}}}{N_{\mathrm{M}}} . \tag{4.8}$$

Kako je kalibracija efikasnosti za mjerni postav sa slike 4.5 provedena s kalibracijskim standardom C, veza između aktivnosti i broja detektiranih fotona za $\mathrm{g} = 1$ je $\overline{A}_{\mathrm{C}} / R_{\mathrm{C};1} = (G_1 Y_{\mathrm{C};1} D)^{-1} = (\varepsilon_{\mathrm{C};1})^{-1}$. Aktivnost uzorka M određena pomoću efikasnosti $\varepsilon_{\mathrm{C};1}$ i mjerenog $R_{\mathrm{M};1}$ iznosi

$$\overline{A}_{\mathrm{M}}^{\mathrm{C}} = \frac{R_{\mathrm{M};1}}{\mathrm{G}_1 Y_{\mathrm{C};1} D} \neq \overline{A}_{\mathrm{M}} . \tag{4.9}$$

$\overline{A}_{\mathrm{M}}^{\mathrm{C}}$ se od stvarne aktivnosti $\overline{A}_{\mathrm{M}}$ iz jednadžbe (4.7) razlikuje zbog različitih atenuacijskih svojstava C i M, tj. zato što je $Y_{\mathrm{C};1} \neq Y_{\mathrm{M};1}$. Upotrebom izraza (4.7) i (4.9) slijedi

$$\overline{A}_{\mathrm{M}} = \frac{Y_{\mathrm{C};1}}{Y_{\mathrm{M};1}} \overline{A}_{\mathrm{M}}^{\mathrm{C}} = F \overline{A}_{\mathrm{M}}^{\mathrm{C}} , \tag{4.10}$$

koju je potrebno koristiti uvijek kad se $Y_{\mathrm{C};1}$ i $Y_{\mathrm{M};1}$ značajno razlikuju. Prethodno navedenim izrazima, dobivena je linearna relacija koja povezuje stvarnu aktivnost $\overline{A}_{\mathrm{M}}$ i mjerenu aktivnost $\overline{A}_{\mathrm{M}}^{\mathrm{C}}$, te sadrži faktor $F = Y_{\mathrm{C};1} / Y_{\mathrm{M};1}$ ovisan o μ_{M} i μ_{C} koji nisu uvijek poznati. Poznavanjem μ_{M} i μ_{C} i primjenom MC simulacija na jednadžbe (4.6) i (4.8) može se odrediti faktor F, što je i ideja ove metode. Nadalje će biti opisan eksperiment koji će dati ulazne parametre za MC simulacije kojima će se odrediti μ_{M} i μ_{C}, a s poznatim μ_{M} i μ_{C} odredi se F na gore opisani način.

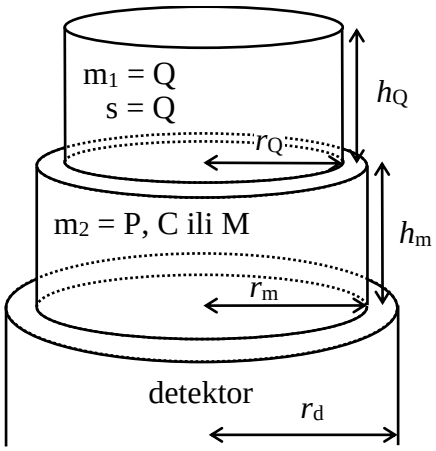
MJERENJE TRANSMISIJA

U svrhu dobivanja ulaznih parametra za MC simulacije kojima se odrede μ_{M} i μ_{C}, provode se tri mjerenja transmisije za istu geometriju. Mjerni postav, sastoji se od dvije cilindrične posude postavljene jedna preko druge na detektor, kako je prikazan na slici 4.6. Donja posuda ima radijus r_{m} i visinu h_{m}, a gornja ima radijus r_{Q} i visinu h_{Q}. U gornjoj posudi nalazi se uzorak Q koji je izvor gama zračenja, a u donjoj posudi će za svako od tri mjerenja biti drugačiji uzorak, tj. mjeriti će se transmisija fotona kroz tri različite matrice. Jednako kao i u prethodnom odlomku, uvedeni su indeksi matrica, izvora i geometrije. U gornjoj posudi nalazi se matrica m_1, a u donjoj m_2. Za sva tri mjerenja vrijedi $\mathrm{m}_1 = \mathrm{Q}$, dok se m_2 mijenja za svako mjerenje. Za sva tri mjerenja izvor je jednak, $\mathrm{s} = \mathrm{Q}$, i geometrija je jednaka, označena s $\mathrm{g} = 2$. U prvom mjerenju donja posuda je prazna, tj. u njoj je zrak, a oznaka matrice je $\mathrm{m}_2 = \mathrm{P}$. Kako kroz zrak fotoni prolaze gotovo u potpunosti, uz primjenu jednadžbe (4.3) za aktivnost izvora $\mathrm{s} = \mathrm{Q}$ dobiva se

$$\overline{A}_{\mathrm{Q}} = \frac{R_{\mathrm{Q,E;2}}}{G_2 Y_{\mathrm{Q,E;2}} D} \approx \frac{R_{\mathrm{Q;2}}}{G_2 Y_{\mathrm{Q;2}} D} . \tag{4.11}$$

Kako je donja posuda prazna, za $Y_{\mathrm{Q;2}}$ vrijedi

$$Y_{\mathrm{Q;2}} = \frac{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{Q}}} e^{-\mu_{\mathrm{Q}} x_{i,2}}}{N_{\mathrm{Q}}} , \tag{4.12}$$



Slika 4.6 Prikaz geometrije ($\mathrm{g} = 2$) za tri mjerenja koja daju ulazne parametre za određivanje μ_{M} i μ_{C} pomoću MC simulacija. Za sva tri mjerenja $\mathrm{s} = \mathrm{Q}$ i $\mathrm{m}_1 = \mathrm{Q}$, dok se m_2 mijenja, tj. kod prvog mjerenja $\mathrm{m}_2 = \mathrm{P}$ (prazna posuda, zrak), kod drugog $\mathrm{m}_2 = \mathrm{C}$ (matrica uzorka C) i kod trećeg $\mathrm{m}_2 = \mathrm{M}$ (matrica uzorka M).

gdje je N_{Q} broj fotona emitiranih iz uzorka Q u smjeru detektora, μ_{Q} linearni atenuacijski koeficijent matrice uzorka Q, a $x_{i,2}$ duljina puta kojeg *i*-ti foton (usmjeren prema detektoru) prolazi unutar matrice Q. U drugom mjerenju donja posuda je napunjena istom matricom kojom je napunjen kalibracijski standard ($\mathrm{m}_2 = \mathrm{C}$), ali bez izvora γ zračenja (npr. deionizirana voda). Jednako kao i kod prvog mjerenja,

$$\overline{A}_{\mathrm{Q}} = \frac{R_{\mathrm{Q,C;2}}}{G_2 Y_{\mathrm{Q,C;2}} D} \quad . \tag{4.13}$$

Atenuacija ne može biti zanemarena u matrici C, zbog čega je

$$Y_{\mathrm{Q,C;2}} = \frac{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{Q}}} e^{-\mu_{\mathrm{Q}} x_{i,2}} e^{-\mu_{\mathrm{C}} y_{i,2}}}{N_{\mathrm{Q}}} \quad , \tag{4.14}$$

gdje je $y_{i,2}$ duljina puta kojeg *i*-ti foton (usmjeren prema detektoru) prolazi unutar matrice C nakon što je prošao duljinu $x_{i,2}$ unutar matrice Q. Jednadžba (4.14) može biti zapisana u obliku

$$Y_{\mathrm{Q,C;2}} = \frac{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{Q}}} e^{-\mu_{\mathrm{Q}} x_{i,2}}}{N_{\mathrm{Q}}} \cdot \frac{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{Q}}} e^{-\mu_{\mathrm{Q}} x_{i,2}} e^{-\mu_{\mathrm{C}} y_{i,2}}}{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{Q}}} e^{-\mu_{\mathrm{Q}} x_{i,2}}} . \tag{4.15}$$

Prvi faktor jednadžbe (4.15) je $Y_{\mathrm{Q;2}}$. Drugi faktor je omjer broja fotona koji dođu do detektora i ukupnog broja fotona (usmjerenih prema detektoru) koji izađu iz uzorka Q, što je zapravo transmisijski faktor za $\mathrm{m} = \mathrm{C}$ i $\mathrm{g} = 2$, tj.

$$Y_{\mathrm{C;2}} = \frac{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{Q}}} e^{-\mu_{\mathrm{Q}} x_{i,2}} e^{-\mu_{\mathrm{C}} \cdot y_{i,2}}}{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{Q}}} e^{-\mu_{\mathrm{Q}} \cdot x_{i,2}}} \quad . \tag{4.16}$$

Iz navedenog slijedi da se jednadžba (4.13), tj. jednadžba (4.3), može zapisati u obliku

$$\overline{A}_{\mathrm{Q}} = \frac{R_{\mathrm{Q,C;2}}}{G_2 Y_{\mathrm{Q;2}} Y_{\mathrm{C;2}} D} \quad . \tag{4.17}$$

U trećem mjerenju donja posuda napunjena je sa istom matricom kao i uzorak kojem određujemo aktivnost ($\mathrm{m}_2 = \mathrm{M}$). Kako uzorak M sadrži radionuklide, za ovo mjerenje uzorci M i Q ne smiju emitirati fotone na istoj energiji, ili ako emitiraju na istoj energiji, uzorak Q mora imati daleko veću aktivnost. U oba slučaja se broj detektiranih fotona emitiranih iz M može zanemariti. Jednako kao i kod drugog mjerenja, jednadžba (4.3) ima oblik

$$\overline{A}_{\mathrm{Q}} = \frac{R_{\mathrm{Q,M;2}}}{G_2 Y_{\mathrm{Q;2}} Y_{\mathrm{M;2}} D} \quad , \tag{4.18}$$

gdje je

$$Y_{\mathrm{M;2}} = \frac{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{Q}}} e^{-\mu_{\mathrm{Q}} x_{i,2}} e^{-\mu_{\mathrm{M}} \cdot y_{i,2}}}{\sum_{i=1}^{N_{\mathrm{Q}}} e^{-\mu_{\mathrm{Q}} \cdot x_{i,2}}} , \tag{4.19}$$

a $y_{i,2}$ se odnosi na duljinu puta *i*-tog fotona (usmjerenog prema detektoru) koji prolazi unutar matrice M. Kombiniranjem jednadžbi (4.11) i (4.17) dobivamo

$$Y_{\mathrm{C;2}} = \frac{R_{\mathrm{Q,C;2}}}{R_{\mathrm{Q;2}}} \quad . \tag{4.20}$$

Također, kombiniranjem (4.11) i (4.18) dobivamo

$$Y_{\mathrm{M;2}} = \frac{R_{\mathrm{Q,M;2}}}{R_{\mathrm{Q;2}}} \quad . \tag{4.21}$$

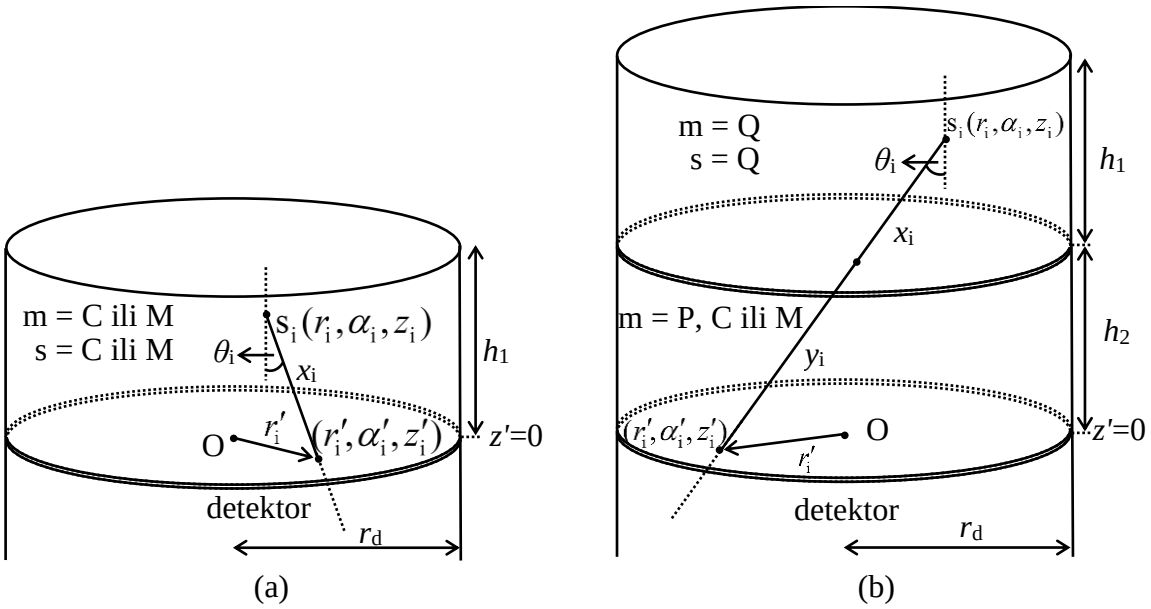
Na opisani način mogu se dobiti $Y_{\mathrm{C;2}}$ i $Y_{\mathrm{M;2}}$ iz mjerenih $R_{\mathrm{Q;2}}$, $R_{\mathrm{Q,C;2}}$ i $R_{\mathrm{Q,M;2}}$. Poznavanjem $Y_{\mathrm{C;2}}$ i primjenom MC simulacija na (4.16) odredi se μ_{C}, a jednako tako poznavanjem $Y_{\mathrm{M;2}}$ i primjenom MC simulacija na (4.19) odredi se μ_{M}. Nakon što se odrede μ_{C} i μ_{M}, primjenom MC simulacija na (4.6) i (4.8) odredi se faktor F iz jednadžbe (4.10), koji povezuje mjerenu aktivnost $\overline{A}_{\mathrm{M}}^{\mathrm{C}}$ i stvarnu aktivnost $\overline{A}_M$ uzorka M. Može se primijetiti da se u jednadžbama (4.16) i (4.19) pojavljuje μ_{Q} koji ima nepoznatu vrijednost. Kako su $Y_{\mathrm{C;2}}$ $(Y_{\mathrm{M;2}})$ omjeri broja fotona koji kroz uzorak C (M) prođu do detektora i broja fotona koji iz uzorka Q upadnu u uzorak C (M), $Y_{\mathrm{C;2}}$ $(Y_{\mathrm{M;2}})$ bi trebali biti neovisni o parametrima uzorka Q, tj. ovisiti samo o μ_{C} i μ_{M}. Numerički, tj. u MC simulacijama, to se je pokazalo kao ispravan zaključak. Za bilo koju vrijednosti μ_{Q} iz intervala $0 < \mu_{\mathrm{Q}} < 10$ cm^{-1}, fiksiranu u MC simulacijama, izračunate vrijednosti μ_{C} i μ_{M} maksimalno su se promijenile za 1 %. A i sama promjena od 1 % nije rezultat ovisnosti o μ_{Q}, već numeričke pogreške zbog pojavljivanja velikog broja eksponencijalnih funkcija u MC simulacijama. U praksi obično uzorak Q i uzorak C imaju jednaku matricu (najčešće vodu), tad je $\mu_{\mathrm{Q}} = \mu_{\mathrm{C}}$, a prethodna rasprava postaje irelevantna.

Korištenje MC simulacija za rješavanje jednadžbi (4.6), (4.8), (4.16) i (4.19) temelji se na generiranju slučajnih brojeva koji predstavljaju koordinate izvora fotona u uzorku i smjerove u koje izvori emitiraju fotone. Za koordinate pojedinog izvora s_i generirana su tri slučajna broja iz intervala $[0,1]$ i nakon toga transformirani u koordinate cilindričnog sustava, tj. r_i, α_i i z_i (što je prikladno zbog cilindričnog oblika uzoraka i detektora). Za smjer emitiranja fotona iz pojedinog izvora generirana su dva nova slučajna broja iz intervala $[0,1]$, nakon čega su transformirani u koordinate sfernog koordinatnog sustava, tj. θ_i i ϕ_i (zbog jednake vjerojatnosti za svaki smjer emitiranja fotona, tj. izotropne vjerojatnosti smjera). Transformacije u koordinatne sustave odabrane su tako da se dobije homogena raspodjela simuliranih izvora i izotropna raspodjela simuliranih emisija fotona. Transformacije imaju oblik

$$\begin{array}{lll} \alpha_i = 2\cdot\pi\cdot K_1 & K_1 \in [0,1] & \\ r_i = r_s\cdot\sqrt{K_2} & K_2 \in [0,1] & \\ z_i = h_s\cdot K_3 & K_3 \in [0,1] & i = 1,\ldots,N^*, \\ \theta_i = \arccos(1-K_4) & K_4 \in [0,1] & \\ \phi_i = 2\cdot\pi\cdot K_5 & K_5 \in [0,1] & \end{array} \qquad (4.22)$$

gdje je r_s unutarnji polumjer posude uzorka, h_s unutarnja visina posude uzorka, a K_1, K_2, K_3, K_4 i K_5 generirani slučajni brojevi iz intervala $[0,1]$. Potrebno je napomenuti da je za svaku koordinatu potrebno zasebno generirati slučajan broj, jer bi se uz generiranje samo jednog slučajnog broja za sve koordinate dobila veća pravilnost među dobivenim koordinatama i smjerovima, što nije poželjno svojstvo MC simulacije. Također, sferna koordinata θ_i, za navedenu transformaciju u (4.22), poprima vrijednosti iz intervala $[0,\pi/2]$, čime je mogućnost smjera emisije ograničena samo na donju polusferu okrenutu prema detektoru. Fotoni usmjereni u gornju polusferu nepotrebni su za simulaciju, a opterećuju izračun u simulaciji. Ukupno je za svaki izvor (simulirani radionuklid) i pripadni smjer (simulirani foton) generirano pet slučajnih brojeva, što znači da je za N^* emisija fotona generirano $5N^*$ slučajnih brojeva.

Slika 4.7 na drugi način predstavlja slike 4.5 i 4.6, tj. uz prilagodbu za objašnjenje MC simulacija. Zbog jednostavnosti slike, polumjeri uzoraka jednaki su polumjeru detektora. Gore navedeni način označavanja koordinata prikazan je na slici 4.6, gdje izvor s_i u točki (r_i, α_i, z_i) emitira foton u smjeru (θ_i, ϕ_i), a taj foton od izvora do detektora prolazi put x_i



Slika 4.7 Skica geometrijskih elemenata potrebnih za MC simulacije. (a) se odnosi na simulacije pomoću jednadžbi (4.6) i (4.8), a (b) na simulacije pomoću jednadžbi (4.16) i (4.19).

(slika 4.7a) ili $x_i + y_i$ (slika 4.7b). Ishodište cilindričnog sustava nalazi se na sredini gornje baze detektora (točka O). Svaki simulirani foton ima svoj sferni koordinatni sustav, a njegovo ishodište nalazi se u izvoru, tj. točki s_i. α_i je azimuntalni kut cilindričnog sustava centriranog u O, a ϕ_i azimuntalni kut sferičnog sustava centriranog u s_i, ali zbog preglednosti nisu prikazani na slici 4.7. Prvi korak MC simulacije je odabir samo onih fotona koji su emitirani u smjeru detektora, a ostale je potrebno izbaciti iz simulacije. Ako je foton emitiran iz pozicije (r_i, α_i, z_i) u smjeru (θ_i, ϕ_i), geometrijskim razmatranjem elemenata slike 4.7 može se zaključiti da će sjeći ravninu, definiranu sa $z = z'$, u točki (r_i', α_i', z_i') za koju vrijedi

$$r_i' = \sqrt{(z_i - z_i')^2 \tan^2\theta_i + r_i^2 + 2(z_i - z_i') r_i \tan\theta_i \cos(\alpha_i + \phi_i)} \tag{4.23}$$

i

$$\alpha_i' = \alpha_i - \arcsin\left[\frac{(z_i - z_i')\tan\theta_i}{r_i'} \sin(\alpha_i + \phi_i)\right]. \tag{4.24}$$

Gornja ravnina detektora nalazi se u ravnini $z' = 0$, što uvrštavanjem u (4.23) daje r_i' u kojem *i*-ti foton sječe ravninu $z' = 0$. Uvjetom u simulaciji da je $r_i' \le r_d$ bira se N fotona koji su emitirani u smjeru detektora. Samo fotoni koji zadovoljavaju navedeni uvjet ulaze u daljnju simulaciju, tj. daljnje izračune, a preostalih $N^* - N$ bude izbačeno. Ti fotoni koji ostaju u simulaciji predstavljaju N_C, N_M ili N_Q iz jednadžbi (4.6), (4.8), (4.16) i (4.19). Slika 4.7b

predstavlja mjerenja transmisije kroz uzorke C ili M, koji se nalaze između uzorka Q i detektora, a mjerenja su predstavljena jednadžbama (4.16) i (4.19). Visina posude u kojoj se nalazi uzorak Q iznosi h_1, a visina posude u kojoj se nalaze uzorci C ili M iznosi h_2. Geometrijskim razmatranjem slike 4.7 može se vidjeti da za duljinu puta x_i koji foton prolazi kroz uzorak Q i za duljinu puta y_i koji foton prolazi kroz uzorke C ili M vrijedi

$$x_i = \frac{z_i - h_2}{\cos\theta_i}, \qquad y_i = \frac{h_2}{\cos\theta_i}; \qquad i = 1,\ldots,N\,. \tag{4.25}$$

U slučaju prikazanom na slici 4.7a, za x_i također vrijede relacije iz (4.25), uz uvjet da je $h_2 = 0$. Ako polumjeri uzoraka i detektora nisu jednaki, x_i i y_i odrede se pomoću (4.23) i (4.24), uzimajući u obzir činjenicu da put fotona do detektora može djelomično ili potpuno biti izvan uzorka, ovisno o poziciji izvora i odnosa među radijusima uzoraka i detektora. To je samo tehnički detalj koji mijenja jednadžbu (4.25) i računalni program za MC, ali ne mijenja cjelokupnu proceduru.

Kako je već navedeno, prvo određujemo μ_C i μ_M pomoću jednadžbi (4.16) i (4.19), a nakon toga F pomoću (4.6) i (4.8). Svaki od parametara μ_C i μ_M računa se zasebno, a izračun će biti prikazan samo za parametar μ_C, dok se μ_M računa analogno. Nakon mjerenja $R_{\mathrm{Q};2}$ i $R_{\mathrm{Q,C};2}$ izračuna se $Y_{\mathrm{C};2}$ pomoću (4.20), te nakon toga uvrsti u (4.16). Kao što je veće navedeno, izračun ne ovisi o parametru μ_Q i njegova vrijednost je proizvoljna. Kako su u (4.16) sume eksponencijalnih funkcija od μ_C, nije moguće eksplicitno izraziti μ_C u ovisnosti o $Y_{\mathrm{C};2}$ (dobivenom iz mjerenja), te x_i i y_i (dobivenim generiranjem slučajnih koordinata i smjerova). Za rješavanje tog problema korištena je Newton-Raphsonova iterativna metoda za izračun nul-točaka funkcije [72], opisana u prilogu B. Relacija (4.16) prikaže se u obliku funkcije $f(\mu_C)$, tj.

$$f(\mu_C) = Y_{\mathrm{C};2} \cdot \sum_{i=1}^{N_\mathrm{Q}} e^{-\mu_\mathrm{Q} \cdot x_{i,2}} - \sum_{i=1}^{N_\mathrm{Q}} e^{-\mu_\mathrm{Q} x_{i,2}} e^{-\mu_\mathrm{C} \cdot y_{i,2}}\,. \tag{4.26}$$

Deriviranjem po μ_C dobije se

$$f'(\mu_C) = \sum_{i=1}^{N_\mathrm{Q}} y_{i,2} \cdot e^{-\mu_\mathrm{Q} x_{i,2}} e^{-\mu_\mathrm{C} \cdot y_{i,2}}\,. \tag{4.27}$$

Primjenom jednadžbe (B.3), iz priloga B, slijedi

$$(\mu_C)_n = (\mu_C)_{n-1} - \frac{Y_{\mathrm{C};2} \cdot \sum_{i=1}^{N_\mathrm{Q}} e^{-\mu_\mathrm{Q} \cdot x_{i,2}} - \sum_{i=1}^{N_\mathrm{Q}} e^{-\mu_\mathrm{Q} x_{i,2}} e^{-(\mu_\mathrm{C})_{n-1} \cdot y_{i,2}}}{\sum_{i=1}^{N_\mathrm{Q}} y_{i,2} \cdot e^{-\mu_\mathrm{Q} x_{i,2}} e^{-(\mu_\mathrm{C})_{n-1} \cdot y_{i,2}}}. \tag{4.28}$$

Za probni $(\mu_C)_0$ odabrana je vrijednost $(\mu_C)_0 = 0{,}5\,\mathrm{cm}^{-1}$. x_i i y_i dobiveni su generiranjem slučajnih koordinata i smjerova, a N_Q je dobiven iz odabranog N^*, nakon odbacivanja fotona koji nisu emitirani prema detektoru. Za parametar ρ, o kojem ovisi broj iterativnih koraka n i koji je opisan u prilogu B, odabrana je vrijednost $\rho = 0{,}0001\ \mathrm{cm}^{-1}$. Za tako odabrani ρ, μ_C je bio izračunat u desetak iteracija. Na jednak način izračunat je i μ_M pomoću

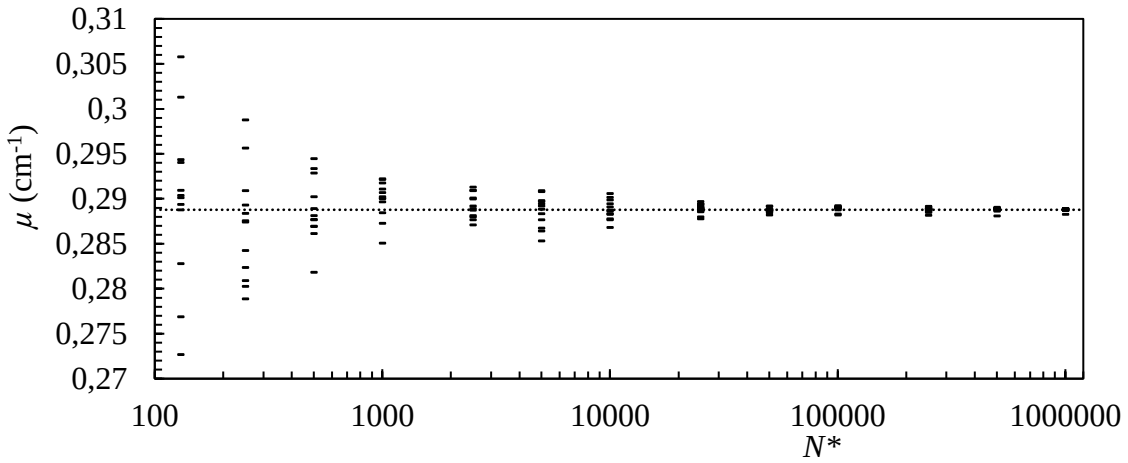
$$(\mu_M)_n = (\mu_M)_{n-1} - \frac{Y_{\mathrm{M};2} \cdot \sum_{i=1}^{N_\mathrm{Q}} e^{-\mu_\mathrm{Q} \cdot x_{i,2}} - \sum_{i=1}^{N_\mathrm{Q}} e^{-\mu_\mathrm{Q} x_{i,2}} e^{-(\mu_\mathrm{M})_{n-1} \cdot y_{i,2}}}{\sum_{i=1}^{N_\mathrm{Q}} y_{i,2} \cdot e^{-\mu_\mathrm{Q} x_{i,2}} e^{-(\mu_\mathrm{M})_{n-1} \cdot y_{i,2}}}. \tag{4.29}$$

Također, izračuni u (4.28) i (4.29) provedeni su i uz različite vrijednosti μ_Q, a rezultat se nije mijenjao. Dobiveni μ_C i μ_M uvršteni su u jednadžbe (4.6) i (4.8), na njih je primijenjena MC simulacija, izračunati su $Y_{\mathrm{C};1}$ i $Y_{\mathrm{M};1}$, a naposljetku je izračunat i $F = Y_{\mathrm{C};1} / Y_{\mathrm{M};1}$.

Cijela opisana metoda odnosi se na izračun samoatenuacijske korekcije za fotone na samo jednoj energiji. Kod opisanih mjerenja, obično se u uzorku Q nalazi više radionuklida čiji fotoni imaju energije iz cijelog energijskog područja od interesa, za ova mjerenja od 40 do 2000 keV-a. Za opisane simulacije i numeričke izračune napisan je program u programskom jeziku "R". Program je napisan tako se u njega unose dimenzije uzoraka, dimenzije detektora, međusobne udaljenosti uzorka i detektora, broj simuliranih izvora N^* i parametar ρ o kojem ovisi broj opisanih iteracija. Također, program je napisan tako da učita text datoteku u kojoj su navedeni mjereni parametri $R_{\mathrm{Q};2}$, $R_{\mathrm{Q,C};2}$ i $R_{\mathrm{Q,M};2}$ za sve energije fotona iz uzorka Q. Kao rezultat program ispisuje datoteku sa izračunatim μ_C, μ_M i F za svaku energiju. Kako se za potrebe disertacije mjereni uzorci tla i pepela biljaka značajno razlikuju i gustoćom i sastavom od matrice kalibracijskog standarda C (vode), za sve uzorke provedena ja korekcija samoatenuacije.

Općenito, kod MC simulacija broj generiranih slučajnih brojeva vrlo je velik, a u svrhu izračuna u ovoj disertaciji $N^* = 10^6$. Preciznost simulacije raste s N^*. Broj N^* biran je tako da rezultati nekoliko uzastopnih simulacija ne odstupaju značajno od aritmetičke sredine, tj. da

rasipanje rezultata nije značajno. Općenito, kod vrlo složenih MC simulacija potrebno je voditi računa i o performansama računala na kojem se simulacija provodi. Kako su ovdje opisane simulacije relativno jednostavne, korišteno je standardno osobno računalo koje je cjelokupnu metodu na desetak različitih energija i $N^* = 10^6$ provelo za nekoliko sekundi. Kako bi uspostavio kriterij za dovoljno velik N^*, simulacije su provođene više puta za isti broj N^*, uz promatranje rasipanja rezultata pojedine simulacije. Na slici 4.11 prikazano je rasipanje izračunatih vrijednost μ u ovisnosti o N^* na način da je za svaki odabrani N^* izračun izvršen dvanaest puta. Prikazani točkasti pravac na slici, $\mu = 0{,}28878\text{cm}^{-1}$, odgovara aritmetičkoj sredini dvanaest izračuna za $N^* = 10^6$, gdje srednje kvadratno odstupanje te aritmetičke sredine iznosi $3 \cdot 10^{-5}$ cm^{-1}. Podatak o srednjem kvadratnom odstupanju aritmetičke sredine govori nam da je $N^* = 10^6$ dovoljno velik i da je doprinos pogrešaka od simulacija zanemariv u ukupnim pogreškama mjerenja. Podaci na slici 4.11 dobiveni su na temelju mjerenja transmisije jednog od uzoraka tla na određenoj energiji. Također, važno je spomenuti da je za konkretne simulacije transmisija u geometriji g = 2, od fotona emitiranih u donju polusferu samo njih oko 15 % emitirano u smjeru detektora, tj. $N_Q \approx 0{,}15 \cdot N^*$.



Slika 4.11 Izračunate vrijednosti μ u ovisnosti o N^*, gdje je za svaki odabrani N^* izračun (simulacija) proveden dvanaest puta.

KORACI METODE I PRIMJER ODREĐIVANJA KOREKCIJA SAMOATENUACIJE

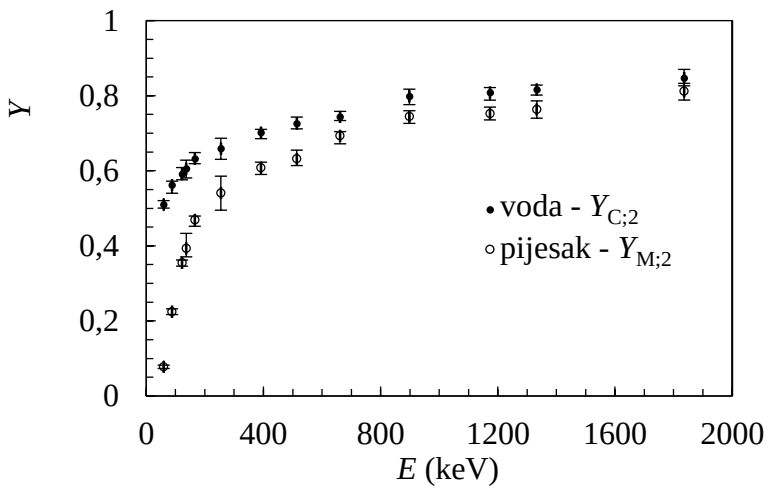
Kako je cijeli opisani postupak prilično kompleksan, u tablici 4.3 navedeni su svi prethodno opisani koraci metode potrebni za određivanje F, tj. za određivanje stvarne

Tablica 4.2 Koraci potrebni za određivanje faktora samoatenuacije F i aktivnosti $\overline{A}_{\mathrm{M}}$.

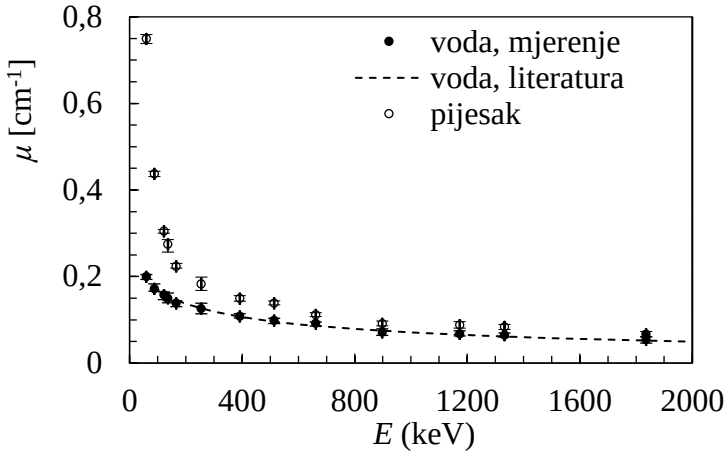
Korak	Ulazni parametri	jednadžba	Rezultat
1.	mjereni $R_{\mathrm{C;1}}$ i $R_{\mathrm{M;1}}$	(4.9)	$\overline{A}_{\mathrm{M}}^{\mathrm{C}}$
2.	mjereni $R_{\mathrm{Q;2}}$, $R_{\mathrm{Q,C;2}}$ i $R_{\mathrm{Q,M;2}}$	(4.20), (4.21)	$T_{\mathrm{C;2}}$, $Y_{\mathrm{M;2}}$
3.	$(\mu_C)_0$ i $Y_{\mathrm{C;2}}$, $(\mu_M)_0$ i $Y_{\mathrm{M;2}}$	(4.28), (4.29)	μ_{C}, μ_{M}
4.	μ_{C}, μ_{M}	(4.6), (4.8)	$Y_{\mathrm{C;1}}$, $Y_{\mathrm{M;1}}$
5.	$Y_{\mathrm{C;1}}$, $Y_{\mathrm{M;1}}$ i $\overline{A}_{\mathrm{M}}^{\mathrm{C}}$	(4.10)	F, $\overline{A}_{\mathrm{M}}$

aktivnosti $\overline{A}_{\mathrm{M}}$ iz mjerene aktivnosti $\overline{A}_{\mathrm{M}}^{\mathrm{C}}$. Također, može se primijetiti da broj procedura u pojedinim koracima može biti reduciran, jer je određena mjerenja ($R_{\mathrm{C;1}}$, $R_{\mathrm{Q;2}}$ i $R_{\mathrm{Q,C;2}}$) i određene izračune (μ_{C} i $Y_{\mathrm{C;1}}$) dovoljno provesti jednom za određenu geometriju. To znači da je za svaki novi uzorak potrebno mjeriti samo $R_{\mathrm{M;1}}$ (1. korak) i $R_{\mathrm{Q,M;2}}$ (2. korak), a izračunom je potrebno odrediti samo μ_{M} (3. korak) i $Y_{\mathrm{M;1}}$ (4. korak).

Za demonstraciju cijele metode, kao uzorak M odabran je uzorak pijeska nepoznatog sastava i gustoće 1,78 gcm^{-3}, jer je za taj uzorak samoatenuacija veća nego u uzorcima tla. Kao uzorak Q korišten je kalibracijski standard C, čiji su radionuklidi i pripadne energije prikazani u tablici 4.1. Uzorak sadrži devet radionuklida koji emitiraju fotone u energijskom intervalu 59,54-1836,01 keV-a. Navedeni radionuklidi uglavnom se ne pojavljuju u prirodi, pa tako niti u uzorku pijeska, eventualno ^{137}Cs, ali u malim aktivnostima u odnosu na C. Kako je matrica kalibracijskog standarda C voda, za mjerenje $R_{\mathrm{Q,C;2}}$ korišten je uzorak deionizirane vode



Slika 4.8 Mjerene transmisije kroz vodu $Y_{\mathrm{C;2}}$ (puni krugovi) i kroz pijesak $Y_{\mathrm{M;2}}$ (prazni krugovi) u ovisnosti o energiji fotona.

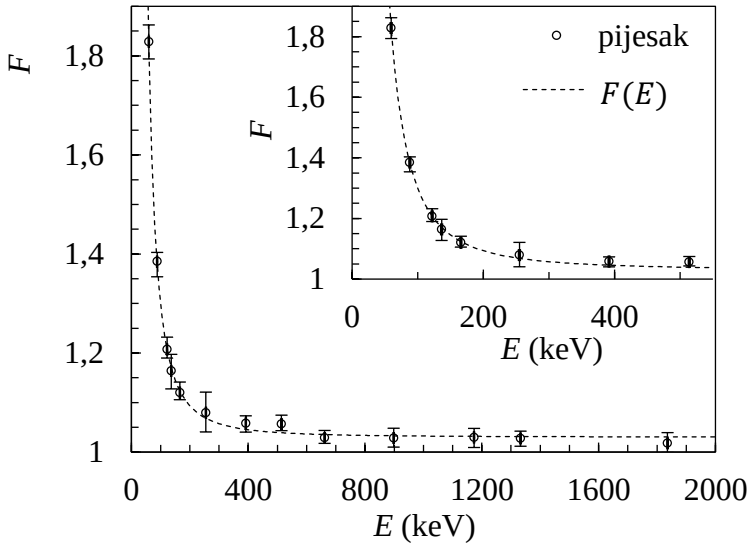


Slika 4.9 Linearni atenuacijski koeficijenti vode μ_{C} (puni krugovi) i pijeska μ_{M} (prazni krugovi) dobiveni opisanom metodom, zajedno s literaturnim podacima za μ vode (isprekidana linija) koji su preuzeti s web stranice http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/ComTab/water.html.

smješten između uzorka Q i detektora. Svi uzorci nalaze se u posudama jednakih dimenzija, a njihov polumjer (3,42 cm) jednak je polumjeru germanijevog kristala u detektoru. Prostor od 0,32 cm između kristala i gornje površine aluminijskog pokrova detektora uzet je u obzir kod MC simulacija. Na slici 4.8 prikazane su transmisije fotona kroz vodu $Y_{\mathrm{C;2}}$ (puni krugovi) i kroz pijesak $Y_{\mathrm{M;2}}$ (prazni krugovi) u ovisnosti o energiji E, koje su dobivene iz mjerenih $R_{\mathrm{Q;2}}$, $R_{\mathrm{Q,C;2}}$ i $R_{\mathrm{Q,M;2}}$. Za oba uzorka se može vidjeti značajna apsorpcija fotona, a posebno na niskim energijama. Korekcija samoatenuacije potrebna je zbog razlike u apsorpciji između uzoraka. Na slici 4.9 prikazani su linearni atenuacijski koeficijenti vode μ_{C} (puni krugovi) i pijeska μ_{M} (prazni krugovi) dobiveni opisanom metodom. Također, na slici su prikazani literaturni podaci za $\mu(E)$ vode, koji se vrlo dobro slažu s podacima dobivenim opisanom metodom i ujedno potvrđuju ispravnost same metode. Na temelju rezultata na slici 4.9, MC simulacijom određeni su $Y_{\mathrm{C;1}}$ i $Y_{\mathrm{M;1}}$ i izračunati samoatenuacijski korekcijski faktori F za pijesak. Na slici 4.10 prikazane su dobivene vrijednosti korekcijskog faktora F (prazni krugovi), a isprekidana linija predstavlja prilagođenu fenomenološku krivulju koja je dana jednadžbom

$$F(E) = a + bE^{-c}, \tag{4.30}$$

gdje je $a = 1{,}03$, $b = 4064{,}97\,(\mathrm{keV})^{2.1}$ i $c = 2{,}1$. Na jednak način, za sve uzorke kojima se određuje korekcija samoatenuacije, može se izračunatim korekcijskim faktorima F prilagoditi određena krivulja $F(E)$, pomoću koje se korekcija računa za proizvoljnu energiju u promatranom intervalu. Dobivanje funkcije $F(E)$ osnovni je cilj cijele opisane metode.



Slika 4.10 Izračunate vrijednosti F za uzorak pijeska (krugovi) i prilagođena krivulja $F(E)$ (isprekidana linija) iz jednadžbe (4.30). Umetnuti dio u grafu prikazuje uvećano područje niskih energija gdje je $F(E)$ relativno velik i gdje samoatenuacija ima značajan utjecaj.

4.2.4. Korekcija koincidentnog zbrajanja

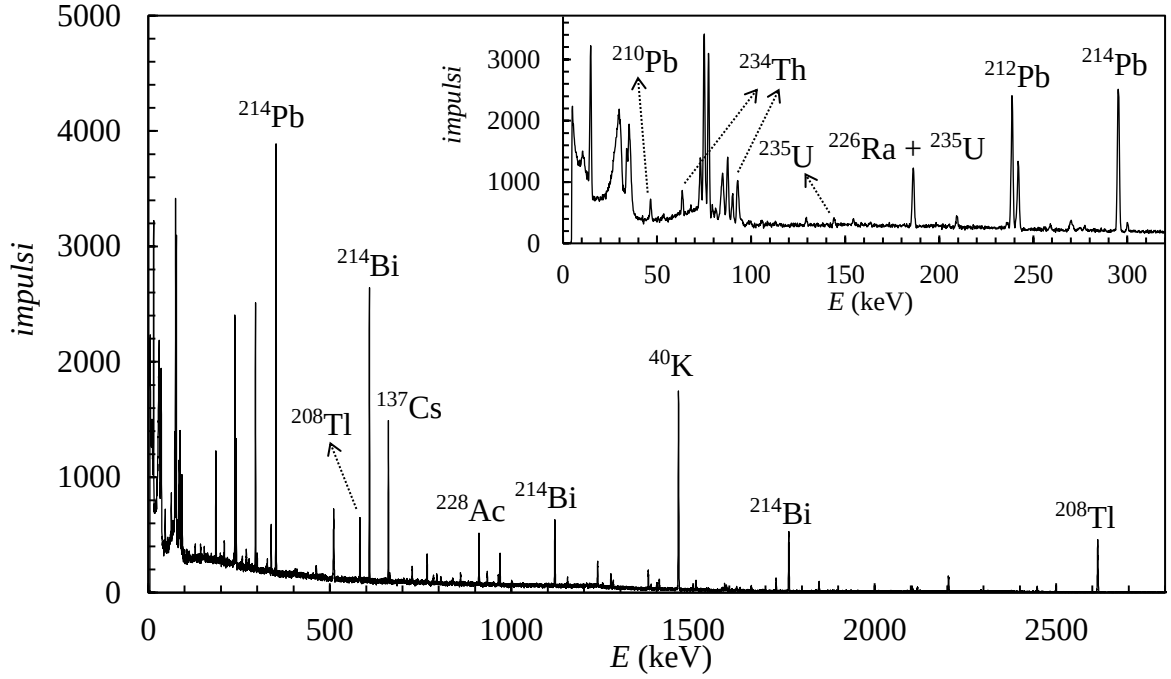
Kako je opisano u poglavlju 4.2.1., koincidentni događaji nastaju zbog toga što određeni radionuklidi gotovo istovremeno emitiraju jedan ili više γ fotona. Takve događaje detektor ne može razlučiti, a detektorski sustav će ih zbrojiti u jedan događaj s energijom zbroja energija pojedinih fotona. Dio mjerenih fotona neće se pojaviti na valjanoj poziciji u spektru i bit će prikazani na drugoj krivoj poziciji koja odgovara zbroju njihovih energija. Ovaj problem svojstven je mjerenju radionuklida koji emitiraju više fotona sa značajnom emisivnošću. Dodatno, s obzirom da se kalibracija efikasnosti radi i s radionuklidima koji emitiraju više fotona, sistematska pogreška se preko kalibracije efikasnosti unosi i u mjerenje drugih radionuklida. Npr. u kalibracijskom standardu korištenom za potrebe ove disertacije nalaze se radionuklidi ^{57}Co, ^{60}Co i ^{88}Y od kojih svaki emitira dva fotona. Kod ^{57}Co koincidentni događaji nisu značajni zbog relativno male emisivnosti jednog od fotona, dok su koincidentni događaji kod ^{60}Co i ^{88}Y značajniji, jer oba emitirana fotona imaju emisivnost od gotovo 100 %. Fotoni ^{60}Co i ^{88}Y u kalibraciji pokrivaju široko područje od 700 do 2000 keV-a, čime je u mjerenje većeg broja radionuklida unesena sistematska pogreška kalibracije nastala zbog koincidentnih događaja. I kod mjerenja radionuklida koji emitiraju dva ili više fotona pojavljuju se sistematske pogreška zbog koincidentnih događaja, neovisno o kalibraciji. Zbog navedenih razloga, korekcija koincidentnog zbrajanja treba se provesti i kod kalibracije i kod mjerenja.

Vjerojatnost da dva ili više fotona budu istovremeno detektirani u detektoru ovisi o obliku uzorka i detektora, njihovoj međusobnoj udaljenosti i orijentaciji (geometriji g), matrici uzorka, te o emisivnosti pojedinog fotona. Kao i kod korekcije samoatenuacije, problem se može riješiti MC simulacijom, ali bez potrebe za dodatnim mjerenjima. Na jednak se način generiraju koordinate izvora fotona i pripadni smjerovi emitiranih fotona. Također, u simulaciju se unose gore navedeni parametri i računa se vjerojatnost koincidentnog događaja za pojedini radionuklid. Za potrebe ove disertacije, korekcije koincidentnog zbrajanja provedene su pomoću softvera Efftran, dostupnog u slobodnoj verziji[26]. Funkcioniranje i primjena navedenog objašnjeni su u [73–75]. Dobiveni faktori (mjerenja u geometriji $g = 1$, slika 4.6) za fotone radionuklida ^{60}Co i ^{88}Y iz kalibracijskog standarda iznose od 1,15 do 1,2 (za mjerenje na detektoru Ortec) i od 1,1 do 1,15 (za mjerenje na detektoru Canberra). Ovim faktorima se množe efikasnosti ε_E i na taj način provodi korekcija koincidentnog zbrajanja kod kalibracije efikasnosti. Dodatno, kod provođenja mjerenja aktivnosti radionuklida od interesa, softverom Efftran se određuju faktori korekcije, koji uneseni u softver za analizu spektra automatski korigiraju mjerenu aktivnost.

4.2.5. Analiza spektra

Spektar sadrži podatke o broju mjerenih impulsa (detektiranih fotona) u svakom kanalu, tj. naponskom intervalu. Za dobivanje i analizu spektara korišteni su već spomenuti softveri GammaVision i Genie. Softveri pretvaraju broj mjerenih impulsa na određenim kanalima, koristeći kalibracije energije i efikasnosti, u aktivnost radionuklida u uzorku. Na slici 4.12 grafički je prikazan tipičan spektar uzorka tla. Vidljivi fotovrhovi[27] u spektru predstavljaju učestalo mjerene fotone koje emitiraju radionuklidi iz uzorka. Iz ukupnog broja impulsa u fotovrhu određuje se aktivnost radionuklida. Određeni radionuklidi emitiraju više različitih fotona, pa u spektru stvaraju i više fotovrhova. Na slici 4.12 prikazano je kojim radionuklidima od interesa za ovu disertaciju pripadaju fotovrhovi iz spektra, tj. radionuklidi od interesa prikazani su iznad pripadajućih fotovrhova. Manji fotovrhovi u spektru na slici uglavnom nastaju kao posljedica fotona manje emisivnosti istih prikazanih radionuklida. Određeni fotovrhovi posljedica su dva ili više fotona bliskih u energiji, tj. energijski nerazlučivih fotona,

[26] Upute za korištenje i način preuzimanja softvera navedeni su na web stranici: http://www.efftran.com/.
[27] Fotovrh je značajno povećanje broja impulsa na nekoliko uzastopnih kanala u spektru.



Slika 4.12 Prikaz spektra dobivenog mjerenjem jednog od uzoraka tla. Fotovrhovima od interesa pridruženi su pripadajući radionuklidi.

a takvi fotovrhovi nisu pogodni za određivanje aktivnosti. Veći broj neoznačenih fotovrhova na energijama od 0 do 100 keV posljedica je mnogo energijski nerazlučivih fotona, zbog čega su izuzeti iz analize. U spektru se vidi kontinuirana pozadina impulsa nastalih Comptonovom interakcijom u detektoru. Pri izračunu aktivnosti radionuklida, svaki fotovrh se analizira zasebno. Od ukupnog broja impulsa na području fotovrha oduzima se broj impulsa comptonove pozadine istog područja. Također, pored impulsa u fotovrhu koji su posljedica određenog radionuklida u uzorku, dio impulsa u fotovrhu dolazi i od istog tog radionuklida izvan uzorka, npr. ista vrsta radionuklida može se nalaziti u zraku oko detektora unutar olovnog oklopa (koji služi za zaštitu od zračenja iz okoline). Taj dio zračenja koji dolazi od radionuklida izvan uzorka naziva se pozadinsko zračenje, a pripadne impulse tog zračenja potrebno je oduzeti pri izračunu aktivnosti u uzorku. U svrhu oduzimanja impulsa pozadinskog zračenja, mjeri se pozadinsko zračenje bez uzorka i odredi se broj impulsa pozadinskog zračenja u jedinici vremena. Od fotovrha nastalog mjerenjem uzorka oduzima se broj impulsa pozadinskog zračenja u jedinici vremena pomnožen s vremenom mjerenja uzorka.

Nadalje su za radionuklide od interesa za ovu disertaciju navedene specifičnosti određivanja aktivnosti iz mjerenog spektra. Za svaki radionuklid koji se razmatra navedene su energije fotona, tj. fotovrhova, iz kojih se određuje aktivnost i pripadne emisivnosti. Navedeni su samo fotoni čije su emisivnosti značajne i koji se opažaju u spektru. Ako određeni

radionuklid emitira više fotona sa značajnom emisivnošću, aktivnost se računa težinskom statistikom na temelju više mjerenih fotovrhova.

- ^{137}Cs – Određuje se iz fotovrha na energiji od 661,66 keV. Emisivnost pripadnog fotona iznosi 85,1 %, zbog čega se jasno vidi u spektru.
- ^{40}K – Određuje se iz fotovrha na energiji od 1460,82 keV. Iako emisivnost pripadnog fotona iznosi tek 10,66 %, obično se fotovrh jasno vidi u spektru zbog relativno velike koncentracije ^{40}K u gotovo svim uzorcima, a pogotovo u uzorcima tla.
- ^{238}U – Ne može se direktno vidjeti u spektru jer je slab γ emiter. Određuje se na temelju aktivnosti ^{234}Th, koji je prvi potomak ^{238}U i emitira fotone (slika 2.1). Kako je $T_{1/2}(^{238}\mathrm{U}) >> T_{1/2}(^{234}\mathrm{Th})$, pretpostavlja se ravnoteža između radionuklida, tj. pretpostavlja se da imaju jednake aktivnosti. Aktivnost ^{234}Th odredi se iz fotovrhova na energijama 63,29, 92,38 i 92,80 keV-a, gdje emisivnosti pripadnih fotona redom iznose 3,7, 2,13 i 2,10 %. Fotovrhovi na 92,38 i 92,80 keV-a se preklapaju, tj. ne mogu se razlučiti. Samo u ovakvom slučaju, gdje se prekrivaju fotovrhovi nastali od istog radionuklida, broj impulsa koji dolazi od pojedinog fotona može se odrediti iz omjera njihovih emisivnosti. Zbog malih emisivnosti, mjerena aktivnost obično ima veću relativnu nepouzdanost. Također, fotovrhovi se nalaze na nižim energijama, gdje je samoatenuacija značajna, a korekcija samoatenuacije unosi dodatnu nepouzdanost u mjerenje.
- ^{235}U – Određuje se iz aktivnosti ^{238}U, tj. iz izotopnog omjera ^{235}U i ^{238}U. Dodatno, kao kontrolni podatak, aktivnost se može mjeriti iz fotovrhova na 143,76 i 185,72 keV s emisivnostima pripadnih fotona od 10,96 i 57,0 %. Mjerenja na temelju tih fotovrhova imaju svoje nedostatke. Fotovrh na 143,76 keV ima relativno malu emisivnost, dok se fotovrh na 185,72 keV prekriva sa fotovrhom ^{226}Ra na 186,21 keV. Iz poznate aktivnosti ^{226}Ra, mogu se u prekrivajućem vrhu oduzeti impulsi ^{226}Ra i iz razlike odrediti aktivnost ^{235}U.
- ^{232}Th – Ne može se direktno vidjeti u spektru jer slab γ emiter. Određuje se na temelju aktivnosti ^{228}Ac, koji je drugi potomak ^{232}Th i emitira fotone (slika 2.3). Kao i u slučaju ^{238}U, na temelju velike razlike u vremenima poluraspada, pretpostavlja se jednakost aktivnosti ^{228}Ac i ^{232}Th. Aktivnost ^{228}Ac odredi se na temelju fotovrhova na energijama 338,32, 911,20 i 968,97 keV, gdje emisivnosti pripadnih fotona redom iznose 11,27, 25,8 i 15,8 %.
- ^{226}Ra – Emitira foton na energiji 186,21 keV, ali zbog već navedenog preklapanja s fotonom ^{235}U, određivanje aktivnosti iz pripadnog fotovrha nije pouzdano. Prva dva

potomka ^{226}Ra (^{222}Rn i ^{218}Pb) nisu γ emiteri, tek sljedeći radionuklid, ^{214}Pb, je γ emiter (slika 2.1). Kako navedena tri potomka imaju daleko manje vrijeme poluraspada nego ^{226}Ra, može se pretpostaviti ravnoteža između ^{226}Ra i ^{214}Pb, izjednačiti njihove aktivnosti, te na taj način odrediti aktivnost ^{226}Ra. Kako je ^{222}Rn plemeniti plin, pretpostavlja se da je prije zatvaranja uzorka u posudu za mjerenje ^{222}Rn izlazio iz uzorka, tj. da nije postignuta ravnoteža. Zbog navedenog razloga, uzorak se mjeri tek 30-ak dana nakon zatvaranja u posudu, jer se pretpostavlja postizanje ravnoteže između ^{226}Ra i ^{222}Rn kroz to vrijeme. Aktivnost ^{214}Pb određuje se iz fotovrhova na 295,22 i 351,93 keV, gdje emisivnosti pripadnih fotona iznose redom 18,42 i 36,6 %. Također, mjerenje aktivnosti ^{214}Bi, koji je sljedeći u nizu iza ^{214}Pb i brzo se raspada (slika 2.1), može poslužiti kao dodatni kontrolni radionuklid za određivanje aktivnosti ^{226}Ra.

- ^{210}Pb – Određuje se iz fotovrha na energiji 46,54 keV, gdje emisivnost pripadnog fotona iznosi 4,24 %. Niska emisivnost povećava nepouzdanost mjerenja. Kako je energija fotona vrlo niska, samoatenuacija je značajna, pa i korekcija samoatenuacije dodatno povećava nepouzdanost.
- ^{208}Tl – Određuje se na temelju fotovrhova na energijama 583,19 i 2614,51 keV, gdje emisivnosti pripadnih fotona redom iznose 85,0 i 99,75 %.

4.3. Određivanje koncentracija aktivnosti ^{90}Sr

Kao što je već navedeno u 2. i 3. poglavlju, ^{90}Sr je antropogeni radionuklid koji nastaje nuklearnom fisijom u nuklearnim elektranama i eksplozijama nuklearnog oružja. Iz tablice 2.2 može se vidjeti da je uglavnom u okoliš ispušten pokusima nuklearnog oružja, a od čega je najveći dio završio u atmosferi. Iznimno je opasan zbog kemijske sličnosti s kalcijem, zbog čega se dugo zadržava u tijelu (tablica 3.3). ^{90}Sr je radionuklid koji ne emitira γ zračenje, već samo β zračenje, zbog čega ga nije moguće mjeriti gama spektrometrijom. U svrhu disertacije, ^{90}Sr se određivao pomoću Geiger-Müllerovog brojača[28], za što je bilo potrebno radiokemijskom metodom pripremiti uzorak za mjerenje. Radiokemijska metoda je složena zbog složenog sastava tla. Cilj metode je svesti uzorak na tanki sloj materijala u kojem je sadržana većina ^{90}Sr iz uzorka, da bi se time maksimalno smanjila atenuacija elektrona pri prolasku iz uzorka do Geiger-Müllerovog brojača. Također, cilj je i uklanjanje ostalih β emitera,

[28] Risø National Laboratory Beta Multicounter System GM-25-5

tj. uklanjanje njihovog doprinosa mjerenju. Emitirani elektroni iz raspada ^{90}Sr imaju relativno nisku energiju. Maksimalna energija iznosi 546 keV, a srednja 195 keV. Na tom području energija nalazi se i β zračenje drugih β emitera, kao što je ^{40}K, zbog čega nije moguće izdvojiti elektrone nastale raspadom ^{90}Sr. Kako se ^{90}Sr raspada u ^{90}Y kojem je vrijeme poluraspada 64 h i značajno manje od vremena poluraspada ^{90}Sr ($T_{1/2}(^{90}\mathrm{Y}) << T_{1/2}(^{90}\mathrm{Sr})$), za uzorak se pretpostavlja ravnoteža aktivnosti, tj. $A(^{90}\mathrm{Y}) = A(^{90}\mathrm{Sr})$. ^{90}Y je također β emiter, a emitirani elektroni imaju maksimalnu energiju 2280 keV i srednju energiju 934 keV. Zbog relativno visoke energije, emitirani elektroni ^{90}Y u manjem se udjelu energijama preklapaju s ostalim β zračenjem iz uzorka zbog čega su pogodniji su za mjerenje, pa se zbog jednakosti aktivnosti ^{90}Sr i ^{90}Y mjeri $A(^{90}\mathrm{Y})$. Radiokemijska metoda počinje usitnjavanjem i spaljivanjem uzorka do 650 °C čime se ukloni sav organski materijal. U daljnjim koracima metode uzorak prolazi kroz nekoliko otapanja (u određenim kiselinama), filtriranja i taloženja. U određenom koraku metode u uzorak se dodaje tzv. itrijev nosač koji iz uzorka izdvoji ^{90}Y. Na kraju kemijskog postupka dobije se tanki kružni sloj itrijeva oksalata $\mathrm{Y_2(C_2O_4)_3}$ određenog polumjera i debljine, koji sadrži ^{90}Y čija je aktivnost jednaka aktivnosti ^{90}Sr. U svrhu disertacije ^{90}Sr je mjeren u uzorcima sa 6 lokacija, tj. u mjestima Zagreb, Osijek, Zadar, Potok, Gospić i Sveti Rok. Koordinate lokacija prikazane su na slici 4.1 i navedene u tablici u prilogu A. Više mjerenja nije provedeno zbog složenosti radiokemijske metode i vremena potrebnog da se metoda provede. Navedenih 6 uzoraka odabrano je tako da pokrivaju panonsku, gorsku i primorsku Hrvatsku.

5. REZULTATI I RASPRAVA

U prethodnom poglavlju opisano je uzorkovanje tla, te priprema, način mjerenja i određivanje koncentracija aktivnosti A radionuklida u uzorku. Provedenim mjerenjima dobiveni su spektri, a analizom dobivenih spektara određene su A radionuklida od interesa. Radionuklidi od interesa čije će A biti prikazane i interpretirane su: ^{238}U, ^{232}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{208}Tl, ^{40}K, ^{137}Cs i ^{90}Sr. U svih 156 uzoraka spomenutih u prethodnom poglavlju određene su A svih navedenih radionuklida osim ^{90}Sr, koji je zbog složenosti metode određen samo u 6 uzoraka neobrađenog tla. Na temelju mjerenih A izračunate su brzine apsorbiranih doza $\dot{\Delta}$, koje su posljedica prisutnosti radionuklida u tlu. A i $\dot{\Delta}$ od navedenih radionuklida (osim ^{90}Sr), za 138 uzoraka neobrađenog tla, prikazivane su paletom boja na mapi RH, tj. na lokacijama uzorkovanja, na način da svakoj boji odgovara jedan interval izmjerenih vrijednosti A ili izračunatih vrijednosti $\dot{\Delta}$.

U poglavlju 5.1. opisana su svojstva tla s područja RH i povezana sa 138 lokacija na kojima su uzeti uzorci. Svojstva koja se mogu povezivati s mjerenim A prikazana su različitim bojama na mapi RH. Opisi i podaci o svojstvima tla preuzeti su iz literature [76].

U poglavlju 5.2 je (za svaki radionuklid zasebno) svakoj lokaciji pridružena boja koja odgovara vrijednosti A mjerenoj u uzorku uzorkovanom na toj lokaciji. Na taj je način grafički prikazana raspodjela A pojedinog radionuklida na području RH. Prikaz A radionuklida razdijeljen je na tri dijela. U prvom dijelu prikazane su A PP radionuklida. Za prikaz su odabrani ^{238}U, ^{232}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{208}Tl (radionuklidi iz nizova raspada[29]) i ^{40}K. ^{238}U i ^{232}Th nalaze se na početku pripadajućih im nizova raspada i mogu poslužiti kao ocjena prisutnosti ostalih radionuklida iz nizova. ^{226}Ra kemijski je sličan kalciju, zbog čega može zamijeniti kalcij u živim organizmima. Ima dugo vrijeme poluraspada od 1600 godina, dugo biološko vrijeme od 44 godine (tablica 3.3) i α je emiter, zbog čega može biti iznimno štetan ako se nalazi u organizmu. Također, indikator je prisutnosti ^{222}Rn koji nastaje iz ^{226}Ra i koji difuzijom izlazi iz tla u zrak. ^{210}Pb zbog relativno dugog vremena poluraspada od 22,2 godine i biološkog vremena od 10 godina (tablica 3.3), može biti kao i ^{226}Ra iznimno opasno ako dođe u organizam. ^{208}Tl prikazan je kao dodatni radionuklid koji predstavlja niz ^{232}Th. ^{40}K je sveprisutni PP radionuklid koji je uz to i indikator bioloških procesa na određenom području, zbog čega je izdvojen za

[29] ^{235}U čini 0,7 % prirodnog uranija i nalazi se u stalnom omjeru s ^{238}U, zbog čega niz ^{235}U nije prikazivan u rezultatima.

prikaz. Također, iz $A(^{40}K)$ izračunata je koncentracija elementarnog kalija koja je bitna za procjenu utjecaja ^{137}Cs na žive organizme. U drugom dijelu prikazane su $A(^{137}Cs)$ koji je najzastupljeniju antropogeni radionuklid u prirodi. Zbog svoje kemijske sličnosti s kalijem, lako ulazi u organizme u zamjenu za kalij. Zbog navedenog svojstva, prikazan je omjer koncentracije ^{137}Cs i koncentracije kalija. Komentirana je i povezanost $A(^{137}Cs)$ s reljefnim, klimatološkim i drugim svojstvima područja na kojima su uzeti uzorci tla. U trećem dijelu prikazane su A ^{90}Sr. Zbog manjeg broja lokacija za koje je određen, prikaz je samo tabličan. Vrijednosti A s pripadajućim pogreškama mjerenja za svaku lokaciju uzorkovanja dane su u tablici u prilogu C (radionuklidi iz nizova raspada) i prilogu D (^{137}Cs i ^{40}K). Na temelju rednih brojeva lokacije u tablicama priloga A, C i D, vrijednosti A mogu se povezati s koordinatama lokacija.

Na jednak način kao i A, tj. na mapi RH i u tablici u prilogu E, u poglavlju 5.3. prikazane su brzine apsorbiranih doza $\dot{\Delta}$ koje se izračunaju na temelju mjerenih A radionuklida, a odnose se na vanjsko ozračivanje γ fotonima. U prvom su dijelu prikazane $\dot{\Delta}$ koje su posljedica prisutnosti radionuklida ^{40}K i radionuklida iz lanaca raspada ^{238}U i ^{232}Th, tj. ukupne $\dot{\Delta}$ koje su posljedica PP radionuklida. U drugom su dijelu prikazane $\dot{\Delta}$ koje su posljedica prisutnosti ^{137}Cs koji daje ukupni doprinos $\dot{\Delta}$ od antropogenih radionuklida. U trećem su dijelu prikazane ukupne $\dot{\Delta}$ od PP i od antropogenih radionuklida, tj. ukupne $\dot{\Delta}$ koje dolaze od tla.

U poglavlju 5.4. prikazane su i interpretirane A uzoraka tla s poljoprivrednih površina, a konkretne su vrijednosti navedene u tablici u prilogu F. Opisana su i svojstava tla i povezana s mjerenim A. Razmotreni su i razlozi lokalnih varijacija u mjerenim A.

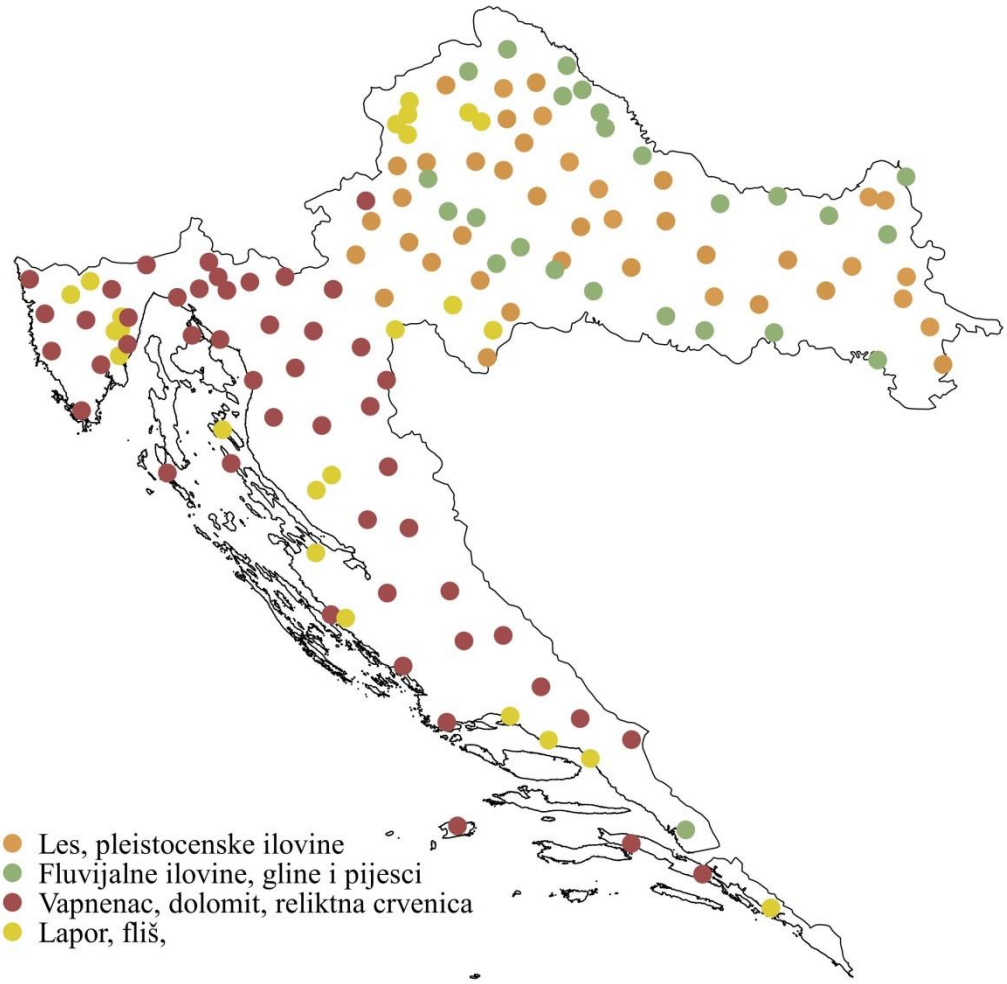
U zadnjem poglavlju, 5.5., uspoređene su mjerene A tla RH s literaturnim podacima drugih dijelova Europe i svijeta, što daje opću relativnu sliku stanja radioaktivnosti tla na području RH.

5.1. Svojstva tla na području RH i utjecaj na radioaktivnost

Količina PP radionuklida u tlu bitno ovisi o vrstama i svojstvima tla. Na relativno maloj površina RH nalaze se tri različita reljefna i klimatološka područja - panonsko, planinsko i primorsko područje. Razlike među područjima reflektiraju se i na sastav tla, a time i na radioaktivnost u tlu. Kako bi se opisala svojstva tla potrebno je opisati i čimbenike nastanka tla o kojima ovisi sastav tla, a posljedično i radioaktivnost tla. Najvažniji čimbenici koji utječu na

svojstva tla jesu: matični supstrat, klima, organizmi koji žive na tlu, reljef, starost tla i utjecaj čovjeka [76].

Matični supstrat je čimbenik o kojem najviše ovisi količina PP radionuklida u tlu zbog čega je detaljnije opisan. Nastaje trošenjem litosfernih stijena koje su u doticaju s atmosferom. Matični supstrat područja RH vrlo je raznolik i može se podijeliti na 30-ak različitih matičnih supstrata [76]. Na slici 5.1 prikazani su matični supstrati na lokacijama uzorkovanja neobrađenog tla. Spomenutih 30-ak matičnih supstrata grupirano je prema sličnosti u četiri veće grupe i na taj način prikazano. Prvu grupu čine les i pleistocenske ilovine i gline, drugu grupu fluvijalne i koluvijalne ilovine, gline i pijesci, treću grupu vapnenac, dolomit i reliktna crvenica, a četvrtu grupu lapor i fliš. Vapnenac i dolomit zauzimaju 40 % površine RH, les 19 %, fluvijalne ilovine, gline i pijesci 17 %, pleistocenske ilovine 7,5 %, lapor 6 %, fliš 2,3 %, reliktna crvenica 1,3 %, a ostatak gnajs, škriljavac, pješčenjaci i drugi supstrati [76]. Na području planinske i primorske Hrvatske najzastupljeniji matični supstrati pripadaju navedenoj trećoj skupini, tj. vapnencu, dolomitu i reliktnoj crvenici, a manji dijelovi (unutrašnjost Istre,



Slika 5.1 Matični supstrat tla na području RH. Podaci preuzeti iz [76].

područje oko Gospića i uska priobalna područja) pripadaju četvrtoj skupini, tj. laporu i flišu. Najvećim dijelom vapnenac i dolomit dolaze zajedno, a na manjim područjima može jedan biti dominantan. Npr. na području Gorskog Kotara dominantan je dolomit. Reliktna crvenica nalazi se na područjima zapadne i jugozapadne Istre i na području prijelaza iz panonske u planinsku Hvatsku (jugozapadno od grada Karlovca). Na području panonske Hrvatske najvećim dijelom se nalaze matični supstrati iz navedene prve i druge skupine. Dominantna je prva skupina koju čine les i pleistocenske ilovine, a na područjima oko rijeka Save, Drave i Dunava nalaze se fluvijalne ilovine, gline i pijesci. Na manjem području panonske Hrvatske, tj. u dijelovima Zagorja, matični supstrat je lapor iz četvrte navedene skupine. U prezentaciji rezultata mjerenja prikazane su poveznice između matičnih supstrata i mjerenih *A*. Ostali čimbenici stvaranja tla u manjoj mjeri djeluju na količinu PP radionuklida u tlu. Reljef utječe na trošenje matičnih stijena, eroziju, klimu, preraspodjelu i zadržavanje vode, što za posljedicu ima razlike u količini i sastavu nastalog tla. Osnovno obilježje reljefa je nadmorska visina. Prema tom obilježju RH se može podijeliti na visinsko i nizinsko područje, što pridonosi razlici u stvaranju i sastavu tla na području RH. Reljef i Jadransko more bitno utječu i na klimu, zbog čega područja RH ima tri različite klimatske regije – mediteransku, planinsku i kontinentalnu. Navedene klimatske regije imaju različitu srednju temperaturu i količine oborina, što utječe i na trošenje matičnih stijena, preraspodjelu matičnog supstrata i u konačnici na stvaranje tla. Čovjek raznim tehnološkim procesima i poljoprivredom djeluje na tlo, a time i na koncentracije radioaktivnosti u tlu. Živi organizmi u stalnoj su interakciji s tlom, pa na taj način u manjoj mjeri mogu utjecati i na radioaktivnost u tlu. Npr. postoji stalna izmjena kalija, a ujedno i ^{40}K, između tla i živih organizama. Osim povezanosti s PP radionuklidima, svojstva i način stvaranja tla mogu utjecati i na zadržavanje antropogenih radionuklida ako se nađu u okolišu.

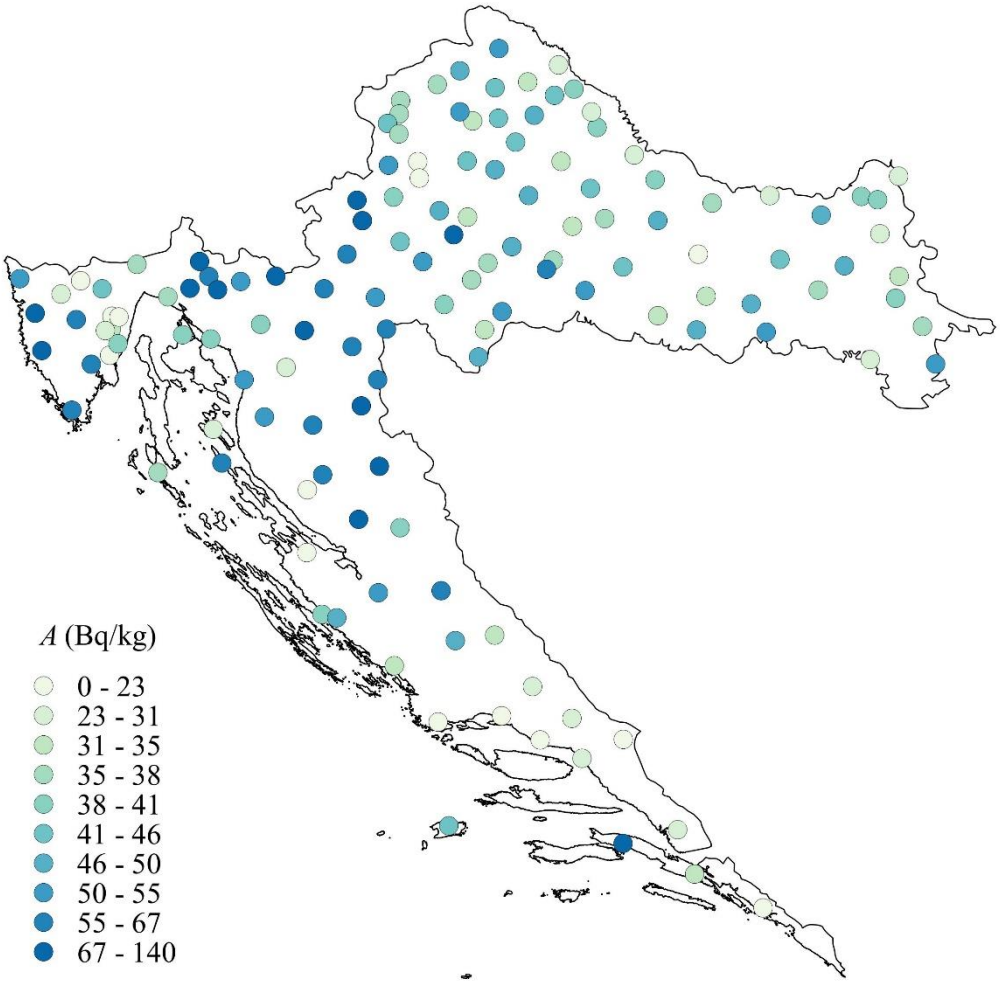
5.2. Mjerene koncentracije aktivnosti

5.2.1. Koncentracije aktivnosti radionuklida prirodne pojavnosti

U PP radionuklide spadaju radionuklidi iz nizova ^{238}U, ^{235}U i ^{232}Th, te ^{40}K. Nizovi raspada koji počinju od ^{238}U, ^{235}U i ^{232}Th prikazani su na slikama 2.1, 2.2 i 2.3 u 2. poglavlju. S obzirom da ^{235}U u elementarnom uraniju čini samo 0,7 % (ostatak je ^{238}U) i da se potomci ^{40}K ne raspadaju, radionuklidi nizova ^{238}U i ^{232}Th daju najveći doprinos radioaktivnosti tla. Uz

^{238}U i ^{232}Th, za prikaz radionuklida iz nizova izdvojeni su još ^{226}Ra, ^{210}Pb i ^{208}Tl. Vrijednosti A izdvojenih radionuklida iz nizova navedene su u prilogu C. ^{40}K prikazan je zbog povezanosti s utjecajem ^{137}Cs na žive organizme. Za prikaz A navedenih radionuklida na slikama, ukupni raspon mjerenih vrijednosti pojedinog radionuklida podijeljen je na 10 intervala. Intervali su konstruirani na način da se u svakom nalazi jednak broj mjerenih vrijednosti. Svakom intervalu mjerenih vrijednosti pridružena je jedna boja. Svjetlije boje imaju značenje manjih, a tamnije većih vrijednosti A. Ovim načinom prikaza rezultata mogu se na jednostavan način vidjeti trendovi mjerenih A, tj. relativni odnosi mjerenih A s obzirom na lokaciju.

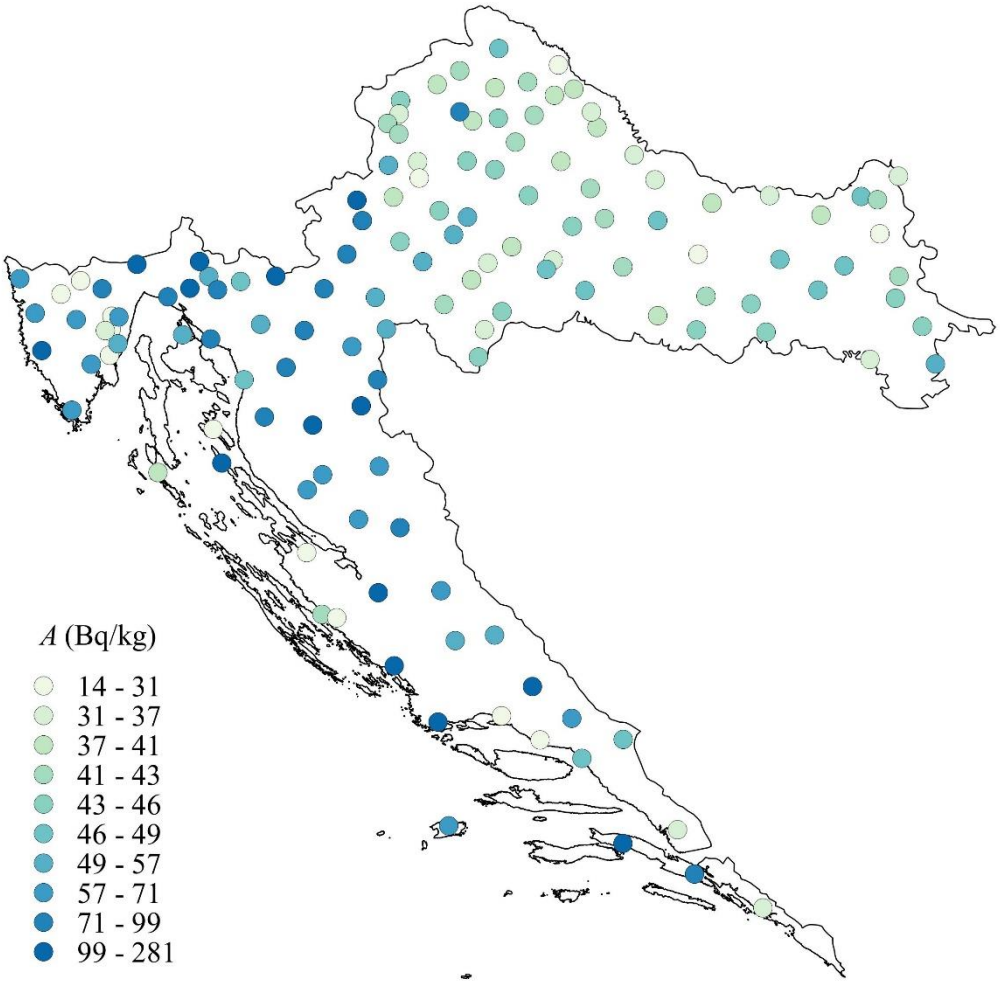
Na slici 5.2 prikazane su A(^{238}U) na lokacijama uzorkovanja tla. A(^{238}U) poprimaju vrijednosti od 0 do 140 Bq/kg, a srednja vrijednost iznosi 44,5 Bq/kg. Promatranjem slike mogu se vidjeti trendovi, tj. područja s većim i manjim vrijednostima A(^{238}U). Područja većih A(^{238}U) nalaze se u Gorskom Kotaru, Lici, zapadnoj i jugozapadnoj Istri, Žumberačkom gorju i na prijelaza iz panonske u planinsku Hrvatsku. Manje A(^{238}U) mjerene su na većem dijelu panonske Hrvatske, u unutrašnjosti Istre i na područjima središnje i južne Dalmacija. Iz opisa



Slika 5.2 Raspodjele koncentracija aktivnosti ^{238}U u tlu na području RH.

matičnog supstrata u prethodnom poglavlju može se pretpostaviti povezanost povećane aktivnosti s područjima gdje su dominantni dolomit, vapnenac i reliktna crvenice.

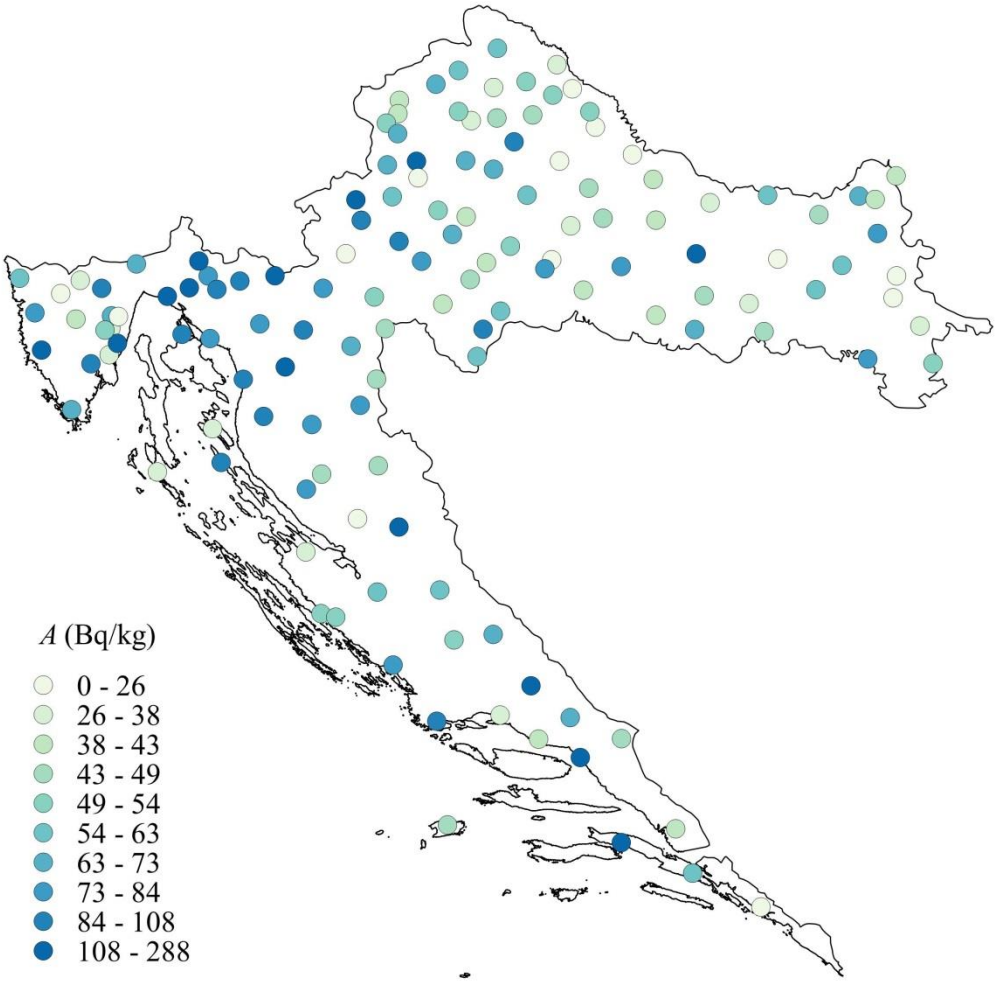
Na slici 5.3 prikazane su $A(^{226}Ra)$. Poprimaju vrijednosti od 14 do 281 Bq/kg, a srednja vrijednost iznosi 57,4 Bq/kg. Sa slike se vidi da se veće vrijednosti nalaze na području planinske i primorske Hrvatske, a manje vrijednosti na području panonske Hrvatske. Usporedbom slike 5.2 sa slikom 5.1, tj. povezivanjem vrijednosti $A(^{226}Ra)$ s matičnim supstratom tla, jasno se mogu vidjeti trendovi većih $A(^{226}Ra)$ na područjima gdje je matični supstrat vapnenac, dolomit ili reliktna crvenica. Također, na područjima gdje se nalaze lapor i fliš, (unutrašnjost Istre, Rab, područja oko Zadra, Biograda, Splita, Omiša i Dubrovnika), a okružena su područjima s vapnencem, dolomitom i reliktnom crvenicom, jasno se vide manje $A(^{226}Ra)$. Može se zaključiti da su veće količine ^{226}Ra posljedica matičnog supstrata, tj. dolomita, vapnenca i reliktne crvenice. Razlog tome može biti i činjenica da navedeni supstrati sadrže $CaCO_3$ i $MgCO_3$, a kako je ^{226}Ra kemijski sličan Ca i Mg, može se vezati na njihovo mjesto. Veće količine ^{226}Ra u tlu za posljedicu imaju i veće količine ^{222}Rn koji difuzijom izlazi iz tla u zrak [77,78]. Također,



Slika 5.3 Raspodjele koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u tlu na području RH.

usporedbom srednjih vrijednosti ili za svaku lokaciju zasebno, može se vidjeti da su $A(^{226}Ra)$ uglavnom veće od $A(^{238}U)$. S obzirom da se ^{226}Ra pojavljuje u nizu iza ^{238}U, $A(^{226}Ra)$ bi trebala biti manja ili jednaka $A(^{238}U)$ (slike 3.1 i 3.2). Opažena pojava može se objasniti činjenicom da ^{226}Ra u odnosu na ^{238}U učestalije ulazi u kemijske reakcije s površinskim slojevima tla i sa živim organizmima na tlu, prvenstveno s vegetacijom [79,80], čime je njegovo nakupljanje pospješeno. $T_{1/2}$ ^{226}Ra od 1600 godina (slika 2.1) dovoljno je dugo za višestruko ulaženje u interakcije s živim organizmima. Opažena pojava ujedno i ukazuje na opasnost od ^{226}Ra, baš zbog njegovog dugog $T_{1/2}$ i sposobnosti vezanja u žive organizme.

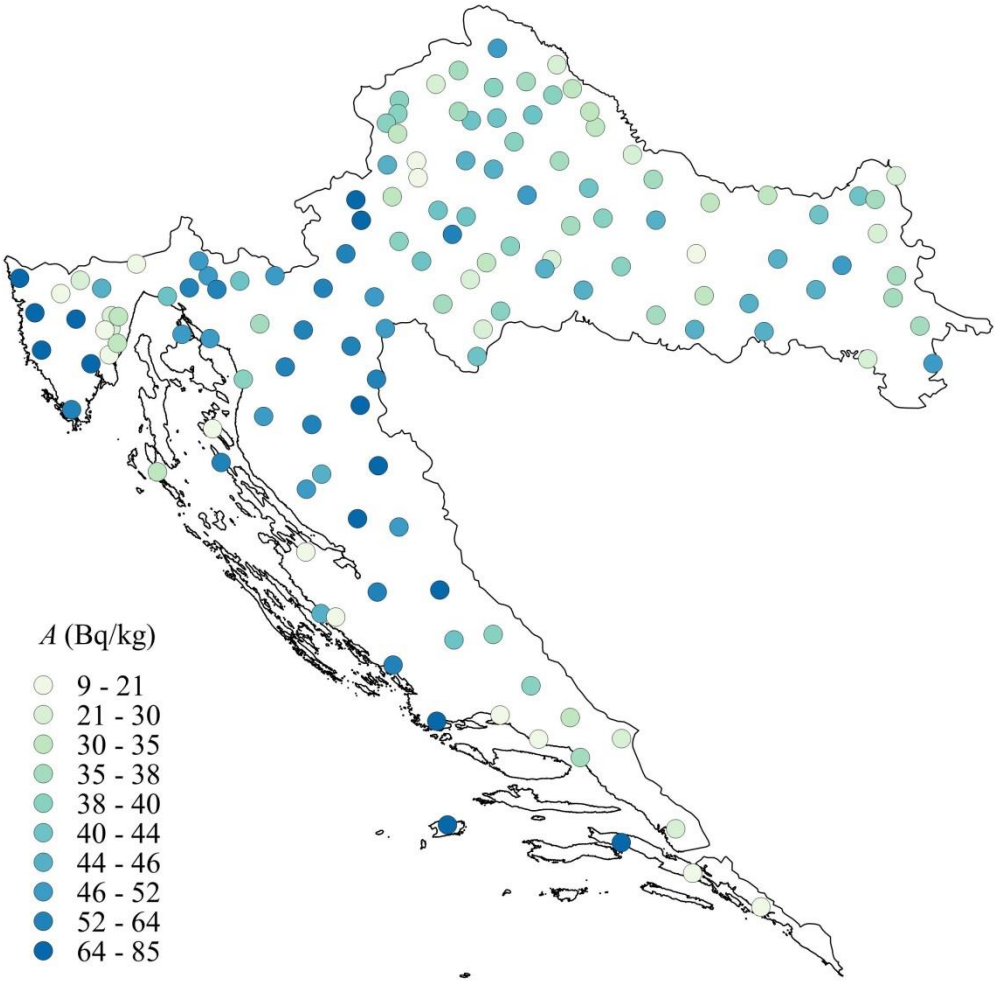
Na slici 5.4 prikazane su $A(^{210}Pb)$. Poprimaju vrijednosti od 0 do 288 Bq/kg, a srednja vrijednost iznosi 63,2 Bq/kg. Najveće vrijednosti mjerene su u uzorcima s područja planinske Hrvatske, ponajviše na području Gorskog Kotara. Također, na određenim lokacijama uz more (Istra, Baška Voda i Pelješac) i u panonskom dijelu Hrvatske (Sljeme, Žumberak, Papuk, Zrin i Križevci) mjerene su veće vrijednosti. Općenito, kao i u slučaju ^{238}U i ^{226}Ra, može se vidjeti blagi trend većih $A(^{210}Pb)$ na lokacijama na kojima su matični supstrati dolomit, vapnenac i reliktna crvenica, što je dijelom i posljedica veće A prethodnika iz niza, tj. veće $A(^{226}Ra)$ i $A(^{238}U)$ (slika 2.1). Osim povezanosti s matičnim supstratom tla i količinom ^{226}Ra i ^{238}U u tlu, količina ^{210}Pb na određenoj lokaciji može biti posljedica i procesa vezanog uz ^{222}Rn koji nastaje raspadom ^{226}Ra (slika 2.1). ^{222}Rn se slabo kemijski veže u tlu, a s druge strane njegovo $T_{1/2}$ od 3,8 dana dovoljno je za njegov prolazak difuzijom iz dubljih slojeva tla u površinski sloj [77,81] i iz površinskog sloja u zrak [78,82]. Navedeni proces ima za posljedicu povećanje koncentracija ^{222}Rn u površinskom sloju tla i u zraku. Posljedično se povećaju i koncentracije potomaka ^{222}Rn u površinskom sloju tla i u zraku. Između ^{222}Rn i ^{210}Pb nalaze se radionuklidi s $T_{1/2}$ manjim od 30 minuta (slika 2.1), dok $T_{1/2}$ ^{210}Pb iznosi 22 godine. Zbog kratkog $T_{1/2}$ radionuklida između ^{226}Ra i ^{210}Pb, te dugog $T_{1/2}$ ^{210}Pb, u površinskom sloju tla i u zraku nakuplja se ^{210}Pb [83]. ^{210}Pb iz zraka nakuplja se na biljkama [84], a u konačnici opadanjem lišća i truljenjem biljnih ostataka završi u površinskom sloju tla. Iako možemo pretpostaviti da koncentracija ^{210}Pb u zraku ne varira značajno od lokacije do lokacije, nakupljanjem ^{210}Pb na biljkama ima za posljedicu i veće koncentracije ^{210}Pb na tlu na kojem raste više biljaka, zbog čega postoji korelacija između ^{210}Pb i organskog materijala u tlu [85]. Navedeni proces povećava količinu ^{210}Pb na lokacijama na kojima ima više biljaka, a posebno se to odnosi na područja na kojima rastu šume [83,86,87]. Lokacije sa slike 5.4 koje pokazuju povećanu $A(^{210}Pb)$ uglavnom se nalaze na mjestima s bujnom vegetacijom, što znači da se opaženi



Slika 5.4 Raspodjele koncentracija aktivnosti ^{210}Pb u tlu na području RH.

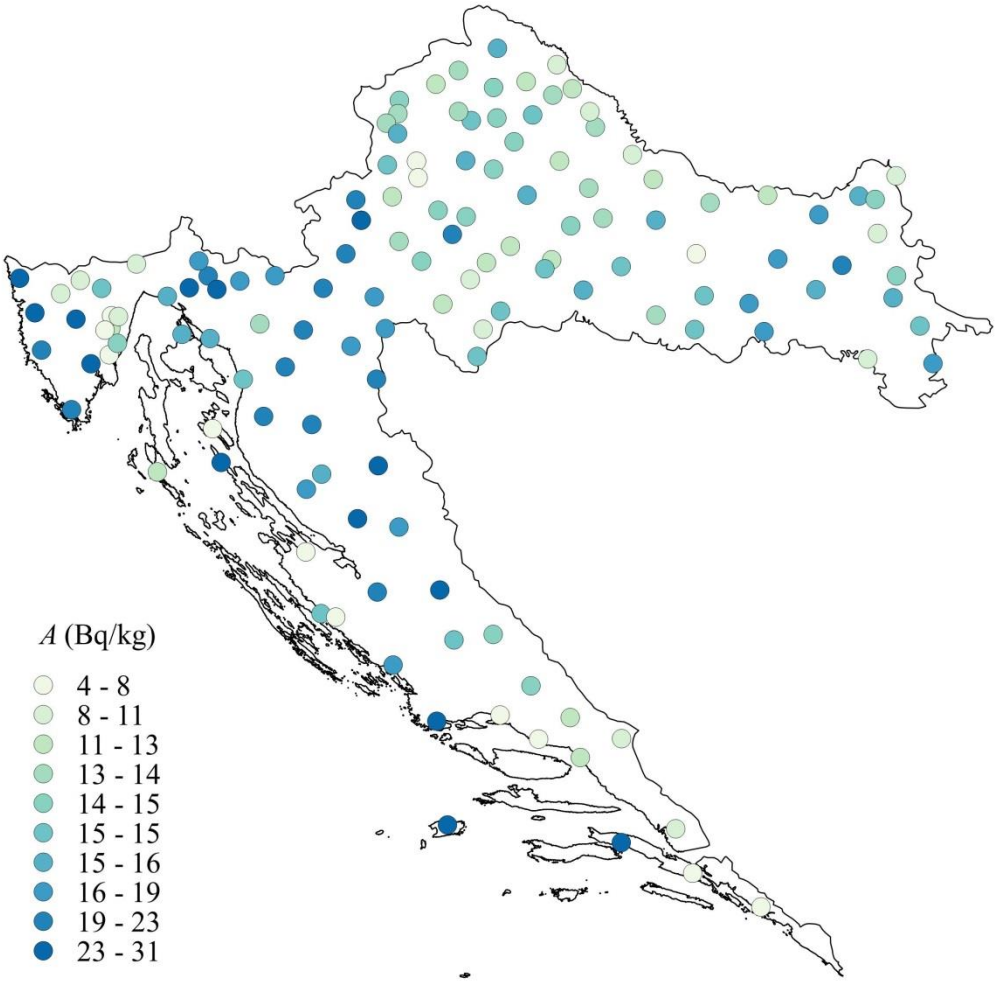
trendovi sa slike 5.4 mogu povezati i s gore opisanim procesom interakcije ^{210}Pb s biljkama. Osim opisanog procesa koji uključuje biljke, ^{210}Pb iz zraka na tlo dolazi oborinom [40] kao i zbog veće atomske mase od molekula zraka. Također, navedena srednja vrijednost A(^{210}Pb) veća je od navedene srednje vrijednosti A(^{226}Ra), što može biti posljedica difuzije ^{222}Rn u površinske slojeve tla, a i opisanih procesa koji uključuju biljke, oborinu i atomsku masu.

Na slici 5.5 prikazane su A(^{232}Th). Poprimaju vrijednosti od 9 do 85 Bq/kg, a srednja vrijednost iznosi 41 Bq/kg. Najveće vrijednosti mjerene su u uzorcima s područja planinske Hrvatske, zapadne Istre i na nekoliko mjesta uz more (Rogoznica, Vis i Orebić), dok su manje vrijednosti na području panonske Hrvatske, unutrašnjosti Istre, središnje i južne Dalmacije. Može se vidjeti trend povećanih A na područjima gdje je matični supstrat dolomit, vapnenac i reliktna crvenica. Također, može se primijetiti da je raspodjela A(^{232}Th) približno jednaka raspodjeli ^{238}U i da je srednja vrijednost A(^{232}Th) približno jednaka srednjoj vrijednosti A(^{238}U).



Slika 5.5 Raspodjele koncentracija aktivnosti ^{232}Th u tlu na području RH.

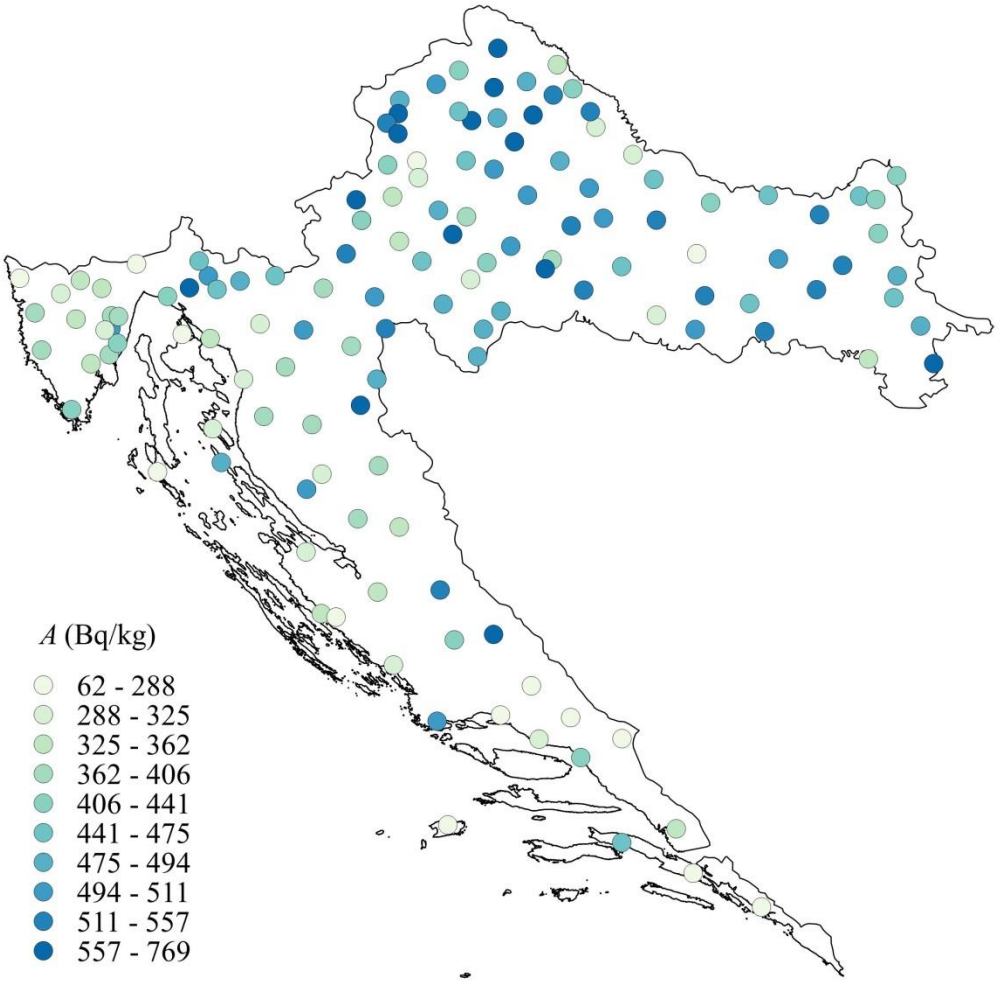
Na slici 5.6 prikazane su A(^{208}Tl) koji se nalazi na kraju niza ^{232}Th, a za prikaz je odabran kao dodatni pokazatelj niza ^{232}Th. A(^{208}Tl) poprimaju vrijednosti od 4 do 31 Bq/kg, a srednja vrijednost iznosi 14,7 Bq/kg. Raspodjela A(^{208}Tl) gotovo u potpuno slijedi raspodjelu A(^{232}Th), dok su same vrijednosti A(^{208}Tl) manje od vrijednosti A(^{232}Th). Iako se i u nizu ^{232}Th pojavljuje ^{220}Rn (slika 2.3), utjecaj difuzije ^{220}Rn na niz je zanemariv. ^{220}Rn zbog kratkog $T_{1/2}$ od 56 sekundi ne stigne difuzijom u tolikoj mjeri prolaziti kroz tlo i izlaziti iz tla u zrak [81], kao što je slučaj s nizom ^{238}U. U nizu se još pojavljuje i radij, i to u obliku ^{228}Ra s $T_{1/2}$ od 5,8 godina i u obliku ^{224}Ra s $T_{1/2}$ od 3,7 dana. Navedena vremena su relativno kratka za interakciju radija s površinskim slojevima tla i živim organizmima na tlu, što je kod niza ^{238}U izraženo baš zbog dugog $T_{1/2}$ ^{226}Ra. Također, i ostali radionuklidi iz niza ^{232}Th imaju relativno kratko $T_{1/2}$ (slika 2.3), zbog čega cijeli niz prati početnu raspodjelu A(^{232}Th), što i dokazuje raspodjela A(^{208}Tl) koji je uz ^{212}Po (slika 2.3) posljednji radionuklid u nizu. Približno jednake raspodjele ukazuju



Slika 5.6 Raspodjele koncentracija aktivnosti ^{208}Tl u tlu na području RH.

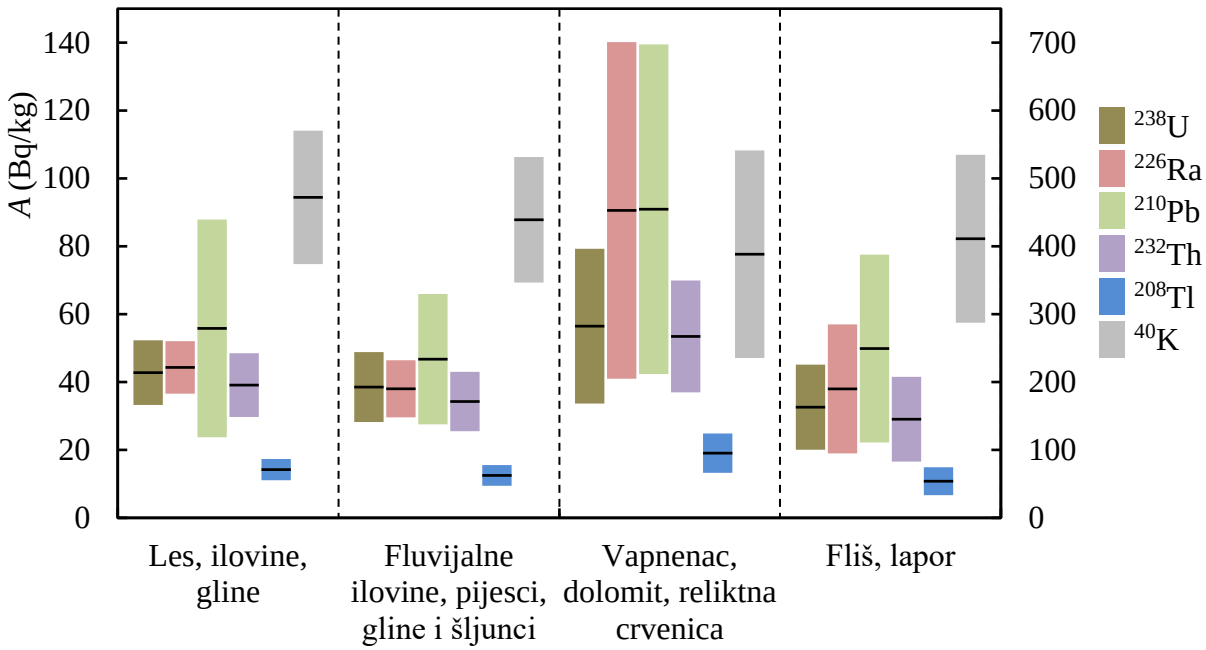
na činjenicu da određivanje A već jednog radionuklida iz niza ^{232}Th može dati približnu sliku o cijelom nizu.

Na slici 5.7 prikazane su $A(^{40}K)$. Poprimaju vrijednosti od 62 do 769 Bq/kg, a srednja vrijednost iznosi 423 Bq/kg. Sa slike se može vidjeti da se veće vrijednosti $A(^{40}K)$ nalaze na području cijele panonske Hrvatske i na nekoliko lokacija na području planinske Hrvatske (Gorski Kotar, Plitvice i okolica Knina). Na temelju usporedba sa slikom 5.1 može se zaključiti da su $A(^{40}K)$ veće na lokacijama gdje su matični supstrati les, pleistocenske ilovine, i fluvijalne ilovine, gline i pijesci. Prikazana raspodjela $A(^{40}K)$ na slici odgovara i raspodjeli ukupnog kalija, jer se u prirodi javljaju u konstantnom omjeru. ^{40}K na površini tla zajedno s kalijem koji nije radioaktivan ulazi u interakciju sa živim organizmima Kako organizmi u sebi održavaju konstantnu razinu kalija, i razina ^{40}K u organizmima je konstantna. U nedostatku kalija u tlu organizmi uzimaju kemijski slične elemente, tj. atome iz iste skupine periodnog sustava, što je slučaj s ^{137}Cs koji se može naći u okolišu. Zbog navedenog razloga, ^{40}K je još dodatno interpretiran u sljedećem odjeljku zajedno s ^{137}Cs.



Slika 5.7 Raspodjele koncentracija aktivnosti ^{40}K u tlu na području RH.

Općenito, usporedbom slika koje prikazuju raspodjelu A PP radionuklida sa slikom 5.1 koja prikazuje matični supstrat tla na području RH mogu se opaziti određeni trendovi. Slika 5.8 kvantitativno prikazuje povezanost A pojedinih radionuklida s matičnim supstratom tla. Uzorcima s jednakim matičnim supstratom izračunate su aritmetičke sredine A i pripadne standardne pogreške uzoraka za pojedini radionuklid. Prikazani su intervali vrijednosti A koji su konstruirani na način da sredinu intervala određuje aritmetička sredina (crna linija), a gornju i donju granicu standardna pogreška. Radionuklidi su na slici označeni različitim bojama. Vrijednosti A(^{40}K) nekoliko puta su veće od vrijednosti A radionuklida iz nizova, pa se zbog bolje preglednosti prikaza desna vertikalna skala odnosi na ^{40}K, a lijeva na radionuklide iz nizova. Promatranjem srednjih vrijednosti i promatranjem cijelih intervala može se uočiti da je povećana A radionuklida iz nizova u uzorcima koji su uzorkovani na lokacijama gdje su matični



Slika 5.8 Prikaz koncentracija aktivnosti pomoću aritmetičkih sredina i standardnih pogrešaka uzoraka u ovisnosti o matičnom supstratu tla. Lijeva vertikalna skala odnosi se na koncentracije aktivnosti ^{238}U, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{232}Th i ^{208}Tl, a desna na koncentracije aktivnosti ^{40}K.

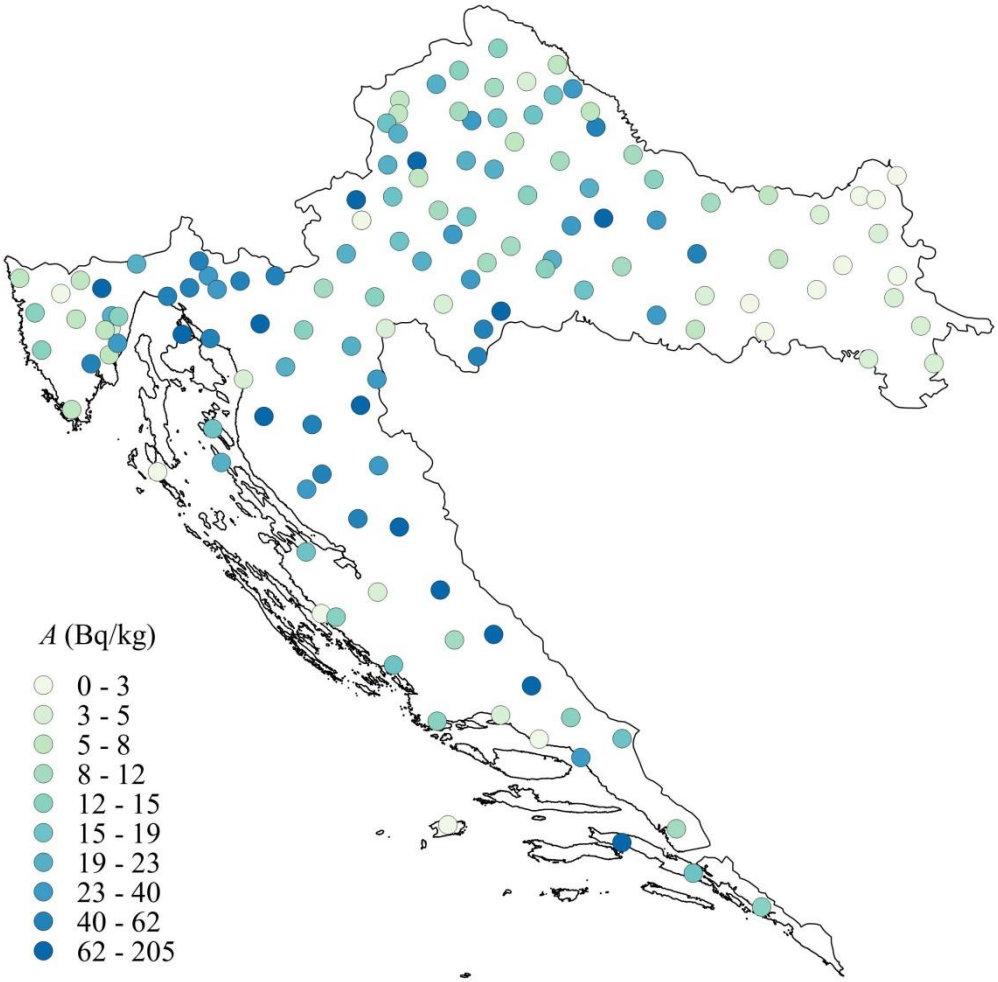
supstrati vapnenac, dolomit ili reliktna crvenica. Također, može se uočiti da je to povećanje izraženije kod ^{226}Ra i ^{210}Pb. Promatranjem ^{40}K na jednak način, može se uočiti blago povećanje A u uzorcima koji su uzorkovani na lokacijama gdje su matični supstrati les, ilovine i gline, te fluvijalne ilovine, pijesci, gline i šljunci. Također, neovisno o matičnom supstratu tla, jasno se vidi sa slike kako su A(^{226}Ra) više od A(^{238}U) i A(^{210}Pb) više ili jednake od A(^{226}Ra). Promatranjem niza ^{238}U, bez uzimanja u obzir utjecaja fizikalnih svojstava okoliša na radionuklide, poredak A navedenih radionuklida trebao bi biti suprotan ili bi njihove A najviše mogle biti jednake. Kod ^{226}Ra uzrok opaženom efektu je sposobnost ^{226}Ra da više od ^{238}U ulazi u kemijske i biološke procese koji se događaju u površinskim slojevima i na površini tla. Iskazano na drugi način, ^{226}Ra bude privučen na površinu tla. Kod ^{210}Pb razlog opaženom efektu jesu činjenice da se u nizu ^{238}U između ^{226}Ra i ^{210}Pb nalazi ^{222}Rn i da je njegovo $T_{1/2}$ dovoljno dugo za difuziju prema površini tla [81]. Ukupno, opaženi efekt može biti posljedica veće difuzije ^{222}Rn prema površini, ali i prethodno navedenih procesa koji uključuju biljke, oborine i atomsku masu ^{210}Pb, te ^{222}Rn u zraka. Povećanje A u odnosu na ^{226}Ra posljedica je jednog od navedenih procesa ili nekoliko procesa zajedno. Slika 5.8 pokazuje da su za tla svih matičnih supstrata (osim vapnenca, dolomita i reliktne crvenice) srednje vrijednosti i pripadni intervali A(^{210}Pb) veći od srednjih vrijednosti i pripadnih intervala A(^{226}Ra), što upućuje na slabiju difuziju ^{222}Rn u tlima kojima su matični supstrati vapnenac, dolomit i reliktna crvenica. U nizu

^{232}Th nema povećanja A(^{208}Tl) u odnosu na A(^{232}Th), što je potvrda da radionuklidi iz niza ne ulaze značajno u kemijske i biološke procese u površinskim slojevima tla i na površini tla, tj. da na niz raspada ne utječu procesi vezani uz ^{228}Ra, ^{224}Ra i ^{220}Rn. Također, potrebno je napomenuti da navedene zaključke podupire velik broj uzoraka koji su mjereni, a navedeni rezultati ne mogu biti posljedica lokalnih anomalija koje se mogu istaknuti pri mjerenju malog broja uzoraka.

5.2.2. Koncentracije aktivnosti ^{137}Cs

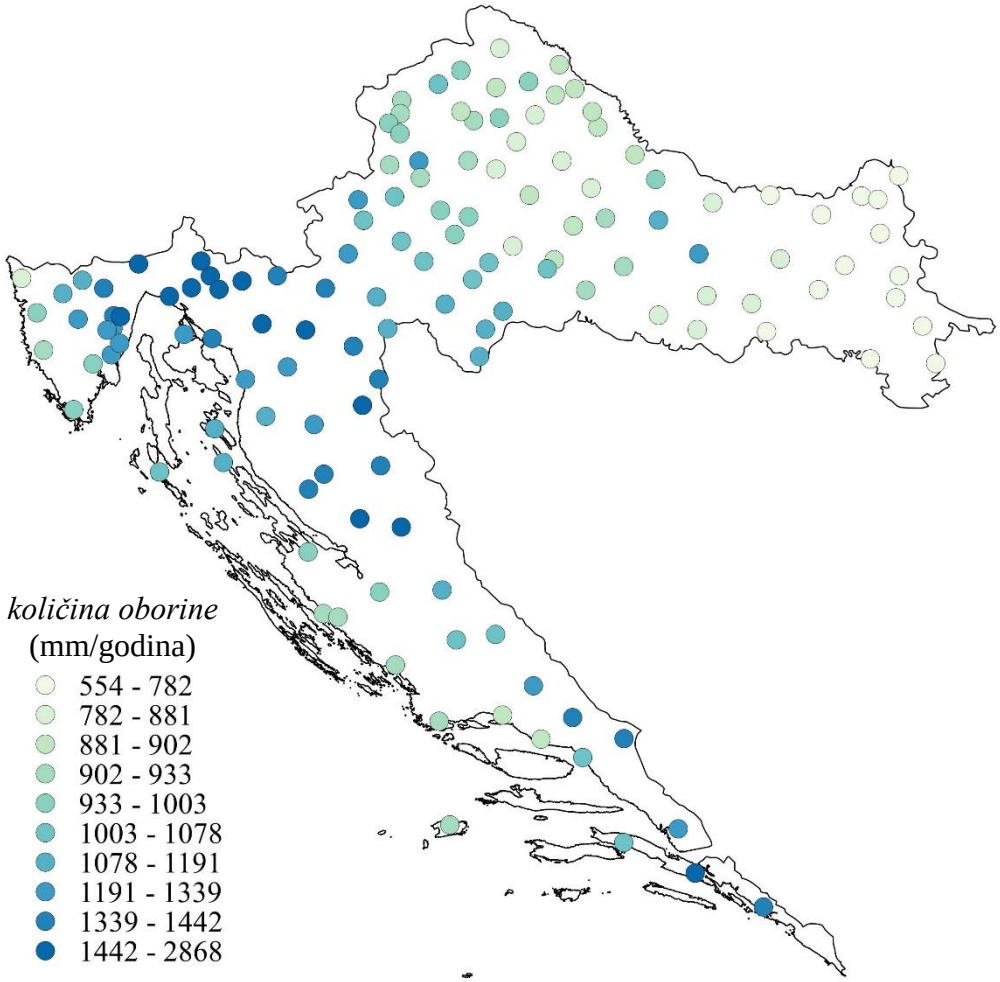
^{137}Cs je antropogeni radionuklid koji je u okoliš ispušten ili pokusima nuklearnog oružja ili akcidentima u nuklearnim elektranama (tablica 2.2). Najveći dio ^{137}Cs koji se nalazi na području RH došao je iz nuklearne elektrane Černobil kroz nekoliko mjeseci nakon akcidenta 1986. godine [15]. Ostatak ^{137}Cs koji se nalazi na području RH uglavnom je posljedica nuklearnih atmosferskih pokusa, koji je prvotno završio u višim slojevima atmosfere, a nakon toga kroz desetke godina padao na tlo. Manji dio ^{137}Cs došao je na područje RH nakon akcidenta u Fukushimi [10]. ^{137}Cs je najčešći antropogeni radionuklid koji se nalazi u okolišu na području RH, a ostali radionuklidi (osim ^{90}Sr koji je mjeren u vrlo malim količinama) nisu opaženi u mjerenjima provedenim u svrhu ove disertacije. S obzirom na $T_{1/2}$ od 30 godina, tek se raspalo oko pola ^{137}Cs koji je došao iz Černobila, a taj ^{137}Cs čini najveći dio koji se nalazi na području RH. ^{137}Cs zajedno s PP radionuklidima čini ukupni doprinos zračenju od okolišnih radionuklida. Kako su čovjek i ostali živi organizmi evoluirali samo s PP skupinom radionuklida, ^{137}Cs čini dodatak koji na njih predstavlja dodatno radiološko opterećenje. Mjerene vrijednosti A ^{137}Cs i ostali mjereni, izračunati i preuzeti parametri vezani uz ^{137}Cs navedeni su u prilogu D.

Na slici 5.9 prikazane su A(^{137}Cs) na jednak način na koji su prikazane i A PP radionuklida. A(^{137}Cs) poprimaju vrijednosti od 0 do 205 Bq/kg, a srednja vrijednost iznosi 25,4 Bq/kg. Sa slike se može vidjeti da se veće A(^{137}Cs) nalaze na područjima Gorskog Kotara, Like, Dalmatinskog zaleđa i na određenim lokacijama u panonskom dijelu Hrvatske (Sljeme, Žumberak, Papuk, Dvor, Zrin, Hrvatska Kostajnica i Veliki Zdenci). Iznimno niske A(^{137}Cs) nalaze se na području Slavonije. Srednja vrijednost A(^{137}Cs) za područje Gorskog Kotara, Like i Dalmatinskog zaleđa iznosi 71 Bq/kg, dok za područje Slavonije (istočno od Papuka) iznosi 3,7 Bq/kg, što je značajna razlika. Za objašnjenje raspodjele A potrebno je razmotriti nekoliko mogućih utjecaja. Kako je ^{137}Cs na područje RH došao zrakom (ispuštanja na području RH nisu



Slika 5.9 Raspodjele koncentracija aktivnosti ^{137}Cs u tlu na području RH.

zabilježena), za očekivati je da najveći utjecaj imaju atmosferske pojave. Zbog male površine koju pokriva RH razumno je pretpostaviti da su zračne mase u kojima se nalazio ^{137}Cs iz Černobila prolaskom iznad cijelog područja RH imale približno jednaku koncentraciju ^{137}Cs. Ako su i postojala lokalna odstupanja, taj se utjecaj s vremenom od nekoliko mjeseci poništio. Također, i ^{137}Cs koji se zadržao u višim slojevima atmosfere jednoliko je raspoređen iznad RH. Za malo područje koje zauzima RH, udaljenost od Černobila nije mogla utjecati na raspodjelu A(^{137}Cs), što i potvrđuju ova mjerenja (npr. u bližoj Slavoniji mjerene su manje A(^{137}Cs) nego u udaljenijem Gorskom Kotaru). Razumno je pretpostaviti da bi količina oborine, koja razne atmosferske čestice donosi na tlo, mogla utjecati na raspodjelu A(^{137}Cs). U tu svrhu je na slici 5.10 prikazana godišnja količina oborine na lokacijama na kojima su uzeti uzorci. Dostupni podaci o količini oborine preuzeti su s internet stranice Državnog hidrometeorološkog zavoda (DHMZ). Preuzeti su mjesečni podaci o oborini za razdoblje od 2009. do 2016. godine za 160 mjernih postaja na kojima se mjeri oborina. Za svaku postaju su mjesečni podaci zbrojeni u godišnju količinu oborine i izračunat je prosjek za razdoblje od navedenih 8 godina. Svakoj



Slika 5.10 Godišnja količina oborine na lokacijama na kojima su uzeti uzorci tla. Podaci o oborini preuzeti su s internet stranice www.meteo.hr.

lokaciji na kojoj je uzet uzorak tla pridružen je podatak o količini oborine od najbliže mjerne postaje. Pretpostavljeno je da je godišnja količina oborina u razdoblju nakon Černobilske nesreće bila približno jednaka dobivenoj prosječnoj godišnjoj količini za razdoblje od 2009. do 2016. godine. Također, pretpostavlja se da se i raspodjela količine oborine nije značajno promijenila od tog razdoblja, što je i važnije za ovo razmatranje. Usporedbom slika 5.9 i 5.10 vrlo jasno se vidi podudaranje, tj. vidi se veća $A(^{137}Cs)$ na lokacijama gdje padne veća količina oborine. Čak i izdvojene lokacije poput Sljemena, Žumberka, Papuka, Dvora, Zrina i Hrvatske Kostajnice pokazuju dobro slaganje. Iako je navedeno slaganje između raspodjele $A(^{137}Cs)$ i raspodjele količine oborine vrlo dobro, slaganje između samih vrijednosti $A(^{137}Cs)$ i količine oborine treba dodatno razmotriti. Kod utjecaja oborine na $A(^{137}Cs)$ najviše što se može pretpostaviti je rastuću funkciju ovisnosti između $A(^{137}Cs)$ i količine oborine. Varijacije u $A(^{137}Cs)$ na području središnje Hrvatske i vrijednosti $A(^{137}Cs)$ malo iznad 0 Bq/kg na području Slavonije, teško se mogu uklopiti u model koji uključuje samo oborinu kao parametar o kojem

ovisi $A(^{137}\mathrm{Cs})$. Navedeno razmatranje upućuje da konačnim zaključcima treba pristupiti s određenim oprezom, tj. potrebno je razmotriti i druge parametre koji mogu utjecati na $A(^{137}\mathrm{Cs})$. S raspodjelom na slici 5.9 mogla bi se povezati i nadmorska visina. Planine više zadržavaju zračne mase od nizina i ravnica. S duljim zadržavanjem zračnih masa nad nekim područjem više će se sitnih čestica, ujedno i $^{137}\mathrm{Cs}$, i bez oborine spustiti na tlo. Poznata je i činjenica da se $^{137}\mathrm{Cs}$ iz zraka zadržava na lišću biljaka, a opadanjem lišća i odumiranjem biljaka dolazi na tlo [88]. Na lokacijama na kojima su mjerene više $A(^{137}\mathrm{Cs})$ uglavnom se nalaze šume i bujnija vegetacija (Gorski Kotar, Lika, Sljeme, Žumberak, Papuk), zbog čega se može zaključiti da i vegetacija može biti parametar o kojem ovisi $A(^{137}\mathrm{Cs})$ [89,90]. Također, bitna je i sposobnost tla da zadrži $^{137}\mathrm{Cs}$ u površinskim slojevima kroz dulje vrijeme. U svrhu razmatranja zadržavanja $^{137}\mathrm{Cs}$ u površinskim slojevima tla potrebno je razmotriti parametre kao što su poroznost i tekstura tla, što nije provedeno u svrhu izrade ove disertacije[30]. Iako je površina RH relativno mala, na raspodjelu $A(^{137}\mathrm{Cs})$ vjerojatno utječu i atmosferske prilike u vremenu neposredno nakon Černobilske nesreće kad je velik dio $^{137}\mathrm{Cs}$ došao nad područje RH. Ukupno gledano, količina oborine sigurno bitno utječe na $A(^{137}\mathrm{Cs})$ u tlu, ali potrebno je razmotriti i druge parametre čiji utjecaj sigurno nije zanemariv. Kombinacija vrlo malog područja[31] RH i relativno velikih reljefnih i klimatskih razlika na tako malom području čini RH odličnim poligonom za istraživanja utjecaja raznih parametara na raspodjelu $^{137}\mathrm{Cs}$ i ostalih antropogenih radionuklida u slučaju većih nuklearnih nesreća. Navedene činjenice daju dodatnu važnost provedenim mjerenjima koja mogu biti baza za daljnja istraživanja vezana uz zadržavanje $^{137}\mathrm{Cs}$ na određenom geografskom području s određenim reljefnim, pedološkim i klimatskim parametrima.

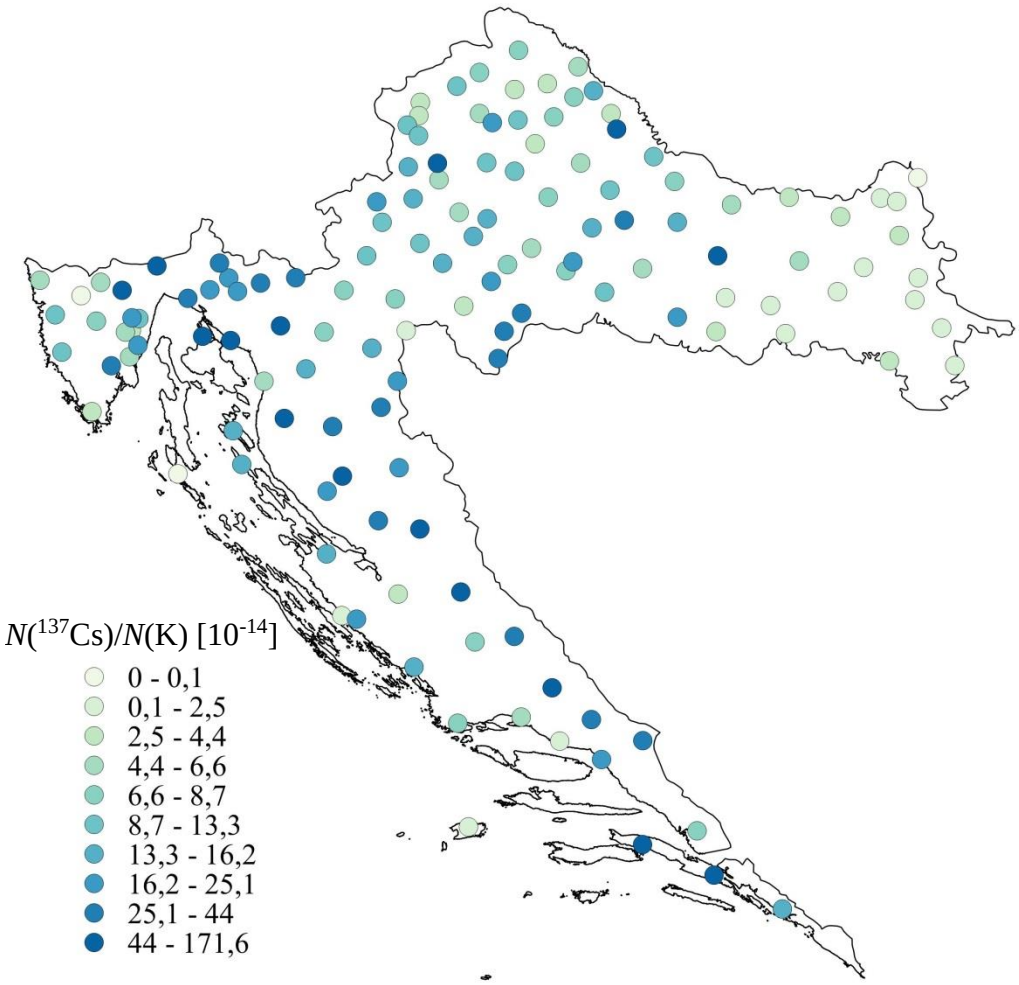
Kako je već navedeno, $^{137}\mathrm{Cs}$ se zbog svoje kemijske sličnosti s kalijem veže u živim organizmima na mjesto kalija. Također, u nedostatku kalija živi organizmi uzimaju elemente slične kaliju, pa tako i $^{137}\mathrm{Cs}$ [37]. Iskazano drugačije, o količini dostupnog kalija u tlu ovisi i ulazak $^{137}\mathrm{Cs}$ u biljke i daljnje hranidbene lance koji dolaze do čovjeka. U tu svrhu bitno je promotriti omjer broja atoma $^{137}\mathrm{Cs}$ i broja atoma kalija. Iz mjerenih $A(^{137}\mathrm{Cs})$ i $A(^{40}\mathrm{K})$ izračuna se $N(^{137}\mathrm{Cs})/N(\mathrm{K})$, tj. vrijedi

$$\frac{N(^{137}\mathrm{Cs})}{N(\mathrm{K})} = 2{,}8210^{-12}\,\frac{A(^{137}\mathrm{Cs})}{A(^{40}\mathrm{K})}. \tag{5.1}$$

[30] Smjernica za buduća istraživanja.

[31] Malo područje na kojem se provodi istraživanje utjecaja raznih parametara na raspodjelu antropogenih radionuklida eliminira iz istraživanja parametar udaljenosti od izvora ispuštanja radionuklida.

Više ^{137}Cs u odnosu na kalij za rezultat ima pospješenje ulaska ^{137}Cs u biljke i hranidbene lance. Na slici 5.11 prikazan je za svaku lokaciju $N(^{137}\mathrm{Cs})/N(\mathrm{K})$. Dobivena raspodjela na slici ne razlikuje se značajno od raspodjele $A(^{137}\mathrm{Cs})$ na slici 5.10. Razlog tome je mala varijabilnost u $A(^{40}\mathrm{K})$ na području RH. Potrebno je naglasiti da su iznosi $N(^{137}\mathrm{Cs})/N(\mathrm{K})$ veći na području Gorskog Kotara, Like i Dalmatinskog zaleđa, gdje su više $A(^{137}\mathrm{Cs})$, a ujedno i niže $A(^{40}\mathrm{K})$ (prilog D).



Slika 5.11 Omjer količine ^{137}Cs i kalija u tlu na području RH.

5.2.3. Koncentracije aktivnosti ^{90}Sr

^{90}Sr je antropogeni radionuklid čija je prisutnost na području RH uglavnom posljedica atmosferskih pokusa s nuklearnim oružjem (najviše početkom 60-tih godina), a manjim je dijelom posljedica nuklearne nesreće u Černobilu (tablica 2.2). Zbog zadržavanja u višim

slojevima atmosfere i $T_{1/2}$ od 28,8 godina, sve do danas se u malim količinama spušta na tlo. Opasnost od ^{90}Sr proizlazi iz kemijske sličnosti s kalcijem (druga skupina u periodnom sustavu). Iz tla ulazi u biljke i hranidbene lance. Također, na biljke može doći i direktno iz zraka. Kod životinja i kod čovjeka se zbog sličnosti s kalcijem veže u kosti zbog čega mu T_{bio} iznosi 50 godina (tablica 3.3). U svrhu disertacije ^{90}Sr je mjeren u 6 uzoraka tla, a lokacije uzorkovanja su odabrane tako da se uključe sve tri regije RH. U tablici 5.1 navedene su mjerene vrijednosti A(^{90}Sr) s pripadajućim lokacijama. Prema navedenim nazivima lokacija mogu se iščitati pripadajuće koordinate koje su navedene u prilogu A. Gledano prema regijama, A(^{90}Sr) su veće na području planinske Hrvatske (Gospić i Sveti Rok), a na ostalim lokacijama manje. Veće vrijednosti A(^{90}Sr) se mogu, kao i u slučaju ^{137}Cs, povezati s većom količinom oborina na području planinske Hrvatske. Općenito se može zaključiti da su mjerene A(^{90}Sr) vrlo male, tj. da je utjecaj ^{90}Sr na području RH zanemariv.

Tablica 5.1 Koncentracije aktivnosti ^{90}Sr na odabranim lokacijama.

Lokacija	Gospić	Osijek	Potok	Rugvica	Sveti Rok	Vrana
A (Bq/kg)	1,7 ± 0,2	0,4 ± 0,1	0,5 ± 0,1	0,6 ± 0,1	3,9 ± 0,2	0,5 ± 0,1

5.3. Određivanje brzina apsorbiranih doza

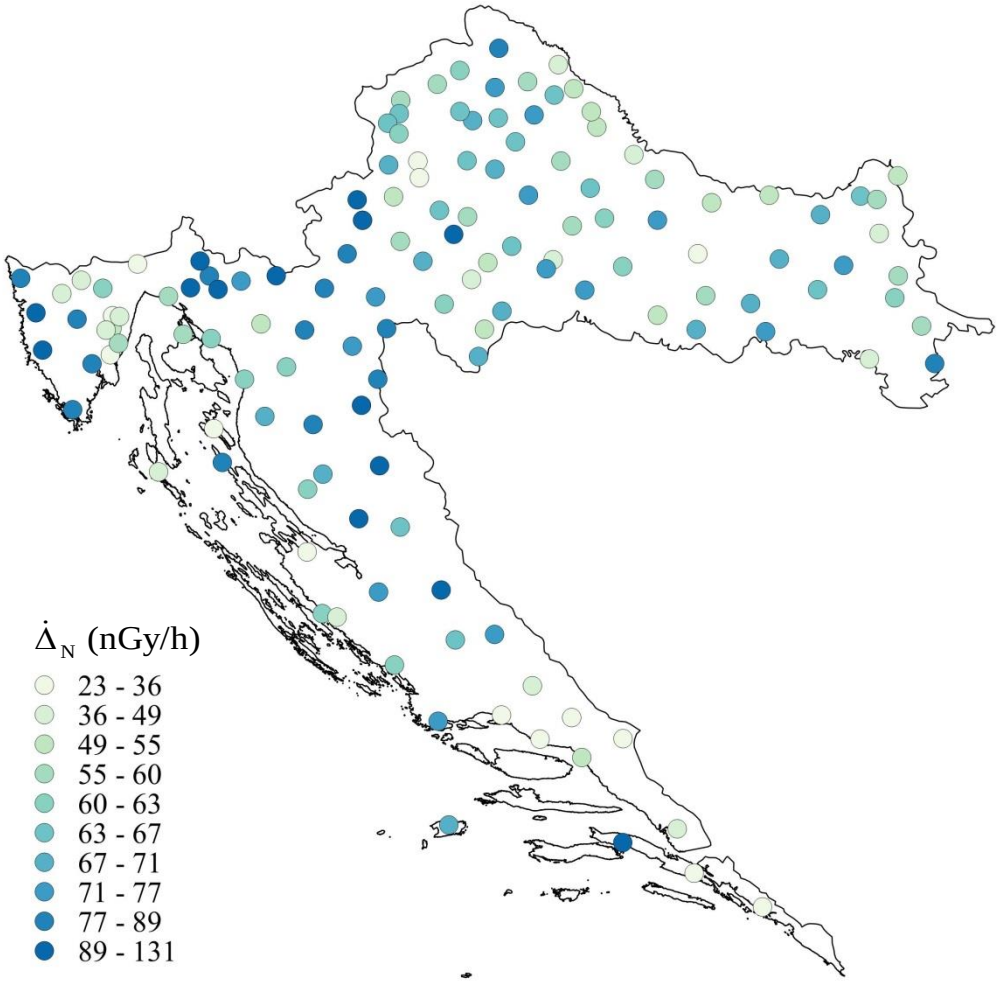
Kako bi se kvantificirao utjecaj vanjskog ozračivanja fotonima koji dolaze od radionuklida iz tla izračunate su brzine apsorbiranih doza $\dot{\Delta}$. Veličina $\dot{\Delta}$ govori nam koliku energiju fotoni predaju materijalu mase 1 kg u nekom vremenskom intervalu. Potrebno je naglasiti da $\dot{\Delta}$ ništa ne govori o daleko kompleksnijem utjecaju radionuklida unesenih u organizam hranom i disanjem. Kako je u uzorcima tla osim PP radionuklida opažen samo ^{137}Cs (^{90}Sr nije γ emiter, a i njegove A su zanemarive), ukupna $\dot{\Delta}$ može se podijeliti na $\dot{\Delta}_N$ koja dolazi od PP radionuklida i na $\dot{\Delta}_{Cs}$ koja dolazi od ^{137}Cs. $\dot{\Delta}_{Cs}$ prikazana je zasebno iz razloga da bi se naglasio utjecaj dodatnog zračenja kojem se čovjek nije prilagodio kroz svoju biološku evoluciju. Također, prikazana je i ukupna $\dot{\Delta}$. Jednako kao u slučaju prikaza raspodjela A na području RH, $\dot{\Delta}_N$, $\dot{\Delta}_{Cs}$ i $\dot{\Delta}$ prikazane su paletom boja na mapi RH. Ponovno tamnije boje prikazuju više vrijednosti, a svjetlije niže vrijednosti. Konkretne vrijednosti $\dot{\Delta}_N$, $\dot{\Delta}_{Cs}$ i $\dot{\Delta}$ za svaku pojedinu lokaciju navedene su u prilogu E.

5.3.1. Brzine apsorbiranih doza od radionuklida prirodne pojavnosti

$\dot{\Delta}_N$ dolazi od fotona iz tla koje emitiraju svi radionuklidi iz nizova ^{238}U, ^{235}U i ^{232}Th, te od ^{40}K. $\dot{\Delta}_N$ izračuna se množenjem A (izraženih u Bq/kg) navedenih radionuklida faktorima dobivenim kombiniranjem numeričkih izračuna i empirijskih podataka, tj. jednadžbom [91,92]

$$\dot{\Delta}_N = 0{,}0417A(^{40}\mathrm{K}) + 0{,}463A(^{238}\mathrm{U}) + 0{,}604A(^{232}\mathrm{Th})\,. \qquad (5.2)$$

Jednadžba 5.2 vrijedi za homogenu distribuciju radionuklida u tlu, a navedeni faktori daju vrijednost $\dot{\Delta}_N$ na 1 m iznad tla izraženu u nGy/h. Iz jednadžbe se vidi da je faktor ispred $A(^{40}\mathrm{K})$ desetak puta manji od faktora ispred $A(^{238}\mathrm{U})$ i $A(^{232}\mathrm{Th})$, što je i očekivano zbog više od deset raspada u svakom nizu i većeg broja emitiranih fotona kod određenih raspada u nizovima. Kad se $\dot{\Delta}_N$ izračuna za sve mjerene uzorke dobije se raspodjela $\dot{\Delta}_N$ za područje RH koja je prikazana na slici 5.12. $\dot{\Delta}_N$ poprimaju vrijednosti od 23 do 131 nGy/h, a srednja vrijednost iznosi 63,1 nGy/h. Sa slike se može vidjeti da se veće vrijednosti $\dot{\Delta}_N$ nalaze na području Gorskog Kotara, Like, zapadne Istre, na prijelazu iz panonske u planinsku Hrvatsku, te na određenim lokacijama kao što su Žumberak, Lekenik i Orebić. Raspodjela sa slike je očekivana jer su na navedenim područjima mjerene i najveće $A(^{238}\mathrm{U})$ i $A(^{232}\mathrm{Th})$. Prikazanu raspodjelu na slici 5.12, kao i konkretne vrijednosti iz priloga E, treba promatrati kao procjenu stvarnih vrijednosti. Dobiveni rezultati ovise o modelu iz kojeg je dobivena jednadžba 5.2, a koji u obzir uzimaju sve radionuklide iz nizova raspada. Kao što je prikazano u prethodnom poglavlju, količina radionuklida iz nizova ovisi o vrsti tla i drugim okolišnim parametrima. Npr. mjerenja su pokazala u prosjeku veće vrijednosti $A(^{226}\mathrm{Ra})$ od $A(^{238}\mathrm{U})$ i veće vrijednosti $A(^{210}\mathrm{Pb})$ od $A(^{226}\mathrm{Ra})$, što nije očekivano kod nizova raspada.



Slika 5.12 Raspodjele brzina apsorbirane doze koje dolazi od PP radionuklida iz tla na području RH.

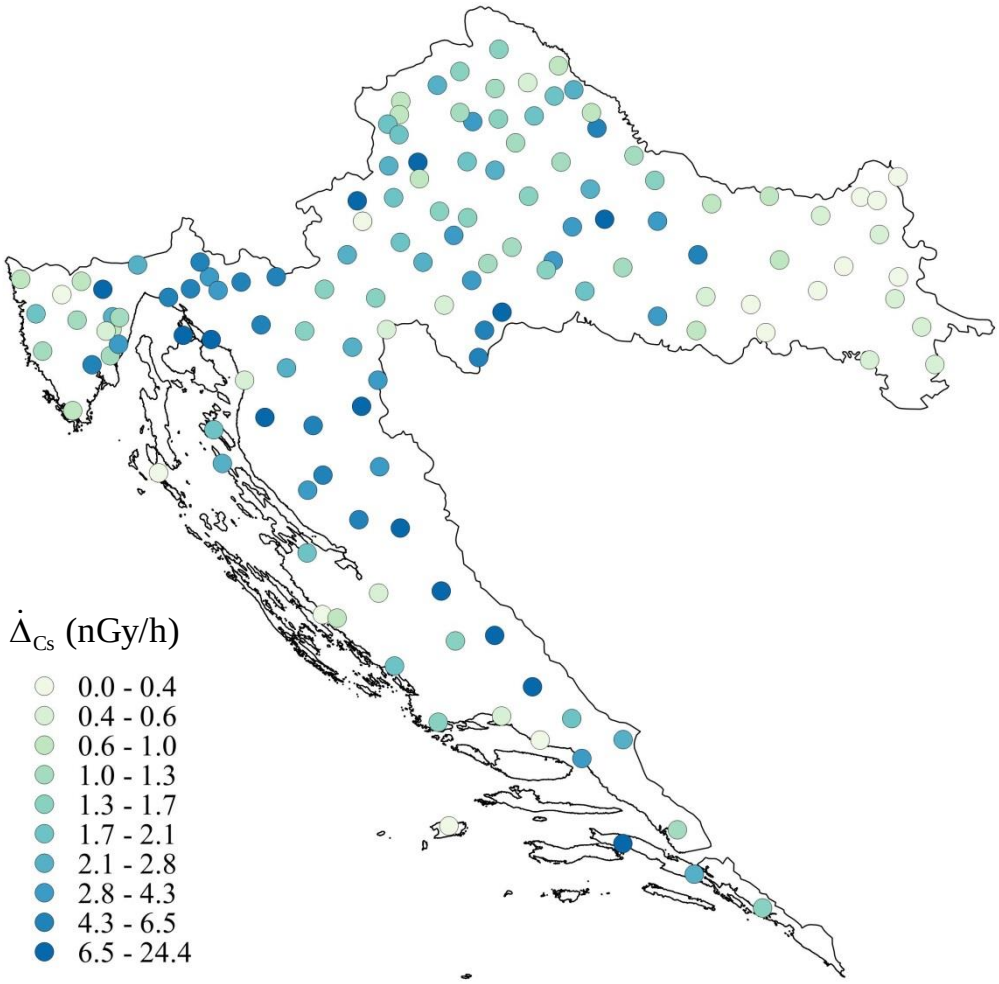
5.3.2. Brzine apsorbirana doza od ^{137}Cs

Za izračun $\dot{\Delta}_{Cs}$ korišteni su podaci numeričkih i empirijskih modela iz kojih proizlazi da površina tla na kojoj površinska gustoća aktivnosti ^{137}Cs iznosi 1 Bq/m^2, na visini od 1 m rezultira u $\dot{\Delta}_{Cs}$ od približno 10^{-3} nGy/h [93,94]. Da bi se mjerene $A(^{137}\text{Cs})$ iskoristile za opisani model potrebno je povezati $A(^{137}\text{Cs})$ izraženu u Bq/kg s površinskom gustoćom aktivnosti ^{137}Cs izraženom u Bq/m^2, tj. potrebno je načiniti određene aproksimacije. Uzorci tla uzeti su do dubine 10 cm. Ukupna aktivnost ^{137}Cs u sloju tla dubine 10 cm i površine 1 m^2 iznosi $V\rho A(^{137}\text{Cs}) = 0{,}1\,\text{m} \cdot 1\,\text{m}^2\,\rho A(^{137}\text{Cs})$, gdje je ρ gustoća tla. Aproksimativno se pretpostavlja da ukupna aktivnost ^{137}Cs navedenog sloja pridonosi $\dot{\Delta}_{Cs}$ koliko i jednaka aktivnost jednoliko raspodijeljena na površini tla od 1 m^2. Također, pretpostavlja se da doprinos $\dot{\Delta}_{Cs}$ dubljih slojeva tla zanemariv, dijelom zbog opadanja $A(^{137}\text{Cs})$ s dubinom [95,96], a dijelom zbog atenuacije

fotona. Zanemarivanje doprinosa $\dot{\Delta}_{Cs}$ od ^{137}Cs iz dubljih slojeva tla djelomično je kompenzirano zanemarivanjem atenuacije u površinskom sloju tla dubine 10 cm. Iz navedenih pretpostavki i aproksimacija slijedi

$$\dot{\Delta}_{Cs} \approx 10^{-3} \cdot 10^{-1} \cdot \rho \cdot A(^{137}\mathrm{Cs}), \tag{5.3}$$

gdje faktor 10^{-3} dolazi iz modela koji povezuju površinsku aktivnost (u Bq/m^2) s brzinom apsorbirane doze (u nGy/h), a faktor 10^{-1} predstavlja volumen površinskog sloja tla dubine 10 cm i površine 1 m^2. Raspodjela izračunatih vrijednosti $\dot{\Delta}_{Cs}$ za svaku lokaciju prikazana je na slici 5.13. $\dot{\Delta}_{Cs}$ poprimaju vrijednosti od 0 do 24 nGy/h, a srednja vrijednost iznosi 2,7 nGy/h. Može se vidjeti da raspodjela $\dot{\Delta}_{Cs}$ slijedi raspodjelu A ^{137}Cs sa slike 5.9, a gustoća tla je jedini faktor koji radi malu razliku između raspodjela. Uspoređujući srednje vrijednosti $\dot{\Delta}_{N}$ i $\dot{\Delta}_{Cs}$, vidi se da ^{137}Cs ima mali doprinos direktnom ozračivanju fotonima u usporedbi s PP radionuklidima. Jednako kao i kod $\dot{\Delta}_{N}$, dobivene vrijednosti $\dot{\Delta}_{Cs}$ treba promatrati kao procjenu

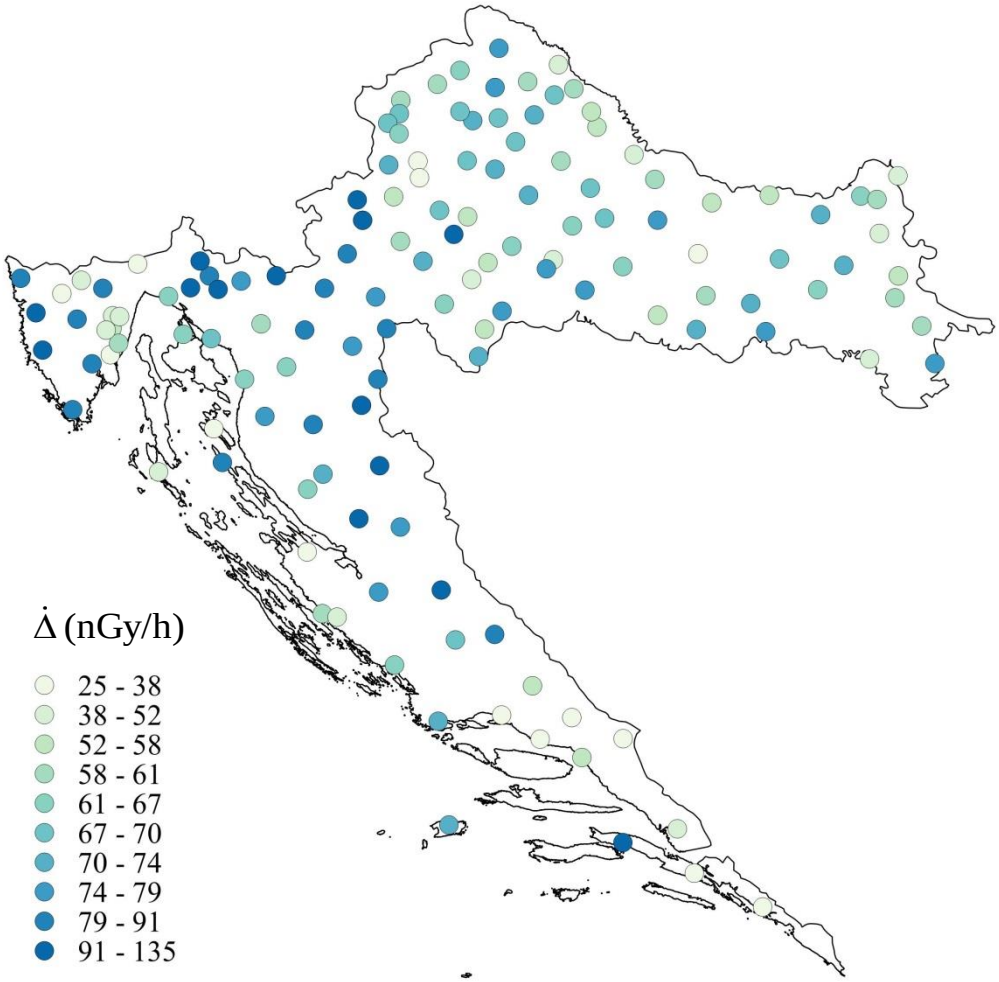


Slika 5.13 Raspodjele brzina apsorbirane doze koje dolazi od ^{137}Cs iz tla na području RH.

stvarnih vrijednosti, jer se izračun bazira na općenitom modelu koji ne obuhvaća sve okolišne parametre koji mogu značajno varirati od lokacije do lokacije.

5.3.3. Ukupna brzina apsorbirane doze

$\dot{\Delta}$ pokazuje ukupno ozračivanje fotonima koji su produkt raspada svih mjerenih radionuklida u tlu, tj. uključuje doprinos fotona nastalih raspadom radionuklida nizova ^{238}U, ^{232}Th i ^{235}U, te fotona nastalih raspadom ^{40}K i ^{137}Cs. Vrijednost $\dot{\Delta}$ izračunata je kao zbroj $\dot{\Delta}_N$ i $\dot{\Delta}_{Cs}$ danih jednadžbama (5.2) i (5.3). $\dot{\Delta}$ poprima vrijednosti od 25 do 135 nGy/h, a srednja vrijednost iznosi 65,8 nGy/h. Slika 5.14 prikazuje raspodjelu $\dot{\Delta}$ na području RH. Područja s najvišim $\dot{\Delta}$ nalaze se u Gorskom Kotaru, Lici i zapadnoj Istri. Relativno visoke $\dot{\Delta}$ na području

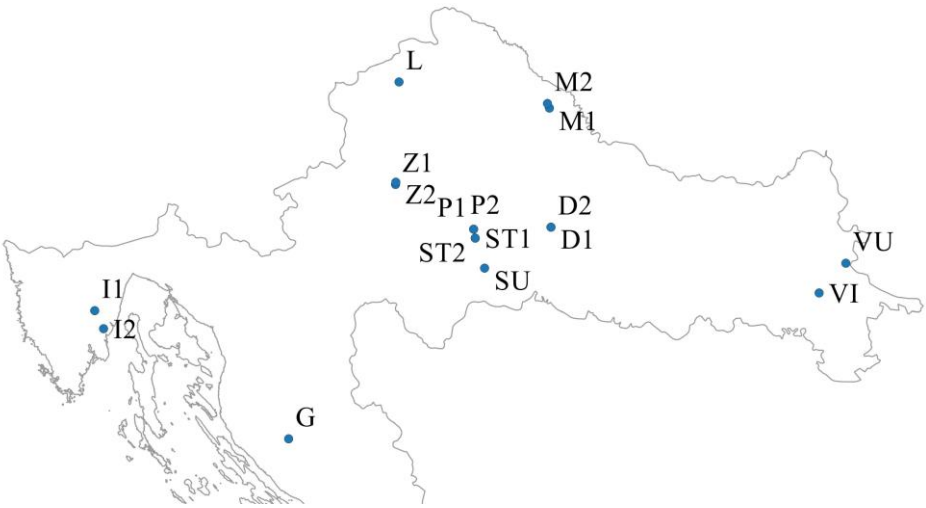


Slika 5.14 Raspodjele ukupnih brzina apsorbirane doze koje dolazi od radionuklida iz tla na području RH.

Gorskog Kotara i Like posljedica su visokih A i PP radionuklida i ^{137}Cs, dok su relativno visoke $\dot{\Delta}$ na području zapadne Istra uglavnom posljedica visokih A PP radionuklida. Pojedine lokacije kao što su Žumberak, Lekenik i Orebić također imaju relativno visoke $\dot{\Delta}$, Žumberak i zbog PP radionuklida i zbog ^{137}Cs, dok Orebić uglavnom zbog PP radionuklida.

5.4. Radiološka svojstva nekih poljoprivrednih tla u RH

Važnost promatranja radioloških svojstava poljoprivrednih tla proizlazi iz činjenice da se na takvim tlima uzgaja hrana koju konzumira čovjek, tj. to promatranje je prvi korak u istraživanju transfera radionuklida u hranidbene lance. Kao što se može vidjeti iz prethodnog poglavlja, utjecaj radionuklida putem vanjskog ozračivanja relativno je mali, a radionuklidi mogu biti daleko opasniji ako se nađu u tijelu čovjeka. U intenzivnoj poljoprivredi tla se dugi niz godina tretiraju raznim dodacima i mineralnim gnojivima za koje je poznato da sadrže visoke A PP radionuklida [97–99]. Mjereno je 17 uzoraka tla sa poljoprivrednih površina čije je obrađivanje i tretiranje bilo pod nadzorom Agronomskog fakulteta Sveučilišta u Zagrebu. Dodatno, mjeren je i jedan uzorak mineralnog gnojiva. Provedena mjerenja dio su preliminarnih istraživanja vezanih uz transfer radionuklida u biljke, tj. u hranidbene lance. Prednost promatranja spomenutih uzoraka čini poznavanje načina tretiranja, obrade i parametara tla, koji se mogu povezati s radiološkim svojstvima. Na slici 5.15 prikazane su lokacije, tj. poljoprivredne površine, na kojima su uzorkovani uzorci tla. Uz oznaku lokacije (crveni krug) navedeni su skraćeni nazivi lokacija (prema punom nazivu lokacije) koji se i nadalje navode u tekstu i na slikama. Puni nazivi lokacija, zajedno sa skraćenim nazivom i koordinatama



Slika 5.15 Lokacije poljoprivrednih površina na kojima su uzorkovani uzorci tla.

navedeni su u prilogu F. Na području Dalmacije nisu uzeti uzorci, pa područje nije prikazano na slici. Jedna od ideja ovog istraživanja je i pronalaženje parametara o kojim ovisi radioaktivnost tla. U tablici 5.2 navedeni su način korištenja, vrsta tretiranja, tekstura, poroznost i kapacitet apsorpcije vode za tla s navedenih lokacija. Tekstura govori kolika je veličina čestice od kojih je sastavljeno tlo. Najmanje čestice jesu čestice gline, s promjerom manjim od 2 μm. Zatim slijede čestice mulja s promjerom između 2 i 50 μm. Najveće su čestice pijeska, s promjerom većim od 50 μm. Poroznost tla η definira se kao udio praznog prostora u određenom volumenu tla. Kapacitet apsorpcije vode c definira se kao udio volumena u tlu koji može ispuniti voda. Obično tla koja sadrže više gline i mulja imaju i veći η i c, što se može vidjeti i iz tablice. Od mjerenih uzoraka tla određeni uzorci nisu potpuno okarakterizirani, pa za njih nisu u tablici navedeni svi parametri. Također, u tablici je navedeno za što je korišteno određeno tlo, je li obrađeno i s čime je tretirano. Supstance kojima se tretira tlo obično su mineralna gnojiva

Tablica 5.2 Korištenje, tretiranje i parametri tla.

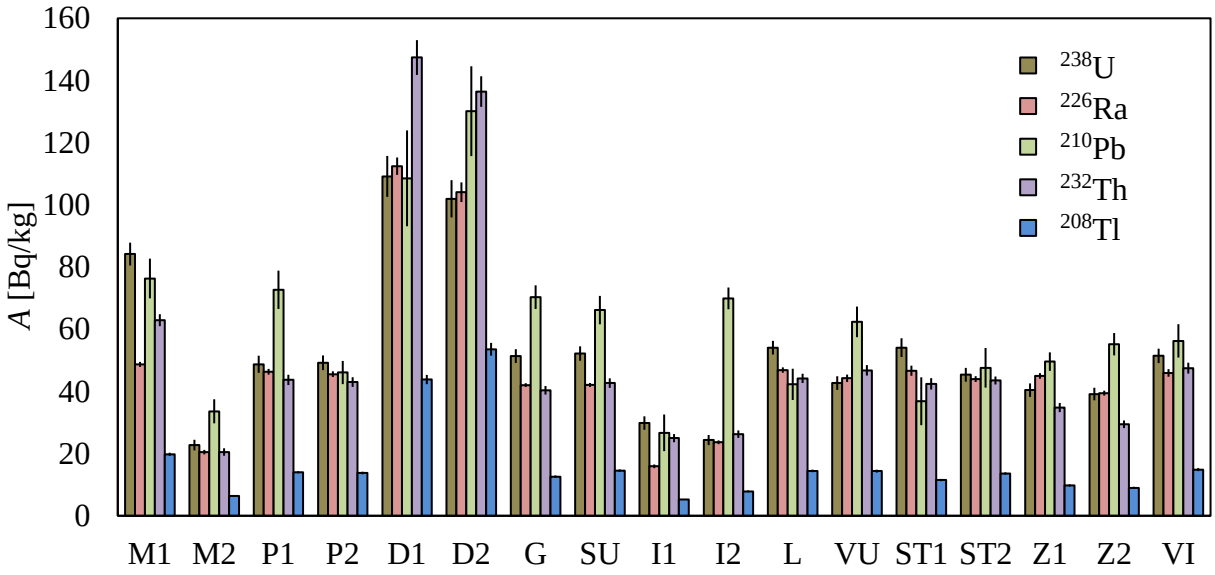
	Korištenje i tretiranje tla	Tekstura	η (%)	c (%)
M1	Livada, poljoprivredno	glina > 65 %	64	61
M2	Obrađeno, usjevi	pijesak > 80 %	44	34
P1	Konv. polj., obrađeno, usjevi, NPK	glina = 14 %, pijesak = 56 %, mulj = 30 %	44	40
P2	Konv. polj., obrađeno, usjevi, NPK + fosfogips	glina = 14 %, pijesak = 56 %, mulj = 30 %	44	40
D1	Konv. polj., obrađeno, usjevi	glina = 15 %, pijesak = 61 %, mulj = 24 %	41	38
D2	Konv. polj., bez obrade, usjevi	glina = 15 %, pijesak = 61 %, mulj = 24 %	41	38
G	Konv. polj., obrađeno, usjevi, NPK + organsko gnojivo + $CaCO_3$	glina = 35 %, pijesak = 44 %, mulj = 21 %	-	-
SU	Org. polj., obrađeno, organsko gnojivo	-	-	-
I1	Obrađeno, usjevi	-	-	-
I2	Livada	-	-	-
L	Konv. polj., obrađeno, usjevi, dolomit + NPK + UREA + KAN	-	-	-
VU	Konv. polj., obrađeno, usjevi, NPK	glina = 30 %, pijesak = 3 %, mulj = 67 %	42	42
ST1	Konv. polj., obrađeno, kontaminirano naftom	glina = 19 %, pijesak = 7 %, mulj = 74 %	-	-
ST2	Konv. polj., obrađeno, kontaminirano solidifikatom	glina = 19 %, pijesak = 7 %, mulj = 74 %	-	-
Z1	Konv. polj., obrađeno, usjevi	glina = 17 %, pijesak = 27 %, mulj = 58 %	-	-
Z2	Livada, poplavno područje	glina = 14 %, pijesak = 7 %, mulj = 74 %	-	-
VI	Konv. polj., obrađeno, usjevi, NPK	glina = 27 %, pijesak = 2 %, mulj = 71 %	-	-

Konv. polj. = konvencionalna poljoprivreda, Org. polj. = organska poljoprivreda, NPK = mineralno gnojivo koja sadrži dušik, fosfor i kalij, UREA = dušično mineralno gnojivo, KAN = dušično mineralno gnojivo

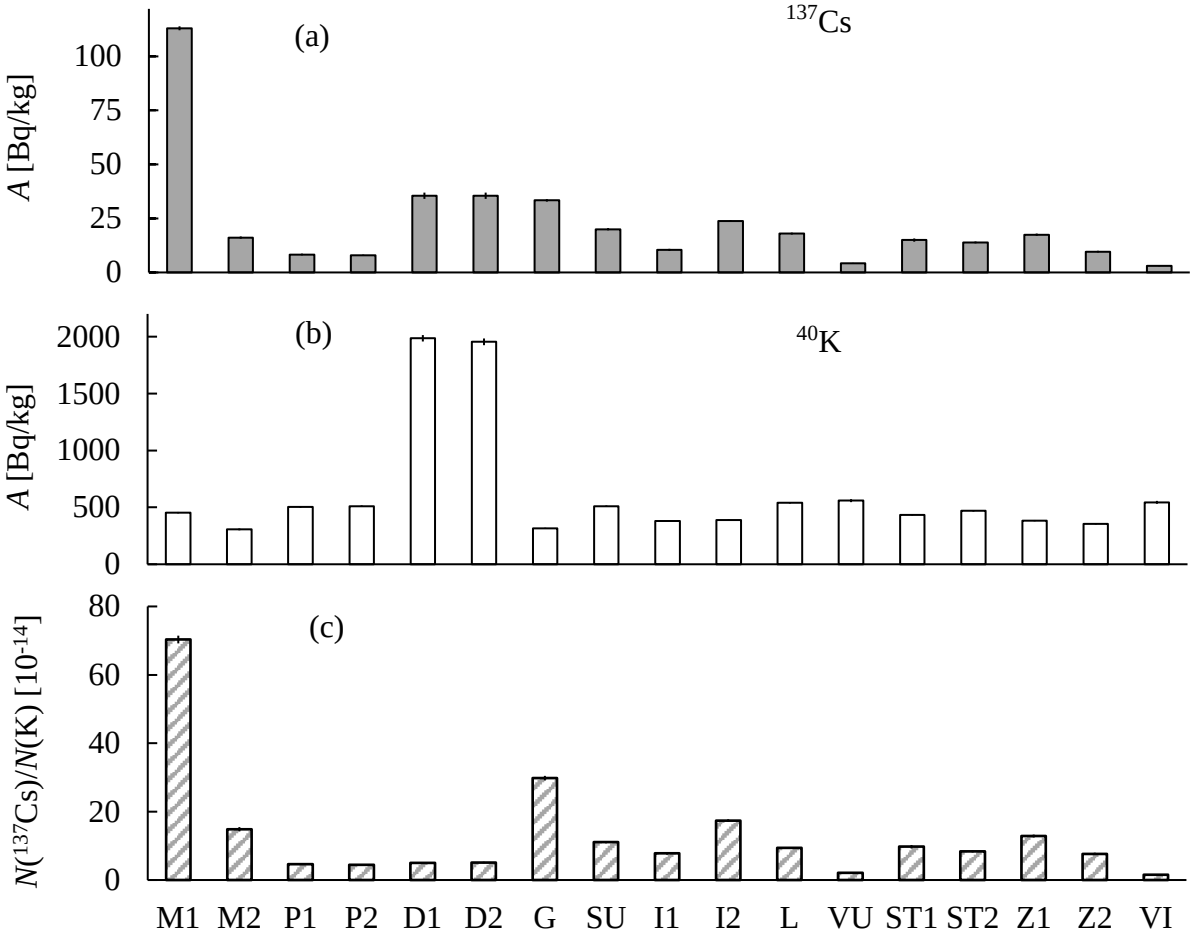
(NPK, UREA, KAN i fosfogips). Dvije navedene površine (ST1 i ST2) tretirane su naftom i njenim solidifikatom, a to su supstance koje kao i mineralno gnojivo mogu sadržavati povišene A PP radionuklida.

Jednako kao i kod uzoraka neobrađenog tla, određene su A radionuklida ^{238}U, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{232}Th, ^{208}Tl, ^{40}K i ^{137}Cs. Konkretne vrijednosti navedene su u prilogu F. Na slici 5.16 prikazane su A (zajedno s pogreškama mjerenja) radionuklida iz nizova ^{238}U i ^{232}Th za pojedinu lokaciju. Na sljedećoj slici, 5.17, (a) prikazuje A(^{137}Cs), (b) prikazuje A(^{40}K), dok (c) prikazuje omjer broja atoma ^{137}Cs i K. Pogreške mjerenja su ponovno prikazane, ali zbog malih iznosa nisu dovoljno uočljive na slici. Sa slika 5.16 mogu se izdvojiti lokacije D1, D2 i M1 na kojima su mjerene veće vrijednosti A PP radionuklida. Svi prikazani radionuklidi iz nizova raspada imaju povišene A na lokacijama D1 i D2, dok se za lokaciju M1 može vidjeti samo blago povećanje A(^{238}U) i A(^{232}Th). Sa slike 5.17 mogu se izdvojiti lokacije M1, D1, D2 i G, na kojima su mjerene povećane A(^{137}Cs) ili A(^{40}K). Također, potrebno je izdvojiti lokaciju M2 koja se nalazi vrlo blizu M1, a za nju nisu mjerene tako visoke A kao za lokaciju M1. Posebno se M1 i M2 razlikuju kod ^{137}Cs, dok je kod PP radionuklida ta razlika nešto manja. Lokacija G izdvaja se na slici 5.17 jer pokazuje kako utjecaj ^{137}Cs može biti izraženiji u slučaju nižeg sadržaja K. Kod svih ostalih lokacija mjerene A ne razlikuju se značajno.

Za objašnjenje izdvojenih lokacija i pripadnih mjerenih vrijednosti A potrebno je promotriti tablicu 5.2. i druge moguće utjecaje. Općenito se može zaključiti da način korištenja tla i vrsta tretiranja nemaju utjecaj na mjerene A radionuklida. Iako su određene površine dugi niz godina tretirane mineralnim gnojivima s visokim A PP radionuklida (prilog F), relativno



Slika 5.16 Koncentracije aktivnosti radionuklida iz nizova ^{238}U i ^{232}Th za pojedinu lokaciju.



Slika 5.17 Koncentracije aktivnosti ^{137}Cs (a), ^{40}K (b) i omjer broja atoma ^{137}Cs i K (c).

mala količina mineralnih gnojiva u odnosu na ukupnu količinu tla razlog je da se A nije povećala u tlu. Iako nema povećanja A u samom tlu, to ne znači da mineralno gnojivo ne utječe na transfer radionuklida u biljke. Na tu temu provedena su preliminarna mjerenja, ali nedovoljna za uključivanje u disertaciju. Povišene A PP radionuklida na lokacijama D1, D2 i dijelom M1, mogu se povezati s pojavama vezanim za konkretnu lokaciju. Na području oko lokacija D1 i D2 postoje izvori termalnih voda, a difuzija fluida iz dubljih slojeva tla obično transportira PP radionuklide prema površini [100]. Na području oko lokacije M1 i M2 postoje bušotine za vađenje zemnog plina, koje prolaze do dubokih slojeva s višim koncentracijama PP radionuklida i zbog kojih se posljedično u površinskim slojevima mogu pojaviti više A PP radionuklida [37]. Tekstura, η i c navedeni u tablici 5.2 pokazuju da su tla M1 i M2 bitno različita, što može ukazivati na činjenicu da svojstva tla određuju vezanje radionuklida koji dolaze iz dubljih u površinske slojeve tla. Jednako kao i kod PP radionuklida, parametri iz tablice 5.2, tj. tekstura, η i c, mogu se povezati s povišenim ^{137}Cs na lokaciji M1. Tlo M1 je po teksturi glineno s visokim η i c, dok je tlo M2 pjeskovito s niskim η i c. Kako ^{137}Cs uglavnom na tlo dođe oborinom, tlo s višim c će zadržati i više vode, a time i više ^{137}Cs. Dodatno, glina

između ostalog sadrži i alumosilikate koji imaju viši kapacitet za izmjenu kationa (CEC, od eng. *cation exchange capacity*), tj. koji imaju veću sposobnost privlačenja, zadržavanja i izmjene kationa. Veći udio gline u tlu znači i veći CEC, zbog čega tlo s većim CEC bolje zadržava i ione ^{137}Cs. Konkretno, CEC za tlo M1 iznosi 32,3 cmol+/kg, dok za M2 iznosi 7,42 cmol+/kg [101]. Iz primjera s ^{137}Cs u tlima M1 i M2, nastavno na prethodno poglavlje u kojem je opisana raspodjela ^{137}Cs za cijelo područje RH, može se zaključiti da bi tekstura, η, c i CEC mogli biti dodatni parametri o kojima ovisi količina i raspodjela ^{137}Cs. Navedeni parametri predstavljaju smjernice za daljnja istraživanja vezana uz zadržavanje ^{137}Cs u tlu na određenom području. Ukupno, može se zaključiti da zbog razlike u svojstvima tla M1 i M2 različito zadržavaju i PP i antropogene radionuklide. Obje vrste radionuklida tlo M1 zadržava više. PP radionuklidi dolaze fluidima iz dubljih slojeva tla, dok antropogeni obično dolaze oborinom (fluidom) iz atmosfere. Sa slike 5.17 može se vidjeti kako visoke $A(^{40}\mathrm{K})$ na lokacijama D1 i D2, tj. visoke količine ukupnog K, smanjuju mogućnost transfera ^{137}Cs u biljke. S druge strane, niske količine K na lokaciji G, unatoč relativno niskim $A(^{137}\mathrm{Cs})$, daju veću mogućnost transporta ^{137}Cs u biljke. Dodatno, promatranjem slike 5.17, od preostalih lokacija mogu se još izdvojiti VU i VI. Na tim lokacijama nalazi se vrsta tla černozerm, koja zbog pogodnih svojstava zadržavaju najmanje ^{137}Cs i ima najniži omjer ^{137}Cs i K. Detaljniji opis svojstava černozerma pogodnih i za poljoprivredu nalazi se u [37].

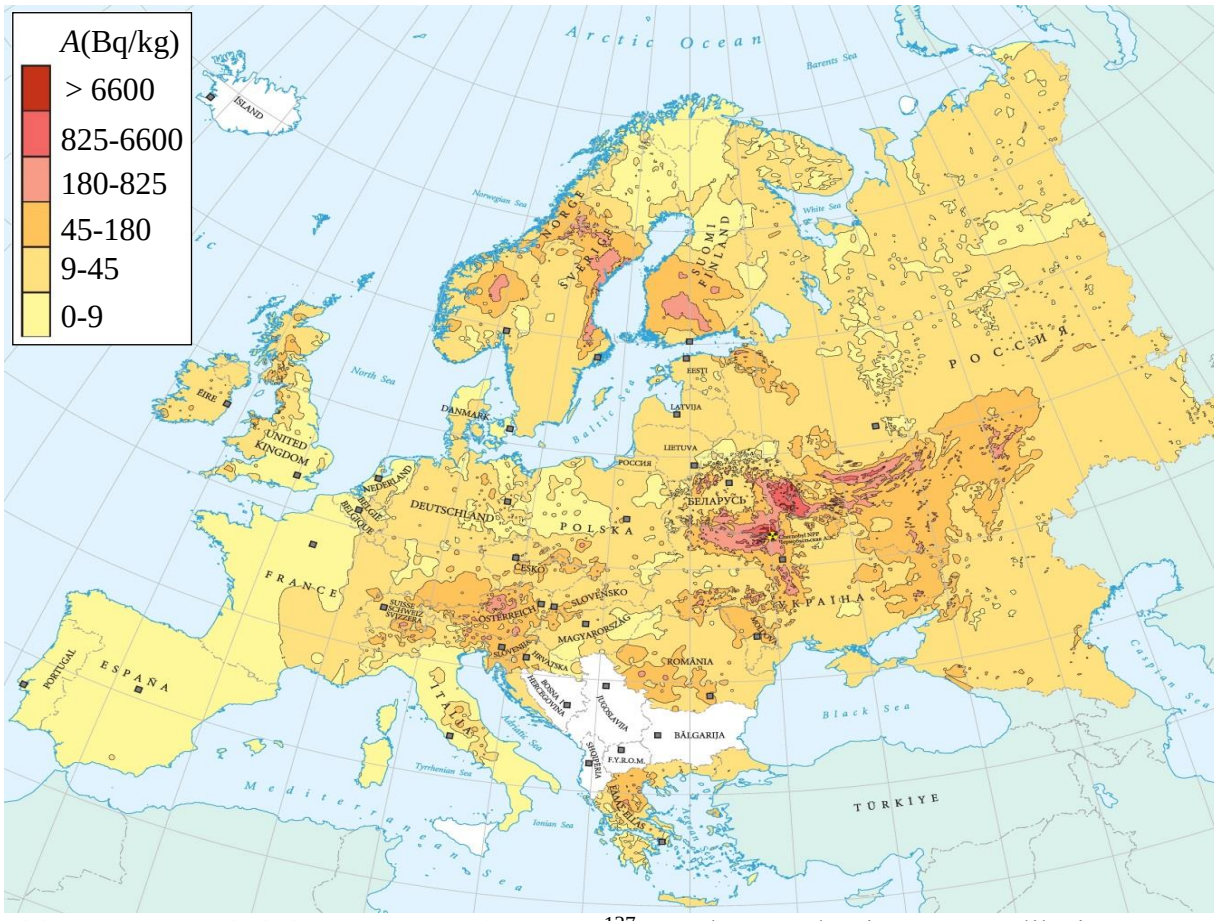
Ukupno, promatranjem rezultata mjerenja A radionuklida u poljoprivrednim tlima može se doći do nekoliko zaključaka. Korištenje, obrada i tretiranje ne utječu na bitno na radioaktivnost samog tla. Tretiranje tla može utjecati na transport radionuklida u biljke, što je važniji podatak od same A radionuklida u tlima i upućuje na dodatna istraživanja. O parametrima tla kao što su tekstura, η, c i CEC ovisi zadržavanje radionuklida i potrebno ih je uključiti u istraživanja radioaktivnosti tla. Lokalne varijacije u navedenim parametrima mogu značajno utjecati na zadržavanje antropogenih radionuklida u tlu, što je posebno izraženo na primjeru ^{137}Cs u tlima M1 i M2.

5.5. Usporedba s drugim područjima Europe i svijeta

Mjerene A PP radionuklida u tlu na području RH približno su jednake sažetim literaturnim podacima o A u drugim područjima Europe i svijeta [38,61]. Npr. navedeni podaci pokazuju da $A(^{238}\mathrm{U})$ poprimaju vrijednosti od 8 do 110 Bq/kg, $A(^{232}\mathrm{Th})$ od 4 do 73 Bq/kg, $A(^{226}\mathrm{Ra})$ od 7 do 180 Bq/kg, a $A(^{40}\mathrm{K})$ prosječno iznose 400 Bq/kg. Razlozi za znatna odstupanja

mjerenih vrijednosti A u tlu na području RH u odnosu na ostatak svijeta ne postoje, zbog čega i postoji podudaranje. Samo određeni lokalni čimbenici mogu prouzročiti odstupanja, a takvih čimbenika na području RH nema.

Kao što je već navedeno, od antropogenih radionuklida u okolišu najzastupljeniji je ^{137}Cs. Na području RH i Europe uglavnom je posljedica nesreće u Černobilu. Kako bi se količine ^{137}Cs na području RH mogle usporediti s količinama ^{137}Cs na ostalim područjima koja su bila zahvaćena nesrećom u Černobilu, na slici 5.18 prikazana je raspodjela A(^{137}Cs) za cijelu Europu. Slika je preuzeta iz atlasa ^{137}Cs [16] u kojem su objedinjeni podaci mjerenja velikog broja uzoraka tla iz većine zemalja s područja Europe. Podaci koji su korišteni za izradu atlasa dobiveni su mjerenjima koja su provođena u različito vrijeme, zbog čega su sve mjerene aktivnosti korigirane za raspad u vremenu, tj. vrijednosti su izražene za 10. svibanj 1986. godine. Na taj način prikazana je depozicija ^{137}Cs neposredno nakon nesreće u Černobilu. Kako su mjerenja za disertaciju provedena uglavnom u 2016. godini, prošlo je približno jedno $T_{1/2}$ ^{137}Cs, zbog čega su na slici 5.18 u legendi prikazani dva puta manje vrijednosti od onih u atlasu. Također, u atlasu su količine ^{137}Cs izražene u Bq/m^2. Zbog konzistentnosti s dosadašnjim rezultatima u disertaciji, količine ^{137}Cs navedene u atlasu i izražene u Bq/m^2 pretvorene su u A(^{137}Cs) izražene u Bq/kg i na taj način prikazane na slici 5.18. Pretvaranje Bq/m^2 u Bq/kg provedeno je uz pretpostavku da je površinska raspodjela ^{137}Cs raspodijeljena jednoliko u površinskom sloju tla od 10 cm, tj. kao i kod dobivanja jednadžbe (5.3). U izračunu je za gustoću tla na području Europe pretpostavljena prosječna vrijednost gustoće tla na području RH koja je određena u sklopu provedenih mjerenja, tj. koja iznosi 1120 kg/m^3. Zbog navedenih aproksimacije, slika 5.18 prikazuje raspodjelu okvirnih vrijednosti A(^{137}Cs). Kod izrade atlasa za područje RH bile su poznate A(^{137}Cs) za samo četiri lokacije na temelju kojih je približno prikazana i raspodjela A(^{137}Cs) na cijelom području RH. Kako većina zemalja Europe posjeduje rezultate o A(^{137}Cs) za veći broj lokacija na svojem teritoriju, jedan od motiva izrade ove disertacije je i nadopunjavanje podataka o A(^{137}Cs) za područje RH. Srednja vrijednost A(^{137}Cs) u tlu za cijelo područje RH iznosi 25,4 Bq/kg, dok je na području planinske Hrvatske srednja vrijednost 71 Bq/kg i na području Slavonije 3,7 Bq/kg. Ukupno, može se zaključiti da su A(^{137}Cs) na području RH značajno niže od A(^{137}Cs) s određenih područja Ukrajine, Rusije, Austrije i Skandinavskog poluotoka. Područje planinske Hrvatska ima nešto više A(^{137}Cs).



Slika 5.18 Raspodjele koncentracija aktivnosti ^{137}Cs u tlu na području Europe. Slika je preuzeta iz atlasa ^{137}Cs [16] i prilagođena disertaciji. Prilagodba je provedena tako da je raspodjela aktivnosti koja je u atlasu izražena u Bq/m^2 ovdje prikazana u Bq/kg.

6. ZAKLJUČAK

U svrhu provedbe radiološke karakterizacije tla RH provedena su gama spektrometrijska mjerenja koncentracija aktivnosti, A, radionuklida prirodne pojavnosti i antropogenih radionuklida u uzorcima tla uzorkovanih na 155 lokacija sa cijelog područja RH. Na neobrađenim površinama uzorkovano je 138 uzoraka, a preostalih 17 na poljoprivrednim površinama. U mjerenjima su provedeni svi potrebni koraci da bi se dobili što precizniji rezultati. Na temelju sistematiziranog i preciznog mjerenja velikog broja uzoraka, uzorkovanih na relativno maloj površini s različitim geografskim obilježjima, doneseni su općeniti zaključci o radioaktivnosti tla, kao i zaključci koji se odnose samo na radioaktivnost tla s područja RH. Mjerenje relativno velikog broja uzoraka snažno podupiru opažene pravilnosti, trendove i donesene zaključke.

U postupku mjerenja provedena je korekcija samoatenuacije. Kako su uzorci tla relativno gusti, na nižim energijama korekcija samoatenuacije iznosi do 20 %. S obzirom na razlike među uzorcima i nepoznavanje sastava, tj. nepoznavanje linearnog atenuacijskog koeficijenta uzoraka, konvencionalne metode korekcije samoatenuacije nisu mogle biti primijenjene. Kako bi se provele korekcije na mjerenim uzorcima, razvijena je vlastita metoda koja se temelji na kombinaciji mjerenja transmisija γ zraka kroz uzorke i Monte Carlo simulacija. Kao rezultat metode za svaki se uzorak dobije glatka korekcijska funkcija za cijelo energijsko područje mjerenja. A određena pomoću fotovrha određene energije množi se s vrijednošću korekcijske funkcije na energiji koja odgovara tom istom fotovrhu.

Od radionuklida prirodne pojavnosti najviše vrijednosti A iz nizova ^{238}U i ^{232}Th zabilježene su na području planinske Hrvatske i zapadne Istre, dok su najviše vrijednosti za ^{40}K zabilježene na području panonske Hrvatske. Uočena je povezanost između matičnog supstrata tla i A radionuklida prirodne pojavnosti. Na područjima na kojima je matični supstrat vapnenac, dolomit ili reliktna crvenica mjerene su više vrijednosti A radionuklida iz nizova ^{238}U i ^{232}Th, dok su na tim područjima niže vrijednosti A(^{40}K). Najbolju vezu s matičnim supstratom tla, tj. s dolomitom, vapnencem i reliktnom crvenicom, pokazuje ^{226}Ra. Razlog tome može biti kemijska sličnost s kalcijem i magnezijem koji se nalaze u navedenim matičnim supstratima.

Suprotno očekivanju, u nizu ^{238}U mjerene A(^{210}Pb) su više od A(^{226}Ra), a A(^{228}Ra) više su od A(^{238}U), tj. A radionuklida s kraja niza više su od A s početka niza. U nizu ^{232}Th mjerene A slijede očekivanje, tj. A(^{232}Th) više su od A(^{208}Tl). Navedeni odnosi između A radionuklida

u nizovima neovisni su o vrsti tla, tj. vrijede približno za sva područja i za sve matične supstrate tla. Razlog opaženih odnosa u nizu ^{238}U proizlazi iz fizikalnih i kemijskih svojstava ^{226}Ra, ^{222}Rn i ^{210}Pb koja direktno utječu na njihovo ponašanje i interakciju s okolišem. ^{226}Ra se nalazi u drugoj skupini periodnog sustava kao i kalcij, zbog čega se kemijski vrlo dobro veže u spojeve. Zbog toga u zamjenu za kalcij ulazi u određene okolišne i biološke procese u površinskim slojevima i na samoj površini tla. $T_{1/2}$ ^{226}Ra od 1600 godina dovoljno je dugo za prolazak kroz nekoliko ciklusa procesa koji dovode ^{226}Ra u površinske slojeve tla. Ulazak u biološke procese, prvenstveno biljke, ukazuje na potencijalnu opasnost od ^{226}Ra. Iz ^{226}Ra nastaje ^{222}Rn koji je plemeniti plin i vrlo slabo interagira s materijom. S $T_{1/2}$ od 3,8 dana može difuzijom proći iz dubljih slojeva tla u površinske slojeve i zrak, te na taj način povećati i koncentraciju svojih potomaka u površinskim slojevima tla i u zraku. Zbog dugog $T_{1/2}$ od 22 godine, ^{210}Pb preko biljaka, oborina i direktnim spuštanjem dolazi na tlo. Ukupno, ovaj proces dovodi do povećanja ^{210}Pb u odnosu na ^{226}Ra. U nizu ^{232}Th pojavljuju se također radij i radon, tj. ^{228}Ra, ^{224}Ra i ^{220}Rn, ali s $T_{1/2}$ od 5,8 godina, 3,7 dana i 56 sekundi, što nije dovoljno za procese kroz koje prolaze ^{226}Ra i ^{222}Rn iz niza ^{238}U. I ostali radionuklidi iz niza žive relativno kratko, zbog čega na niz ^{232}Th okoliš ne djeluje značajno. Posljedično, A radionuklida s početka niza ^{232}Th veće su od A radionuklida s kraja niza, što pokazuju odnosi mjerenih A(^{232}Th) i A(^{208}Tl). Zbog utjecaja okoliša, za dobivanje cjelokupne slike niza ^{238}U potrebno je mjeriti što više radionuklida iz niza. Kod niza ^{232}Th već mjerenje jednog radionuklida može dati približnu sliku o nizu. Osim dobivenih podataka o raspodjeli A radionuklida prirodne pojavnosti na području RH, važnost provedenih mjerenja dodatno proizlazi i iz opaženih općenitih pojava koje nisu vezane samo za tlo s područja RH.

Od antropogenih radionuklida, u uzorcima tla opaženi su ^{137}Cs i ^{90}Sr, pri čemu su vrijednosti A(^{90}Sr) vrlo niske i gotovo zanemarive. Vrijednosti A(^{137}Cs) najviše su na području planinske Hrvatske, ali i na izdvojenim lokacijama kao što su Sljeme, Žumberak, Papuk i Zrin. Na području Slavonije mjerene su vrlo niske A(^{137}Cs), gotovo zanemarive. Uočena je veza između količine oborine i mjerenih A(^{137}Cs), tj. na lokacijama s više oborina mjerene su i više A(^{137}Cs). Omjeri ^{137}Cs i kalija u raspodjeli ne pokazuju značajno odstupanje od raspodjele ^{137}Cs, a razlog tome je prilično jednolika raspodjela ^{40}K. Mjerene A(^{137}Cs) ne ovise o udaljenosti lokacije od glavnog izvora ^{137}Cs, tj. od Černobila. Osim dobivenih podataka na temelju kojih su doneseni određeni zaključci, mjerenjem ^{137}Cs u tlu dobivene su i smjernice za daljnja istraživanja. Iako je slaganje s količinom oborine vrlo dobro, potrebno je razmotriti i ostale parametre koji mogu utjecati na raspodjelu A(^{137}Cs). Npr. jednako kao i s oborinom, raspodjela

$A(^{137}Cs)$ može se povezati s nadmorskom visinom i vegetacijom, što je također potrebno razmotriti. Mjerenja poljoprivrednih tla sugeriraju da se u razmatranje dobivene raspodjele uključe parametri tla kao što su tekstura, poroznost η, kapacitet apsorpcije vode c i kapacitet za izmjenu kationa CEC, koji vjerojatno determiniraju zadržavanje ^{137}Cs u površinskim slojevima tla. Prepoznavanje parametara o kojima ovisi zadržavanje ^{137}Cs u tlu može poslužiti za procjene rizika pri ispuštanju radionuklida nakon potencijalno novih nuklearnih nesreća. S obzirom da na malom području RH postoje relativno velike reljefne, pedološke, vegetacijske i klimatske razlike, dosadašnjim i predloženim budućim istraživanjima mogu se dobiti ključni parametri koji utječu na raspodjelu ^{137}Cs i ostalih antropogenih radionuklida u slučaju većih nuklearnih nesreća.

Brzina apsorbirane doze $\dot{\Delta}$ od vanjskog ozračivanja dobivene na temelju mjerenih A radionuklida najviše su na području Gorskog Kotara, Like i zapadne Istre, te na nekoliko izdvojenih lokacija kao što su Žumberak, Lekenik i Orebić. Na većini područja doprinos $\dot{\Delta}$ od ^{137}Cs uglavnom je mali, približno 5 % u prosjeku.

Rezultati mjerenja A u tlima s poljoprivrednih površina ukazuju da obrada i tretiranje tla ne utječe na radioaktivnost, iako mineralna gnojiva i ostali dodaci tlu sadrže povišene koncentracije radionuklida prirodne pojavnosti. Mjerenja pokazuju da lokalne varijacije u parametrima tla mogu značajno utjecati na A radionuklida, a posebno antropogenih radionuklida. Pri razmatranju zadržavanja antropogenih radionuklida u tlu potrebno je u obzir uzeti parametre tla kao što su tekstura, η, c i CEC. Također, procesi povezani s transportom radionuklida iz dubljih slojeva tla mogu se povezati s lokalnim utjecajem na količinu radionuklida prirodne pojavnosti.

U tlu s područja RH A radionuklida prirodne pojavnosti približno su jednake prosječnim vrijednostima u svijetu. U odnosu na istočnu Europu, dijelove Skandinavskog poluotoka, a posebno u odnosu na dijelove Ukrajine i Rusije, područje RH ima relativno niske $A(^{137}Cs)$. Područje planinske Hrvatske malo odstupa i ima nešto više $A(^{137}Cs)$.

7. POPIS LITERATURE

1. Steinhauser G, Brandl A, Johnson TE. Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: A review of the environmental impacts. *Sci Total Environ* 2014;**470**–**471**:800–17.
2. Borovoi AA, Gagarinskii AY. Emission of radionuclides from the destroyed unit of the Chernobyl nuclear power plant. *At Energy* 2001;**90**:153–61.
3. Hu QH, Weng JQ, Wang JS. Sources of anthropogenic radionuclides in the environment: A review. *J Environ Radioact* 2010;**101**:426–37.
4. Alvarado J a C, Steinmann P, Estier S *et al.* Anthropogenic radionuclides in atmospheric air over Switzerland during the last few decades. *Nat Commun* 2014;**5**:3030.
5. Paatero J, Saxén R, Buyukay M *et al.* Overview of strontium-89,90 deposition measurements in Finland 1963-2005. *J Environ Radioact* 2010;**101**:309–16.
6. Ertel J, Ziegler H. Cs-134/137 contamination and root uptake of different forest trees before and after the Chernobyl accident. *Radiat Environ Biophys* 1991;**30**:147–57.
7. Hofmann W, Attarpour N, LETTNER H *et al.* Cs-137 Concentrations in Lichens before and after the Chernobyl Accident. *Health Phys* 1993;**64**:70–3.
8. Franić Z, Šega K, Petrinec B *et al.* Long-term investigations of post-Chernobyl radiocaesium in fallout and air in North Croatia. *Environ Monit Assess* 2009;**148**:315–23.
9. Lokobauer N, Franić Z, Bauman A *et al.* Radiation contamination after the Chernobyl nuclear accident and the effective dose received by the population of Croatia. *J Environ Radioact* 1998;**41**:137–46.
10. Šoštarić M, Petrinec B, Babić D. 137Cs in soil and fallout around Zagreb (Croatia) at the time of the Fukushima accident. *Arh Hig Rada Toksikol* 2013;**64**:561–5.
11. Masson O, Baeza A, Bieringer J *et al.* Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-Ichi nuclear reactors by European Networks. *Environ Sci Technol* 2011;**45**:7670–7.
12. Clemenza M, Fiorini E, Previtali E *et al.* Measurement of airborne I-131, Cs-134 and Cs-137 due to the Fukushima reactor incident in Milan (Italy). *J Environ Radioact* 2012;**114**:113–8.
13. Steinhauser G, Merz S, Hainz D *et al.* Artificial radioactivity in environmental media (air, rainwater, soil, vegetation) in Austria after the Fukushima nuclear accident. *Environ Sci Pollut Res* 2013;**20**:2527–34.

14. Marović G., Šega K., Bešlić I. *et al.* Nuklearna nesreća u Japanu i radioaktivnost zraka u Zagrebu (Fukushima nuclear accident and radioactivity in the air of Zagreb). Zbornik sažetaka Sedmoga hrvatskoga znanstevno-stručnog skupa ZAŠTITA ZRAKA ´11, 2011, 112–3.
15. Babić D, Senčar J, Petrinec B *et al.* Fine structure of the absorbed dose rate monitored in Zagreb, Croatia, in the period 1985-2011. *J Environ Radioact* 2013;**118**:75–9.
16. Cort M De, Dubois G, Fridman SD *et al. Atlas of Caesium Deposition on Europe after the Chernobyl Accident*. Luxembourg: Office for Official Publications of the European Communities, 1998.
17. Alinaghizadeh H, Tondel M, Walinder R. Cancer incidence in northern Sweden before and after the Chernobyl nuclear power plant accident. *Radiat Environ Biophys* 2014;**53**:495–504.
18. Yablokov A V., Nesterenko VB, Nesterenko A V. Consequences of the chernobyl catastrophe for the environment. *Ann N Y Acad Sci* 2009;**1181**:221–2.
19. Yoshida N, Kanda J. Tracking the Fukushima Radionuclides. *Science (80-)* 2012;**336**:1115–6.
20. Lin W, Chen L, Yu W *et al.* Radioactivity impacts of the Fukushima Nuclear Accident on the atmosphere. *Atmos Environ* 2015;**102**:311–22.
21. Yoshida N, Takahashi Y. Land-Surface Contamination by Radionuclides from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. *Elements* 2012;**8**:201–6.
22. Bituh T, Marovic G, Franic Z *et al.* Radioactive contamination in Croatia by phosphate fertilizer production. *J Hazard Mater* 2009;**162**:1199–203.
23. Tadmor J. Radioactivity from coal-fired power plants: A review. *J Environ Radioact* 1986;**4**:177–204.
24. Papastefanou C. Escaping radioactivity from coal-fired power plants (CPPs) due to coal burning and the associated hazards: A review. *J Environ Radioact* 2010;**101**:191–200.
25. Ademola AK, Bello AK, Adejumobi AC. Determination of natural radioactivity and hazard in soil samples in and around gold mining area in Itagunmodi, south-western, Nigeria. *J Radiat Res Appl Sci* 2014;**7**:249–55.
26. Esmeray E, Aydin ME. An investigation on natural radioactivity from mining industry. *African J Biotechnol* 2011;**10**:4313–7.
27. Chen J, Moir D, Whyte J. Canadian population risk of radon induced lung cancer: A re-assessment based on the recent cross-Canada radon survey. *Radiat Prot Dosimetry* 2012;**152**:9–13.

28. Darby S, Hill D, Auvinen A *et al.* Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies. *BMJ* 2005;**330**:223.
29. Field RW, Steck DJ, Smith BJ *et al.* The Iowa radon lung cancer study - phase I: residential radon gas exposure and lung cancer. *Science of the Total Environment*. Vol 272. 2001, 67–72.
30. Tirmarche M, Harrison JD, Laurier D *et al. ICRP Publication 115. Lung Cancer Risk from Radon and Progeny and Statement on Radon.*, 2010.
31. Brenner DJ, Doll R, Goodhead DT *et al.* Cancer risks attributable to low doses of ionizing radiation: assessing what we really know. *Proc Natl Acad Sci U S A* 2003;**100**:13761–6.
32. Tucker JD. Low-dose ionizing radiation and chromosome translocations: A review of the major considerations for human biological dosimetry. *Mutat Res - Rev Mutat Res* 2008;**659**:211–20.
33. Mortvedt JJ. Plant and Soil Relationships of Uranium and Thorium Decay Series Radionuclides—A Review. *J Environ Qual* 1994;**23**:643.
34. Thomas PA, Gates TE. Radionuclides in the lichen-caribou-human food chain near uranium mining operations in northern Saskatchewan, Canada. *Environ Health Perspect* 1999;**107**:527–37.
35. Alpen EL. Chapter 15 - Metabolism and Biological Effects of Deposited Radionuclides. *Radiation Biophysics (Second Edition)*. 1998, 393–423.
36. Šoštarić M, Babić D, Petrinec B *et al.* Determination of gamma-ray self-attenuation correction in environmental samples by combining transmission measurements and Monte Carlo simulations. *Appl Radiat Isot* 2016;**113**:110–6.
37. Šoštarić M, Zgorelec Ž, Babić D *et al.* Radioactivity of Selected Agricultural Soils in Croatia: Effects of Soil Properties, Soil Management, and Geological Parameters. *Water, Air, Soil Pollut* 2017;**228**:218.
38. Eisenbud M, Gesell T. Environmental Radioactivity. From Natural, Industrial and Military Sources. *Acad Press* 1997.
39. Fauna P, Shanidar F. Relative Contributions of Uranium, Thorium, and Potassium to Heat Production in the Earth - report. 1964:465–7.
40. Baskaran M. Po-210 and Pb-210 as atmospheric tracers and global atmospheric Pb-210 fallout: A Review. *J Environ Radioact* 2011;**102**:500–13.
41. Al-Masri MS, Al-Karfan K, Khalili H *et al.* Speciation of Po-210 and Pb-210 in air particulates determined by sequential extraction. *J Environ Radioact* 2006;**91**:103–12.
42. Solatie D, Junttila M, Vesterbacka P. 210Po and 210Pb in the food chain lichen-reindeer-

human. *Radiochemistry* 2006;**48**:632–3.

43. Persson BRR, Holm E. Polonium-210 and lead-210 in the terrestrial environment: A historical review. *J Environ Radioact* 2011;**102**:420–9.
44. Tahir SNA, Alaamer AS. PB-210 concentrations in cigarettes tobaccos and radiation doses to the smokers. *Radiat Prot Dosimetry* 2008;**130**:389–91.
45. Holtzman RB, Ilcewicz FH. Lead-210 and polonium-210 in tissues of cigarette smokers. *Science (80-)* 1966;**153**:1259–60.
46. Meier MM, Hubiak M, Matthiä D *et al*. Dosimetry at aviation altitudes (2006-2008). *Radiat Prot Dosimetry* 2009;**136**:251–5.
47. Liu CC, Chao J-H, Lin CC. TRITIUM RELEASE FROM NUCLEAR POWER PLANTS IN TAIWAN. *Health Phys* 2003;**84**:361–7.
48. Stead FW. Tritium Distribution in Ground Water around Large Underground Fusion Explosions. *Science* 1963;**142**:1163–5.
49. Okada S, Momoshima N. Overview of tritium: characteristics, sources, and problems. *Health Phys* 1993;**65**:595–609.
50. UNSCEAR. *Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (Annex C)*. New York: United Nations, 2008.
51. Suntharalingam N, Podgorsak EB, Tolli H. Radiation Oncology Physics: a handbook for teachers and students. 2005.
52. IAEA. Cyclotron Produced Radionuclides : Physical Characteristics and Production Methods. Technical Report Series No. 468 . 2009.
53. Mattos DMM, Gomes ML, Freitas RS *et al*. Which are the most used Radionuclides in the PET and in the SPECT Techniques in the World? *J Label Compd Radiopharm* 2001;**44**:841–3.
54. Cetnar J. General solution of Bateman equations for nuclear transmutations. *Ann Nucl Energy* 2006;**33**:640–5.
55. Wong SSMM. Introdutory Nuclear Physics. *Wiley-VCH Verlag GmbH Co KGaA* 2004.
56. Magill J, Galy J. *Radioactivity Radionuclides Radiation*., 2005.
57. Cherry SR, Sorenson J, Phelps ME *et al. Physics in Nuclear Medicine*., 2004.
58. Lide D. CRC handbook of chemistry and physics. *CRC Press* 2005;**86**.
59. Tuszynski JA, Dixon JM. *Biomedical Applications for Introductory Physics*. Wiley, 2002.
60. ICRP. The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. *ICRP Publ 103* 2007, DOI: 10.1016/j.icrp.2006.06.001.
61. Van der Stricht, Etienne Kirchmann R ed. *Radioecology: Radioactivity and Ecosystems*.

Fortemps, 2001.

62. IAEA. *Measurement of Radionuclides in Food and the Environment. A Guidebook. Technical Reports Series No. 295*. Vienna, 1989.

63. Khandaker MU. High purity germanium detector in gamma-ray spectrometry. *Int J Fundam Phys Sci* 2011;**1**:42–6.

64. Cutshall NH, Larsen IL, Olsen CR. Direct analysis of 210Pb in sediment samples: Self-absorption corrections. *Nucl Instruments Methods Phys Res* 1983;**206**:309–12.

65. Khater AEM, Ebaid YY. A simplified gamma-ray self-attenuation correction in bulk samples. *Appl Radiat Isot* 2008;**66**:407–13.

66. Vargas MJ, Timón AF, Díaz NC *et al.* Monte Carlo simulation of the self-absorption corrections for natural samples in gamma-ray spectrometry. *Appl Radiat Isot* 2002;**57**:893–8.

67. Sima O. Applications of Monte Carlo calculations to gamma-spectrometric measurements of environmental samples. *Applied Radiation and Isotopes*. Vol 47. 1996, 919–23.

68. Hurtado S, García-León M, García-Tenorio R. GEANT4 code for simulation of a germanium gamma-ray detector and its application to efficiency calibration. *Nucl Instruments Methods Phys Res Sect A Accel Spectrometers, Detect Assoc Equip* 2004;**518**:764–74.

69. Sima O, Arnold D. Transfer of the efficiency calibration of Germanium gamma-ray detectors using the GESPECOR software. *Appl Radiat Isot* 2002;**56**:71–5.

70. Bolivar JP, García-León M, García-Tenorio R. On self-attenuation corrections in gamma-ray spectrometry. *Appl Radiat Isot* 1997;**48**:1125–6.

71. McMahon CA, Fegan MF, Wong J *et al.* Determination of self-absorption corrections for gamma analysis of environmental samples: Comparing gamma-absorption curves and spiked matrix-matched samples. *Appl Radiat Isot* 2004;**60**:571–7.

72. Atkinson KE. *An Introduction to Numerical Analysis, Second Edition*. John Wiley & Sons, 1989.

73. Vidmar T. EFFTRAN - A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry. *Nucl Instruments Methods Phys Res Sect A Accel Spectrometers, Detect Assoc Equip* 2005;**550**:603–8.

74. Vidmar T, Çelik N, Cornejo Díaz N *et al.* Testing efficiency transfer codes for equivalence. *Appl Radiat Isot* 2010;**68**:355–9.

75. Vidmar T, Kanisch G, Vidmar G. Calculation of true coincidence summing corrections for extended sources with EFFTRAN. *Appl Radiat Isot* 2011;**69**:908–11.

76. Husnjak S. Sistematika tala Hrvatske. *Hrvat sveučilišna Nakl* 2014.
77. Baixeras C, Erlandsson B, Font L *et al.* Radon emanation from soil samples. *Radiat Meas* 2001;**34**:441–3.
78. Markkanen M, Arvela H. Radon emanation from soils. *Radiat Prot Dosimetry* 1992;**45**:269–72.
79. Martinez-Aguirre A, Perianez R. Soil to plant transfer of Ra-226 in a marsh area: Modelling application. *J Environ Radioact* 1998;**39**:199–213.
80. Soudek P, Podracká E, Vágner M *et al.* 226 Ra uptake from soils into different plant species. *J Radioanal Nucl Chem* 2007;**262**:187–9.
81. Chauhan R., Chakarvarti S. Radon diffusion through soil and fly ash: effect of compaction. *Radiat Meas* 2002;**35**:143–6.
82. Burian I, Otahal P. Radon and its decay products in outdoor air. *Appl Radiat Isot* 2009;**67**:881–3.
83. Teramage MT, Onda Y, Wakiyama Y *et al.* Atmospheric (210)Pb as a tracer for soil organic carbon transport in a coniferous forest. *Environ Sci Process Impacts* 2015;**17**:110–9.
84. Todorović D, Popović D, Ajtić J *et al.* Leaves of higher plants as biomonitors of radionuclides (137Cs, 40K, 210Pb and 7Be) in urban air. *Environ Sci Pollut Res* 2013;**20**:525–32.
85. Mihailović A, Vasić M V, Todorović N *et al.* Potential factors affecting accumulation of unsupported Pb-210 in soil. *Radiat Phys Chem* 2014;**99**:74–8.
86. Ettler V, Vaněk A, Mihaljevič M *et al.* Contrasting lead speciation in forest and tilled soils heavily polluted by lead metallurgy. *Chemosphere* 2005;**58**:1449–59.
87. Osaki S, Sugihara S, Maeda Y *et al.* Behavior of Be-7 and Pb-210 deposited via rainwater on a coniferous forest, a broad-leaved forest, and grassland. *J Radioanal Nucl Chem* 2007;**272**:147–52.
88. Mahara Y, Ohta T, Ogawa H *et al.* Atmospheric Direct Uptake and Long-term Fate of Radiocesium in Trees after the Fukushima Nuclear Accident. *Sci Rep* 2015;**4**:7121.
89. Takenaka C, Onda Y, Hamajima Y. Distribution of cesium-137 in Japanese forest soils: Correlation with the contents of organic carbon. *Sci Total Environ* 1998;**222**:193–9.
90. Fesenko S V., Soukhova N V., Sanzharova NI *et al.* 137Cs availability for soil to understory transfer in different types of forest ecosystems. *Sci Total Environ* 2001;**269**:87–103.
91. UNSCEAR. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*., 2000.
92. Saito K, Jacob P. Gamma Ray Fields in the Air Due to Sources in the Ground. *Radiat Prot Dosim* 1995;**58**:29–45.

93. Leung KC, Lau SY, Poon CB. Gamma radiation dose from radionuclides in Hong Kong soil. *J Environ Radioact* 1990;**11**:279–90.

94. Arapis G, Chesnokov A, Ivanova T *et al.* Evaluation of dose equivalent rate reduction as a function of vertical migration of 137 Cs in contaminated soils. *J Environ Radioact* 1999;**46**:251–63.

95. Karadeniz O, Cakir R, Karakurt H. Estimation of vertical migration velocity of 137Cs in the Mount IDA/Kazdagi, Turkey. *J Environ Radioact* 2015;**146**:27–34.

96. Blagoeva R, Zikovsky L. Geographic and vertical distribution of Cs-137 in soils in Canada. *J Environ Radioact* 1995;**27**:269–74.

97. Boukhenfouf W, Boucenna A. The radioactivity measurements in soils and fertilizers using gamma spectrometry technique. *J Environ Radioact* 2011;**102**:336–9.

98. Saueia CH, Mazzilli BP, Fávaro DIT. Natural radioactivity in phosphate rock, phosphogypsum and phosphate fertilizers in Brazil. *J Radioanal Nucl Chem* 2005;**264**:445–8.

99. Chauhan P, Chauhan RP, Gupta M. Estimation of naturally occurring radionuclides in fertilizers using gamma spectrometry and elemental analysis by XRF and XRD techniques. *Microchem J* 2013;**106**:73–8.

100. Bituh T, Marovic G, Petrinec B *et al.* Natural radioactivity of 226Ra and 228Ra in the thermal and mineral waters in Croatia. *Radiat Prot Dosimetry* 2009;**133**:119–23.

101. Tomašić M, Zgorelec Ž, Jurišić A *et al.* Cation exchange capacity of dominant soil types in the republic of Croatia. Journal of central European agriculture. *J Cent Eur Agric* 2013;**14**:84–98.

PRILOZI

PRILOG A. Lokacije uzorkovanja nekultiviranih tla

Tablica A Naziv i koordinate lokacija.

Broj	Lokacija	N	E
1	Barban	45,050068	14,010725
2	Baška Voda	43,354333	16,954346
3	Batina	45,842288	18,853562
4	Beli Manastir	45,757594	18,630533
5	Belišće	45,679364	18,389425
6	Biograd	43,979722	15,394444
7	Bjelolasica	45,219346	15,026592
8	Bjelovar	45,904251	16,829110
9	Breznica	46,072957	16,298647
10	Bruška	44,072880	15,732916
11	Buzet	45,403347	13,946407
12	Cetingrad	45,199201	15,781431
13	Cista Velika	43,528586	16,893545
14	Crni Lug	45,421524	14,715735
15	Čakovec	46,373665	16,455860
16	Čazma	45,761375	16,634123
17	Čepin	45,466293	18,528460
18	Ćepić polje	45,199410	14,130330
19	Donji Miholjac	45,761072	18,080847
20	Drniš	43,865879	16,194389
21	Drnje	46,205443	16,906078
22	Dubrovnik	42,697708	18,040449
23	Dvor	45,080861	16,333606
24	Đakovo	45,363686	18,371467
25	Đeletovci	45,210331	18,997039
26	Đulovac	45,656504	17,409139
27	Đurđevac	46,045961	17,045081
28	Garešnica	45,632616	16,897073
29	Generalski Stol	45,369528	15,407470
30	Glina	45,302961	16,127272
31	Gornje Jelenje	45,371778	14,602306
32	Gospić	44,515222	15,306611
33	Gračac	44,352962	15,863281
34	Hr. Kostajnica	45,273015	16,474639
35	Hraščina	46,110875	16,221870
36	Imotski	43,436728	17,202173
37	Ivanec	46,224595	16,085745
38	Jastrebarsko	45,656000	15,636778
39	Josipdol	45,193294	15,288561
40	Karlovac	45,515139	15,543944
41	Kneževi Vinogradi	45,743532	18,727725
42	Knin	44,081611	16,109273
43	Komin Opuzen	43,041944	17,528056
44	Koprivnica	46,179544	16,788900
45	Korenica	44,615556	15,738889
46	Krapina	46,157278	15,866111
47	Krapinske Toplice	46,101958	15,857380
48	Krasno Polje	44,826278	15,049417
49	Križevci	45,984503	16,555975
50	Križopolje	45,036581	15,179448
51	Krk	45,175051	14,558678
52	Kupjak	45,400196	14,906517
53	Kutina	45,489805	16,782390
54	Labin	45,088265	14,120437
55	Legrad	46,305599	16,813732
56	Lekenik	45,596760	16,184658
57	Lepavina	46,096597	16,667810
58	Letaj - Istra	45,253417	14,134361
59	Ličko Lešče	44,791563	15,339453
60	Lipovac	45,051193	19,075793
61	Lošinj	44,589306	14,410442
62	Ludbreg	46,235176	16,628651
63	Lukovdol	45,422528	15,117778
64	Lupoglav	45,369437	14,075381
65	Mala Pisanica	45,790905	17,005008
66	Molve M-10	46,110316	17,011836
67	Motovun	45,347234	13,829265
68	Mrkopalj	45,365102	14,768238
69	Našice	45,493071	18,142185
70	Nova Gradiška	45,255864	17,409286
71	Nova Kapela	45,195230	17,642064
72	Novska	45,361872	16,972759
73	Omiš	43,434595	16,703397
74	Orebić	42,981719	17,200688
75	Osijek	45,600690	18,742090
76	Pag	44,629722	14,793889
77	Pakrac	45,461451	17,200563
78	Papuk	45,515001	17,651553

Broj	Lokacija	N	E
79	Pazin	45,239345	13,920593
80	Petrinja	45,406992	16,291944
81	Petrokemija	45,451653	16,741028
82	Pisarovina	45,567590	15,863820
83	Pitomača	45,930980	17,267698
84	Pl. Mukinje	44,873450	15,630317
85	Plomin	45,136944	14,170278
86	Pokupsko	45,483661	15,999534
87	Poreč	45,266012	13,673621
88	Potok	45,546935	16,533737
89	Potpićan	45,192890	14,095140
90	Požega	45,338357	17,699252
91	Pula	44,854935	13,894249
92	Rab	44,773761	14,742474
93	Rakovica	44,984583	15,728521
94	Rijeka	45,335644	14,470109
95	Risnjak	45,484538	14,660105
96	Rogoznica	43,512574	16,090901
97	Rovinjsko Selo	45,108110	13,713710
98	Rugvica	45,670944	16,267806
99	Rupa	45,472333	14,284308
100	Ruševo	45,305398	17,969495
101	Selce	45,157245	14,726833
102	Senj	44,984325	14,927230
103	Sinj	43,666815	16,657581
104	Sisak	45,477777	16,389726
105	Slatina	45,729680	17,734932
106	Slavonski Brod	45,186534	18,059533
107	Slunj	45,124848	15,575288
108	Sljeme	45,903265	15,968912
109	Smiljansko polje	44,579722	15,398333
110	Split	43,539390	16,471845
111	Ston	42,846937	17,629822
112	Stupnik	45,755000	15,823056
113	Sv. P. Orehovec	46,084065	16,452520
114	Sveta Helena	45,905752	16,264739
115	Sveti Rok	44,388702	15,614179
116	Šibenik	43,756945	15,828215
117	Tuh. Toplice	46,062482	15,787636
118	Učka	45,250167	14,176000
119	Umag	45,411933	13,581569
120	Var. Toplice	46,211054	16,432670
121	Varaždin	46,281572	16,221408
122	Vel. Trgovišče	46,018741	15,855294
123	Velika Gorica	45,697659	16,098780
124	Veliki Zdenci	45,664490	17,091000
125	Vinkovci	45,329444	18,835833
126	Virovitica	45,827300	17,392776
127	Vis	43,058985	16,155283
128	Vojnić	45,333081	15,715200
129	Vrana	43,964528	15,483000
130	Vrbovec	45,869863	16,432180
131	Vrlika	43,889680	16,430226
132	Vukovar	45,421900	18,856510
133	Zadar	44,245833	15,303056
134	Zagreb	45,834406	15,978327
135	Zaprešić	45,888129	15,793505
136	Zrin	45,196418	16,369517
137	Žumberak	45,741743	15,604358
138	Županja	45,070373	18,683170

PRILOG B. Newton-Raphsonova iterativna metoda

Metoda služi za numeričko određivanje nul-točaka funkcije. Općenito, za diferencijabilnu funkciju $f(\xi)$ traži se ξ takav da je $f(\xi)=0$. Promatra se tangenta τ od f za proizvoljni (probni) ξ_0, tj. kroz točku (ξ_0, $f(\xi_0)$), i traži nul-točka tangente. Za tangentu $\tau(\xi)$ vrijedi

$$\tau(\xi)=f'(\xi_0)\cdot(\xi-\xi_0)+f(\xi_0). \qquad \text{(B.1)}$$

Nul-točka ξ_1 tangente τ odredi se iz uvjeta $\tau(\xi_1)=0$, tj. tad vrijedi

$$\xi_1 = \xi_0 - \frac{f(\xi_0)}{f'(\xi_0)}. \tag{B.2}$$

Nakon što se odredi ξ_1, određuje se tangenta u točki (ξ_1, $f(\xi_1)$) i njezina nul-točka ξ_2. Postupak se iterativno ponavlja do $n \in \mathrm{N}_0$ i tad vrijedi

$$\xi_n = \xi_{n-1} - \frac{f(\xi_{n-1})}{f'(\xi_{n-1})}. \tag{B.3}$$

Za $n \to \infty$, ξ_n se približava nul-točki od $f(\xi)$, tj. $f(\xi_n) \to 0$. U praksi se postupak ponavlja do određenog n, za koji vrijedi $|\xi_n - \xi_{n-1}| < \rho$, gdje je ρ proizvoljno mali realan broj. Brzina konvergencije ovisi o probnom ξ_0 i samoj funkciji f.

PRILOG C. Koncentracije aktivnosti odabranih radionuklida iz nizova raspada u uzorcima nekultiviranih tla.

Tablica C Koncentracije aktivnosti ^{238}U, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{232}Th i ^{208}Tl izražene u Bq/kg.

Broj	$A(^{238}\mathrm{U})$	$A(^{226}\mathrm{Ra})$	$A(^{210}\mathrm{Pb})$	$A(^{232}\mathrm{Th})$	$A(^{208}\mathrm{Tl})$
1	57 ± 3	60 ± 1	95 ± 7	69 ± 1	24,7 ± 0,4
2	27 ± 2	49 ± 1	115 ± 5	36 ± 1	12,3 ± 0,5
3	31 ± 2	32 ± 1	38 ± 4	29 ± 1	9,5 ± 0,3
4	40 ± 2	47 ± 1	64 ± 7	42 ± 1	15 ± 1
5	50 ± 2	41 ± 1	48 ± 3	43 ± 2	18 ± 1
6	39 ± 2	42 ± 1	50 ± 4	45 ± 1	15,1 ± 0,5
7	40 ± 2	53 ± 1	82 ± 10	37 ± 1	13,4 ± 0,3
8	33 ± 4	41 ± 1	15 ± 3	37 ± 2	11,8 ± 0,4
9	35 ± 2	40 ± 1	34 ± 4	43 ± 1	15,2 ± 0,5
10	54 ± 2	147 ± 1	60 ± 7	58 ± 2	19,7 ± 0,3
11	20 ± 2	22 ± 1	33 ± 4	24 ± 1	7,9 ± 0,4
12	56 ± 5	52 ± 1	44 ± 10	51 ± 1	17,8 ± 0,5
13	23 ± 1	64 ± 1	66 ± 10	30 ± 1	11,4 ± 0,4
14	61 ± 2	54 ± 1	79 ± 4	51 ± 1	22 ± 1
15	51 ± 3	48 ± 1	59 ± 5	46 ± 2	16,1 ± 0,5
16	50 ± 3	44 ± 1	54 ± 5	47 ± 2	15,3 ± 0,4
17	47 ± 3	49 ± 1	58 ± 5	49 ± 2	19,7 ± 0,5
18	33 ± 2	30 ± 1	35 ± 4	28 ± 1	11,4 ± 0,4
19	31 ± 1	37 ± 1	60 ± 5	31 ± 1	12,7 ± 0,4
20	50 ± 2	55 ± 1	50 ± 10	42 ± 1	15,2 ± 0,4
21	39 ± 2	38 ± 1	26 ± 4	32 ± 1	12,6 ± 0,5
22	23 ± 1	33 ± 1	4 ± 1	16 ± 1	5,9 ± 0,3
23	49 ± 3	45 ± 1	61 ± 10	41 ± 2	15 ± 1
24	38 ± 2	48 ± 1	57 ± 10	45 ± 1	16,1 ± 0,3
25	37 ± 2	46 ± 1	32 ± 3	37 ± 1	15,0 ± 0,4

Broj	$A(^{238}U)$	$A(^{226}Ra)$	$A(^{210}Pb)$	$A(^{232}Th)$	$A(^{208}Tl)$
26	46 ± 3	48 ± 1	43 ± 4	45 ± 2	15,6 ± 0,5
27	38 ± 2	37 ± 1	2 ± 0	33 ± 1	12,9 ± 0,5
28	33 ± 2	46 ± 2	29 ± 10	35 ± 2	14,0 ± 0,4
29	59 ± 2	76 ± 1	73 ± 10	60 ± 2	22 ± 1
30	41 ± 2	41 ± 1	38 ± 3	37 ± 2	12,6 ± 0,4
31	88 ± 4	108 ± 2	288 ± 6	64 ± 2	23 ± 1
32	18 ± 1	69 ± 1	82 ± 2	52 ± 1	17,8 ± 0,1
33	40 ± 2	76 ± 1	118 ± 10	51 ± 2	17,7 ± 0,5
34	52 ± 2	45 ± 1	55 ± 5	39 ± 1	14,9 ± 0,4
35	53 ± 3	98 ± 1	49 ± 10	37 ± 2	12,8 ± 0,4
36	23 ± 1	49 ± 1	45 ± 4	26 ± 1	10,2 ± 0,2
37	37 ± 2	40 ± 1	67 ± 10	30 ± 1	12,4 ± 0,4
38	44 ± 5	56 ± 1	49 ± 10	33 ± 1	12,9 ± 0,3
39	76 ± 3	73 ± 1	91 ± 10	56 ± 2	19,8 ± 0,4
40	66 ± 2	75 ± 1	0 ± 0	57 ± 2	19,9 ± 0,5
41	41 ± 2	43 ± 1	42 ± 10	37 ± 1	14,6 ± 0,5
42	56 ± 2	67 ± 1	56 ± 5	76 ± 2	27 ± 1
43	31 ± 1	32 ± 1	42 ± 2	22 ± 1	8,0 ± 0,2
44	43 ± 2	38 ± 1	51 ± 5	39 ± 2	13,5 ± 0,4
45	140 ± 5	63 ± 1	47 ± 3	82 ± 2	29 ± 1
46	36 ± 2	46 ± 2	41 ± 5	38 ± 1	14 ± 1
47	36 ± 2	36 ± 1	41 ± 3	40 ± 2	13,4 ± 0,5
48	52 ± 2	77 ± 1	106 ± 10	49 ± 1	20 ± 1
49	42 ± 2	43 ± 1	86 ± 10	40 ± 1	13,9 ± 0,5
50	24 ± 2	72 ± 1	130 ± 10	58 ± 2	20 ± 1
51	41 ± 2	52 ± 1	91 ± 4	47 ± 2	16 ± 1
52	54 ± 2	49 ± 1	90 ± 3	43 ± 1	16 ± 1
53	37 ± 2	34 ± 1	22 ± 4	23 ± 1	11,0 ± 0,5
54	21 ± 1	20 ± 1	29 ± 3	16 ± 1	7,2 ± 0,3
55	28 ± 2	27 ± 1	27 ± 4	26 ± 1	9,4 ± 0,3
56	71 ± 3	50 ± 1	72 ± 10	56 ± 2	19,6 ± 0,5
57	48 ± 2	42 ± 1	49 ± 3	43 ± 2	15,0 ± 0,4
58	16 ± 1	16 ± 1	66 ± 3	21 ± 1	6,8 ± 0,2
59	57 ± 3	103 ± 1	75 ± 10	61 ± 2	22,0 ± 0,5
60	50 ± 3	50 ± 1	52 ± 10	49 ± 2	16,7 ± 0,5
61	37 ± 2	41 ± 1	33 ± 4	31 ± 1	10,8 ± 0,3
62	35 ± 2	42 ± 1	52 ± 10	36 ± 1	13 ± 1
63	93 ± 3	190 ± 2	131 ± 10	49 ± 2	18 ± 1
64	44 ± 3	90 ± 1	96 ± 10	44 ± 2	15 ± 1
65	44 ± 3	43 ± 1	47 ± 5	41 ± 2	13,6 ± 0,5
66	28 ± 2	32 ± 1	53 ± 2	31 ± 1	10,5 ± 0,3
67	26 ± 1	22 ± 1	12 ± 2	19 ± 1	7,7 ± 0,3
68	86 ± 2	79 ± 1	89 ± 3	63 ± 1	25 ± 1
69	42 ± 1	49 ± 1	11 ± 2	46 ± 1	16,4 ± 0,3
70	35 ± 1	40 ± 1	38 ± 3	37 ± 1	13,2 ± 0,2
71	49 ± 2	45 ± 1	65 ± 5	44 ± 2	15,2 ± 0,5
72	54 ± 2	48 ± 1	39 ± 3	45 ± 2	16,0 ± 0,4
73	18 ± 2	21 ± 1	42 ± 3	18 ± 1	5,4 ± 0,3

Broj	$A(^{238}U)$	$A(^{226}Ra)$	$A(^{210}Pb)$	$A(^{232}Th)$	$A(^{208}Tl)$
74	85 ± 3	281 ± 2	175 ± 10	77 ± 2	28 ± 1
75	29 ± 1	31 ± 1	81 ± 10	23 ± 1	9,7 ± 0,4
76	64 ± 2	120 ± 1	106 ± 10	63 ± 1	23,4 ± 0,3
77	42 ± 2	43 ± 1	78 ± 10	39 ± 2	15 ± 1
78	19 ± 1	22 ± 2	121 ± 10	14 ± 1	6 ± 1
79	63 ± 2	70 ± 2	38 ± 5	64 ± 1	25 ± 1
80	36 ± 4	38 ± 2	43 ± 4	27 ± 1	9,5 ± 0,3
81	57 ± 3	49 ± 1	75 ± 4	44 ± 2	15,1 ± 0,5
82	44 ± 2	44 ± 1	90 ± 10	39 ± 1	13,6 ± 0,3
83	30 ± 2	32 ± 1	0 ± 0	29 ± 1	10,2 ± 0,3
84	86 ± 2	158 ± 1	77 ± 3	70 ± 1	-
85	40 ± 2	54 ± 1	117 ± 10	32 ± 1	14,0 ± 0,2
86	52 ± 2	50 ± 2	84 ± 10	42 ± 2	14,8 ± 0,4
87	72 ± 3	58 ± 1	83 ± 4	71 ± 2	24,1 ± 0,5
88	46 ± 2	39 ± 1	50 ± 1	39 ± 1	12,2 ± 0,3
89	31 ± 2	33 ± 1	52 ± 10	18 ± 1	7,2 ± 0,4
90	35 ± 1	42 ± 1	45 ± 3	33 ± 1	15 ± 1
91	63 ± 3	59 ± 1	73 ± 4	62 ± 2	22,0 ± 0,4
92	26 ± 1	20 ± 1	37 ± 10	10 ± 1	6,9 ± 0,4
93	59 ± 1	73 ± 1	48 ± 4	55 ± 1	22,10 ± 0,44
94	37 ± 2	87 ± 1	142 ± 10	41 ± 1	15,3 ± 0,5
95	84 ± 5	192 ± 1	200 ± 5	51 ± 1	17,7 ± 0,6
96	0 ± 0	118 ± 1	92 ± 10	85 ± 2	30,6 ± 0,5
97	75 ± 3	102 ± 1	156 ± 10	67 ± 2	22 ± 1
98	33 ± 2	52 ± 1	42 ± 2	41 ± 1	14,5 ± 0,2
99	36 ± 2	116 ± 2	69 ± 10	18 ± 1	8 ± 1
100	49 ± 2	44 ± 1	37 ± 3	46 ± 2	16,7 ± 0,5
101	39 ± 2	97 ± 2	83 ± 10	48 ± 1	16 ± 1
102	52 ± 2	47 ± 1	101 ± 5	40 ± 2	15,0 ± 0,5
103	30 ± 3	185 ± 2	154 ± 10	39 ± 2	14,1 ± 0,5
104	36 ± 2	36 ± 1	39 ± 3	31 ± 2	11,2 ± 0,4
105	36 ± 1	38 ± 1	27 ± 2	33 ± 1	13,2 ± 0,4
106	51 ± 1	46 ± 1	44 ± 3	46 ± 1	16,8 ± 0,3
107	59 ± 5	64 ± 1	73 ± 10	53 ± 2	18,3 ± 0,4
108	21 ± 2	31 ± 1	200 ± 4	9 ± 1	3,7 ± 0,3
109	60 ± 1	60 ± 1	49 ± 3	45 ± 1	16,3 ± 0,5
110	18 ± 1	23 ± 1	36 ± 5	11 ± 1	6,1 ± 0,4
111	31 ± 2	98 ± 1	62 ± 10	10 ± 1	4,4 ± 0,3
112	39 ± 2	38 ± 1	62 ± 10	33 ± 1	11,2 ± 0,4
113	44 ± 5	45 ± 1	48 ± 10	42 ± 1	14,8 ± 0,5
114	45 ± 3	44 ± 1	64 ± 5	44 ± 2	15,6 ± 0,5
115	68 ± 6	65 ± 1	14 ± 3	70 ± 2	23,3 ± 0,5
116	34 ± 2	100 ± 1	77 ± 10	54 ± 1	18,4 ± 0,4
117	44 ± 2	42 ± 1	53 ± 4	40 ± 1	13,1 ± 0,3
118	0 ± 0	59 ± 1	0 ± 0	34 ± 2	9,5 ± 0,2
119	55 ± 5	63 ± 2	60 ± 8	70 ± 2	25,6 ± 1
120	45 ± 3	38 ± 1	35 ± 3	39 ± 2	14,2 ± 0,5
121	46 ± 2	42 ± 1	58 ± 10	35 ± 1	14 ± 1

Broj	$A(^{238}U)$	$A(^{226}Ra)$	$A(^{210}Pb)$	$A(^{232}Th)$	$A(^{208}Tl)$
122	36 ± 2	43 ± 1	63 ± 10	35 ± 1	16 ± 1
123	46 ± 2	46 ± 1	54 ± 10	41 ± 1	14,0 ± 0,5
124	37 ± 1	42 ± 1	45 ± 4	38 ± 1	13,5 ± 0,3
125	39 ± 1	44 ± 1	25 ± 2	37 ± 1	15,4 ± 0,2
126	41 ± 2	35 ± 1	40 ± 4	35 ± 1	10,9 ± 0,3
127	42 ± 2	70 ± 1	45 ± 10	67 ± 1	23 ± 1
128	52 ± 3	51 ± 1	49 ± 3	52 ± 2	18,6 ± 0,5
129	46 ± 2	23 ± 1	50 ± 2	16 ± 1	5,4 ± 0,2
130	47 ± 2	45 ± 1	70 ± 5	46 ± 2	14 ± 1
131	35 ± 2	49 ± 1	73 ± 10	38 ± 1	14,5 ± 0,5
132	34 ± 2	43 ± 1	14 ± 2	36 ± 1	14,1 ± 0,5
133	22 ± 2	18 ± 1	28 ± 5	20 ± 1	6,7 ± 0,3
134	15 ± 1	14 ± 1	21 ± 2	13 ± 1	4,7 ± 0,2
135	51 ± 2	52 ± 1	66 ± 10	44 ± 2	15 ± 1
136	35 ± 1	37 ± 1	97 ± 10	25 ± 1	10,4 ± 0,4
137	78 ± 5	184 ± 2	139 ± 5	72 ± 2	23 ± 1
138	30 ± 1	31 ± 1	83 ± 10	23 ± 1	9,8 ± 0,4

PRILOG D. Koncentracije aktivnosti ^{137}Cs i ^{40}K, omjer ^{137}Cs i K u uzorcima nekultiviranih tla, te količina oborine na lokacijama uzorkovanja

Tablica D Koncentracije aktivnosti ^{137}Cs i ^{40}K, omjer ^{137}Cs i K, te količina oborine.

Broj	^{137}Cs (Bq/kg)	^{40}K (Bq/kg)	$^{137}Cs/K$ (10^{-14})	Oborina (mm/godina)
1	40,6 ± 0,4	330 ± 2	34,6 ± 0,2	1003
2	30,0 ± 0,5	430 ± 10	19,8 ± 0,4	1055
3	-	436 ± 6		700
4	0,17 ± 0,02	462 ± 5	0,10 ± 0,01	700
5	4,7 ± 0,4	520 ± 10	2,6 ± 0,1	717
6	1,2 ± 0,2	360 ± 5	0,92 ± 0,03	905
7	64 ± 1	305 ± 3	58,7 ± 0,6	1655
8	10,2 ± 0,4	493 ± 4	5,8 ± 0,1	834
9	39 ± 1	605 ± 4	18,1 ± 0,1	932
10	4,5 ± 0,3	350 ± 3	3,62 ± 0,05	995
11	6,9 ± 0,3	328 ± 5	5,9 ± 0,1	1111
12	4,1 ± 0,3	537 ± 4	2,17 ± 0,03	1113
13	14,7 ± 0,4	139 ± 1	29,7 ± 0,3	1387
14	40 ± 1	510 ± 10	22,0 ± 0,3	2868
15	15 ± 1	630 ± 10	6,7 ± 0,1	842
16	13,5 ± 0,5	500 ± 10	7,6 ± 0,1	893
17	3,1 ± 0,4	520 ± 10	1,7 ± 0,1	768
18	5,0 ± 0,3	500 ± 10	2,8 ± 0,1	1275

Broj	^{137}Cs (Bq/kg)	^{40}K (Bq/kg)	^{137}Cs/K (10^{-14})	Oborina (mm/godina)
19	6,7 ± 0,5	462 ± 4	4,1 ± 0,1	755
20	10,6 ± 0,3	424 ± 5	7,0 ± 0,1	1029
21	24 ± 1	413 ± 3	16,1 ± 0,1	890
22	13,6 ± 0,5	281 ± 3	13,7 ± 0,2	1343
23	53 ± 1	480 ± 10	31,2 ± 0,5	1102
24	2,1 ± 0,3	539 ± 4	1,09 ± 0,04	768
25	3,4 ± 0,4	476 ± 4	2,0 ± 0,0	668
26	26 ± 1	560 ± 10	13,4 ± 0,2	1148
27	55 ± 1	308 ± 3	50,3 ± 0,5	888
28	28 ± 1	520 ± 4	15,2 ± 0,1	899
29	11,7 ± 0,5	382 ± 3	8,6 ± 0,1	1346
30	4,7 ± 0,4	490 ± 10	2,7 ± 0,1	1113
31	55 ± 1	760 ± 10	20,3 ± 0,3	2284
32	40,1 ± 0,2	505 ± 3	22,4 ± 0,1	1441
33	132 ± 1	348 ± 3	107,1 ± 1,0	2020
34	75 ± 1	480 ± 4	43,8 ± 0,4	1102
35	9 ± 1	462 ± 4	5,7 ± 0,1	898
36	17,6 ± 0,3	180 ± 1	27,6 ± 0,2	1395
37	22,0 ± 0,5	503 ± 4	12,3 ± 0,1	1044
38	11,9 ± 0,5	344 ± 3	9,8 ± 0,1	1041
39	12,8 ± 0,4	500 ± 10	7,3 ± 0,1	1494
40	20,8 ± 0,5	515 ± 5	11,4 ± 0,1	1215
41	1,5 ± 0,3	437 ± 4	1,0 ± 0,1	700
42	105 ± 1	556 ± 5	53,0 ± 0,4	1121
43	10,4 ± 0,2	344 ± 2	8,5 ± 0,0	1268
44	15 ± 1	530 ± 10	8,1 ± 0,1	890
45	35,8 ± 0,5	410 ± 10	24,8 ± 0,4	1345
46	7,0 ± 0,3	476 ± 4	4,2 ± 0,0	932
47	7,5 ± 0,4	610 ± 10	3,5 ± 0,1	932
48	83 ± 1	363 ± 3	65 ± 1	1153
49	8,5 ± 0,5	558 ± 5	4,3 ± 0,1	842
50	20,9 ± 0,5	388 ± 3	15,2 ± 0,1	1308
51	72 ± 1	209 ± 5	97 ± 2	1226
52	57 ± 1	490 ± 10	32,8 ± 0,5	2227
53	23 ± 1	394 ± 4	16,7 ± 0,2	899
54	7,9 ± 0,4	372 ± 3	6,0 ± 0,1	1339
55	7,7 ± 0,2	362 ± 5	6,0 ± 0,1	890
56	32 ± 1	590 ± 10	15,2 ± 0,2	997
57	17,0 ± 0,4	560 ± 10	8,6 ± 0,1	842
58	22,2 ± 0,2	378 ± 3	16,5 ± 0,2	1366
59	56 ± 1	373 ± 4	42,2 ± 0,4	1295
60	5,1 ± 0,4	590 ± 10	2,4 ± 0,1	765
61	-	96 ± 1	-	1048
62	4,5 ± 0,5	479 ± 5	2,7 ± 0,1	963
63	55 ± 1	453 ± 4	34,3 ± 0,3	1343
64	205 ± 1	340 ± 10	172 ± 3	1366
65	22,6 ± 0,5	510 ± 10	12,5 ± 0,2	834
66	6,1 ± 0,2	520 ± 10	3,29 ± 0,04	890

Broj	^{137}Cs (Bq/kg)	^{40}K (Bq/kg)	^{137}Cs/K (10^{-14})	Oborina (mm/godina)
67	-	320 ± 3	-	1111
68	36,1 ± 0,5	450 ± 10	22,4 ± 0,3	2227
69	7,9 ± 0,4	508 ± 3	4,39 ± 0,04	871
70	24,8 ± 0,3	320 ± 2	21,8 ± 0,1	812
71	7,7 ± 0,3	500 ± 10	4,3 ± 0,1	812
72	17,0 ± 0,6	530 ± 10	9,1 ± 0,1	916
73	1,8 ± 0,2	300 ± 10	1,75 ± 0,05	883
74	80 ± 1	455 ± 4	49,8 ± 0,5	1028
75	3,9 ± 0,3	431 ± 4	2,57 ± 0,03	703
76	23,2 ± 0,4	483 ± 4	13,6 ± 0,1	1187
77	9,9 ± 0,5	464 ± 4	6,0 ± 0,1	927
78	61 ± 1	194 ± 2	89 ± 1	1194
79	9 ± 1	336 ± 3	7,2 ± 0,1	1237
80	25 ± 1	298 ± 3	23,7 ± 0,3	1021
81	14,5 ± 0,5	570 ± 10	7,2 ± 0,1	1021
82	16,0 ± 0,5	342 ± 3	13,2 ± 0,1	1078
83	9,2 ± 0,5	297 ± 3	8,7 ± 0,1	888
84	92,3 ± 0,3	658 ± 3	39,5 ± 0,2	1494
85	36 ± 1	441 ± 4	23,1 ± 0,2	1339
86	22 ± 1	448 ± 4	13,7 ± 0,1	1078
87	14,9 ± 0,3	370 ± 10	11,4 ± 0,2	949
88	8,9 ± 0,2	500 ± 10	5,0 ± 0,1	879
89	5,3 ± 0,4	315 ± 3	4,7 ± 0,1	1275
90	3,6 ± 0,3	537 ± 3	1,89 ± 0,02	790
91	6,0 ± 0,3	410 ± 10	4,1 ± 0,1	934
92	16,7 ± 0,5	300 ± 3	15,7 ± 0,2	1086
93	39,25 ± 0,3	484 ± 2	22,9 ± 0,1	1345
94	40,9 ± 0,5	420 ± 4	27,5 ± 0,3	1721
95	59 ± 1	470 ± 10	35 ± 1	2868
96	12,7 ± 0,5	507 ± 4	7,1 ± 0,1	905
97	13,0 ± 0,3	380 ± 10	9,5 ± 0,2	917
98	18,5 ± 0,2	369 ± 2	14,1 ± 0,1	996
99	23 ± 1	123 ± 2	52 ± 1	1721
100	2,4 ± 0,3	463 ± 10	1,48 ± 0,05	790
101	60 ± 1	357 ± 3	47,6 ± 0,4	1426
102	5,0 ± 0,4	310 ± 10	4,6 ± 0,1	1280
103	77 ± 1	230 ± 10	94 ± 3	1214
104	12,0 ± 0,3	430 ± 10	7,8 ± 0,1	1020
105	8,8 ± 0,3	433 ± 2	5,76 ± 0,03	797
106	2,5 ± 0,1	541 ± 4	1,28 ± 0,01	748
107	20,7 ± 0,4	395 ± 3	14,8 ± 0,1	1352
108	124,5 ± 1,0	210 ± 10	169 ± 5	1267
109	49,8 ± 0,4	304 ± 2	46,2 ± 0,3	1441
110	3,6 ± 0,4	213 ± 2	4,8 ± 0,1	892
111	16,7 ± 0,5	62 ± 1	76 ± 1	1446
112	17 ± 1	347 ± 3	14,1 ± 0,1	1011
113	17 ± 1	492 ± 4	9,3 ± 0,1	963
114	20 ± 1	460 ± 10	12,3 ± 0,2	932

Broj	^{137}Cs (Bq/kg)	^{40}K (Bq/kg)	^{137}Cs/K (10^{-14})	Oborina (mm/godina)
115	42,6 ± 0,3	377 ± 3	31,8 ± 0,3	1556
116	15,4 ± 0,4	316 ± 3	13,7 ± 0,1	902
117	18 ± 1	530 ± 10	9,7 ± 0,1	990
118	12,4 ± 0,5	394 ± 2	8,9 ± 0,1	1721
119	6 ± 1	274 ± 3	5,8 ± 0,1	785
120	10 ± 1	750 ± 10	3,7 ± 0,1	898
121	13 ± 1	423 ± 3	8,6 ± 0,1	938
122	19,0 ± 0,4	608 ± 5	8,8 ± 0,1	990
123	11,0 ± 0,4	480 ± 10	6,4 ± 0,1	994
124	75,5 ± 0,5	508 ± 3	41,9 ± 0,2	916
125	3,2 ± 0,2	472 ± 2	1,93 ± 0,02	554
126	12,6 ± 0,4	460 ± 10	7,8 ± 0,1	934
127	1,6 ± 0,3	245 ± 2	1,8 ± 0,1	916
128	13,0 ± 0,4	507 ± 5	7,2 ± 0,1	1113
129	14,1 ± 0,1	195 ± 2	20,4 ± 0,2	905
130	21 ± 1	500 ± 10	11,9 ± 0,2	842
131	69 ± 1	769 ± 5	25,2 ± 0,2	1029
132	3,1 ± 0,3	477 ± 4	1,84 ± 0,03	656
133	15 ± 1	290 ± 5	14,7 ± 0,3	986
134	6,2 ± 0,3	300 ± 10	5,8 ± 0,1	911
135	23 ± 1	419 ± 4	15,2 ± 0,1	902
136	47 ± 1	477 ± 4	27,7 ± 0,2	1102
137	64 ± 1	720 ± 10	25,1 ± 0,4	1267
138	4,0 ± 0,3	330 ± 3	3,37 ± 0,04	761

PRILOG E. Brzine apsorbiranih doza dobivene direktnim ozračivanjem od radionuklida iz nekultiviranih tla

Tablica E Brzine apsorbiranih doza $\dot{\Delta}_N$, $\dot{\Delta}_{Cs}$ i $\dot{\Delta}$ izražene u nGy/h.

Broj	$\dot{\Delta}_N$	$\dot{\Delta}_{Cs}$	$\dot{\Delta}$	Broj	$\dot{\Delta}_N$	$\dot{\Delta}_{Cs}$	$\dot{\Delta}$
1	82 ± 2	4,54 ± 0,05	86 ± 2	14	80 ± 1	3,26 ± 0,05	84 ± 1
2	52 ± 1	3,6 ± 0,1	56 ± 1	15	78 ± 2	1,5 ± 0,1	79 ± 2
3	50 ± 1	-	50 ± 1	16	72 ± 2	1,5 ± 0,1	74 ± 2
4	63 ± 1	0,02 ± 0	63 ± 1	17	73 ± 2	0,33 ± 0,05	73 ± 2
5	71 ± 2	0,53 ± 0,05	71 ± 2	18	53 ± 1	0,63 ± 0,03	54 ± 1
6	60 ± 1	0,15 ± 0,02	60 ± 1	19	52 ± 1	0,9 ± 0,1	53 ± 1
7	54 ± 1	6,3 ± 0,1	60 ± 1	20	66 ± 1	1,37 ± 0,04	67 ± 1
8	58 ± 2	1,16 ± 0,05	59 ± 2	21	55 ± 1	2,8 ± 0,1	58 ± 1
9	67 ± 1	4 ± 0,1	71 ± 1	22	32 ± 1	1,5 ± 0,1	33 ± 1
10	75 ± 1	0,57 ± 0,03	75 ± 1	23	67 ± 2	6,1 ± 0,1	73 ± 2
11	37 ± 1	0,78 ± 0,04	38 ± 1	24	67 ± 1	4,54 ± 0,05	67 ± 1
12	79 ± 2	0,49 ± 0,03	79 ± 2	25	59 ± 1	3,6 ± 0,1	60 ± 1
13	35 ± 1	2 ± 0,1	37 ± 1	26	72 ± 2	2,9 ± 0,1	75 ± 2

Broj	$\dot{\Delta}_N$	$\dot{\Delta}_{Cs}$	$\dot{\Delta}$
27	50 ± 1	6,1 ± 0,1	56 ± 1
28	58 ± 1	3,1 ± 0,1	61 ± 1
29	80 ± 1	1,3 ± 0,1	81 ± 1
30	62 ± 1	0,56 ± 0,04	63 ± 1
31	111 ± 2	4,4 ± 0,1	115 ± 2
32	60 ± 1	3,04 ± 0,02	64 ± 1
33	64 ± 1	15,2 ± 0,1	79 ± 1
34	67 ± 1	7,8 ± 0,1	75 ± 1
35	66 ± 2	1,1 ± 0,1	67 ± 2
36	34 ± 1	2,33 ± 0,04	36 ± 1
37	56 ± 1	2,6 ± 0,1	59 ± 1
38	55 ± 2	1,3 ± 0,1	56 ± 2
39	89 ± 2	1,5 ± 0,05	91 ± 2
40	86 ± 2	2,13 ± 0,05	88 ± 2
41	60 ± 1	0,19 ± 0,04	60 ± 1
42	95 ± 2	12,6 ± 0,1	107 ± 2
43	42 ± 1	1,32 ± 0,03	43 ± 1
44	66 ± 2	1,8 ± 0,1	68 ± 2
45	131 ± 2	4,1 ± 0,1	135 ± 2
46	60 ± 1	0,78 ± 0,04	60 ± 1
47	67 ± 2	0,87 ± 0,05	68 ± 2
48	68 ± 1	8,8 ± 0,1	77 ± 1
49	67 ± 1	1,1 ± 0,1	68 ± 1
50	62 ± 1	2,4 ± 0,1	65 ± 1
51	56 ± 1	8,8 ± 0,1	65 ± 1
52	71 ± 1	5 ± 0,1	76 ± 1
53	48 ± 1	2,8 ± 0,1	51 ± 1
54	35 ± 1	1 ± 0,05	36 ± 1
55	44 ± 1	1 ± 0,03	45 ± 1
56	91 ± 2	3 ± 0,1	94 ± 2
57	71 ± 2	1,77 ± 0,05	73 ± 2
58	36 ± 1	2,6 ± 0,03	38 ± 1
59	79 ± 2	6,5 ± 0,1	85 ± 2
60	77 ± 2	0,52 ± 0,04	78 ± 2
61	40 ± 1	-	40 ± 1
62	58 ± 1	0,4 ± 0,05	59 ± 1
63	92 ± 2	5,5 ± 0,1	97 ± 2
64	61 ± 2	24,4 ± 0,1	85 ± 2
65	67 ± 2	2,4 ± 0,1	69 ± 2
66	54 ± 1	0,61 ± 0,02	54 ± 1
67	37 ± 1	-	37 ± 1
68	96 ± 1	3,51 ± 0,05	100 ± 1
69	68 ± 1	0,93 ± 0,04	69 ± 1
70	52 ± 1	2,82 ± 0,04	55 ± 1
71	70 ± 1	0,91 ± 0,04	71 ± 1
72	74 ± 2	2 ± 0,1	76 ± 2
73	31 ± 1	0,22 ± 0,02	31 ± 1
74	105 ± 2	8,2 ± 0,1	113 ± 2

Broj	$\dot{\Delta}_N$	$\dot{\Delta}_{Cs}$	$\dot{\Delta}$
75	45 ± 1	0,47 ± 0,03	46 ± 1
76	88 ± 1	2,7 ± 0,1	90 ± 1
77	62 ± 1	1,1 ± 0,1	63 ± 1
78	25 ± 1	5 ± 0,1	30 ± 1
79	82 ± 1	1,1 ± 0,1	83 ± 1
80	46 ± 2	2,9 ± 0,1	49 ± 2
81	77 ± 2	1,6 ± 0,05	78 ± 2
82	58 ± 1	1,8 ± 0,1	60 ± 1
83	44 ± 1	1,1 ± 0,1	45 ± 1
84	109 ± 1	6,77 ± 0,02	116 ± 1
85	56 ± 1	3,6 ± 0,1	60 ± 1
86	68 ± 1	2,4 ± 0,1	71 ± 1
87	92 ± 2	1,8 ± 0,04	94 ± 2
88	66 ± 1	1,23 ± 0,03	67 ± 1
89	38 ± 1	0,59 ± 0,05	39 ± 1
90	58 ± 1	0,42 ± 0,03	59 ± 1
91	83 ± 2	0,78 ± 0,04	84 ± 2
92	31 ± 1	1,8 ± 0,1	33 ± 1
93	80 ± 1	4,3 ± 0,03	85 ± 1
94	60 ± 1	4,8 ± 0,1	65 ± 1
95	89 ± 2	5,2 ± 0,1	95 ± 2
96	73 ± 1	1,6 ± 0,1	74 ± 1
97	91 ± 2	1,29 ± 0,03	92 ± 2
98	56 ± 1	1,38 ± 0,01	57 ± 1
99	33 ± 1	2,5 ± 0,1	35 ± 1
100	70 ± 1	0,3 ± 0,04	70 ± 1
101	62 ± 1	6,6 ± 0,1	68 ± 1
102	61 ± 2	0,52 ± 0,04	62 ± 2
103	47 ± 2	8,8 ± 0,1	56 ± 2
104	53 ± 1	1,31 ± 0,03	55 ± 1
105	54 ± 1	0,99 ± 0,03	55 ± 1
106	74 ± 1	0,31 ± 0,02	74 ± 1
107	76 ± 3	2,64 ± 0,05	79 ± 3
108	24 ± 1	9,2 ± 0,1	33 ± 1
109	68 ± 1	5,86 ± 0,04	74 ± 1
110	24 ± 1	0,45 ± 0,05	25 ± 1
111	23 ± 1	2,3 ± 0,1	25 ± 1
112	53 ± 1	1,9 ± 0,1	55 ± 1
113	67 ± 3	1,7 ± 0,1	68 ± 3
114	67 ± 2	2,1 ± 0,1	69 ± 2
115	89 ± 3	5,28 ± 0,04	95 ± 3
116	62 ± 1	1,78 ± 0,04	64 ± 1
117	67 ± 1	2,1 ± 0,1	69 ± 1
118	37 ± 1	1,2 ± 0,1	38 ± 1
119	79 ± 3	0,7 ± 0,1	80 ± 3
120	75 ± 2	1 ± 0,1	76 ± 2
121	60 ± 1	1,3 ± 0,1	62 ± 1
122	63 ± 1	1,92 ± 0,04	65 ± 1

Broj	$\dot{\Delta}_N$	$\dot{\Delta}_{Cs}$	$\dot{\Delta}$
123	66 ± 1	1,4 ± 0,1	68 ± 1
124	61 ± 1	8,11 ± 0,05	70 ± 1
125	60 ± 1	0,38 ± 0,02	60 ± 1
126	60 ± 1	1,6 ± 0,1	61 ± 1
127	70 ± 1	0,22 ± 0,04	70 ± 1
128	77 ± 2	1,6 ± 0,1	78 ± 2
129	39 ± 1	0,79 ± 0,01	40 ± 1
130	70 ± 2	2,2 ± 0,1	73 ± 2

Broj	$\dot{\Delta}_N$	$\dot{\Delta}_{Cs}$	$\dot{\Delta}$
131	71 ± 1	8,1 ± 0,1	79 ± 1
132	57 ± 1	0,37 ± 0,04	58 ± 1
133	34 ± 1	2,1 ± 0,1	36 ± 1
134	28 ± 1	0,76 ± 0,04	28 ± 1
135	68 ± 2	2,3 ± 0,1	70 ± 2
136	51 ± 1	4,4 ± 0,1	56 ± 1
137	109 ± 3	6,8 ± 0,1	116 ± 3
138	41 ± 1	0,47 ± 0,03	42 ± 1

PRILOG F. Koncentracije aktivnosti radionuklida u uzorcima tla s poljoprivrednih površina i u mineralnom gnojivu

Tablica F1 Koncentracije aktivnosti ^{238}U, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{232}Th i ^{208}Tl izražene u Bq/kg.

Lokacija	Oznaka	N	E	^{238}U	^{226}Ra	^{210}Pb	^{232}Th	^{208}Tl
Molve 1	M1	46,100783	17,019033	84±4	49±1	80±10	63±2	19,8±0,5
Molve 2	M2	46,121333	17,006383	23±2	20±1	34±4	21±1	6,4±0,3
Potok 1	P1	45,555950	16,529061	49±3	46±1	70±10	44±2	14,0±0,3
Potok 2	P2	45,555950	16,529061	49±2	46±1	46±4	43±2	13,8±0,4
Daruvar 1	D1	45,565061	17,029186	110±10	112±3	110±10	150±10	44±1
Daruvar 2	D2	45,565061	17,029186	100±10	104±3	130±10	136±5	54±2
Gospić	G	44,600000	15,333333	51±2	42±1	70±4	40±1	12,6±0,4
Sunja	SU	45,379566	16,600000	52±2	42±1	66±5	43±2	14,5±0,4
Istra 1	I1	45,186375	14,079977	30±2	16±1	30±10	25±1	5,2±0,2
Istra 2	I2	45,104179	14,137116	24±2	24±1	70±3	26±1	7,8±0,3
Lepoglava	L	46,217691	16,046900	54±2	47±1	42±5	44±1	14,4±0,4
Vukovar	VU	45,401794	18,935164	43±2	44±1	62±5	47±2	14,4±0,5
Stružec 1	ST1	45,515503	16,539532	54±3	47±2	40±10	42±2	11,5±0,4
Stružec 2	ST2	45,515503	16,539532	45±2	44±1	50±10	44±1	13,6±0,4
Zagreb 1	Z1	45,757711	16,024256	40±2	45±1	50±3	35±1	9,7±0,4
Zagreb 2	Z2	45,767958	16,026389	39±2	39±1	55±4	29±1	9,0±0,3
Vinkovci	VI	45,266814	18,762447	51±2	46±1	56±5	47±2	14,8±0,5
mineralno gnojivo NPK				590±2	246±2	260±10	13,0±0,4	6,6±0,1

Tablica F2 Koncentracije aktivnosti ^{137}Cs i ^{40}K, te omjer ^{137}Cs i K.

Lokacija	Oznaka	N	E	^{137}Cs (Bq/kg)	^{40}K (Bq/kg)	^{137}Cs/K (10^{-14})
Molve 1	M1	46,100783	17,019033	113 ± 1	450 ± 10	70 ± 1
Molve 2	M2	46,121333	17,006383	16,1 ± 0,5	310 ± 10	15 ± 1
Potok 1	P1	45,555950	16,529061	8,3 ± 0,4	500 ± 10	4,7 ± 0,2
Potok 2	P2	45,555950	16,529061	8,0 ± 0,3	510 ± 10	4,4 ± 0,2
Daruvar 1	D1	45,565061	17,029186	36 ± 2	1990 ± 30	5,0 ± 0,2
Daruvar 2	D2	45,565061	17,029186	38 ± 2	1960 ± 30	5,1 ± 0,2
Gospić	G	44,600000	15,333333	33 ± 1	316 ± 5	30 ± 1
Sunja	SU	45,379566	16,600000	20,0 ± 0,5	510 ± 10	11,1 ± 0,3

Lokacija	Oznaka	N	E	^{137}Cs (Bq/kg)	^{40}K (Bq/kg)	^{137}Cs/K (10^{-14})
Istra 1	I1	45,186375	14,079977	10,5 ± 0,5	379 ± 5	7,8 ± 0,4
Istra 2	I2	45,104179	14,137116	23,9 ± 0,4	390 ± 10	17,4 ± 0,4
Lepoglava	L	46,217691	16,046900	18,0 ± 0,5	540 ± 10	9,4 ± 0,3
Vukovar	VU	45,401794	18,935164	4,2 ± 0,2	560 ± 10	2,1 ± 0,1
Stružec 1	ST1	45,515503	16,539532	15 ± 1	430 ± 10	9,7 ± 0,5
Stružec 2	ST2	45,515503	16,539532	13,9 ± 0,4	470 ± 10	8,4 ± 0,3
Zagreb 1	Z1	45,757711	16,024256	17,5 ± 0,5	380 ± 10	12,9 ± 0,4
Zagreb 2	Z2	45,767958	16,026389	9,6 ± 0,4	355 ± 5	7,7 ± 0,3
Vinkovci	VI	45,266814	18,762447	3,0 ± 0,2	540 ± 10	1,6 ± 0,1
mineralno gnojivo NPK				-	6860 ± 10	-

ŽIVOTOPIS I POPIS JAVNO OBJAVLJENIH RADOVA

OSOBNI PODACI

Ime i prezime	Marko Šoštarić
Adresa	Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada, Ksaverska cesta 2, pp 291, HR-10001 Zagreb
Telefon	Tel: +385 1 4682 652, Mob: +385 95 5185664
E-mail	msostaric@imi.hr, marko.sostaric1@gmail.com
Datum i mjesto rođenja	25. 6. 1986., Koprivnica

OBRAZOVANJE

2012. - danas	Sveučilište u Zagrebu, Prirodoslovno-matematički fakultet, Fizički odsjek, Doktorski studij fizike
2004. - 2010.	Sveučilište u Zagrebu, Prirodoslovno-matematički fakultet, Fizički odsjek, smjer: diplomirani inženjer fizike
2000. - 2004.	Prirodoslovno-matematička gimnazija I. Z. Dijankovečkoga, Križevci

RADNO ISKUSTVO

1. 2. 2012. - danas	Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada, Zagreb, Jedinica za zaštitu od zračenja, radno mjesto: znanstveni novak
10. 1. - 1. 9. 2011.	Osnovna škola Ljudevita Modeca, Križevci, radno mjesto: učitelj matematike
20. 11. - 20. 12. 2010.	Osnovna škola Sesvete, Sesvete, radno mjesto: učitelj matematike

SEMINARI I RADIONICE

25. - 29. 7. 2016.	RER/7/008, Strengthening Capabilities for Radionuclide Measurement in the Environment and Enhancing QA/QC System for Environmental Radioactivity Monitoring, IAEA, Karlsruhe, Njmačka
15. - 17. 4. 2015.	10. simpozij Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja, Šibenik
16. - 18. 10. 2013.	Regional Workshop on Uncertainty Estimation in the Measurement of Radioactivity in the Environment Using New Approaches, IAEA, Ljubljana, Slovenija

10. - 12. 4. 2013.	9. simpozij Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja, Krk
28. 3. 2013.	Upravljanje ispitnom opremom, CROLAB, Zagreb
13. - 15. 11. 2012.	Training Workshop on Applications of gamma-ray spectrometry to environmental samples, JRC, Beograd, Srbija
29. 9. - 4. 10. 2008.	Physics at LHC 2008, CERN annual meeting, Split
12. 7. - 5. 9. 2008.	CERN Summer Student Programme, CERN, Ženeva, Švicarska

PUBLIKACIJE

Znanstveni radovi u CC časopisima

1. Šoštarić, M., Zgorelec, Ž., Babić, D., Šestak, I., Kisić, I., Mesić, M., Perčin, A. Radioactivity of selected agricultural soils in Croatia: effects of soil properties, soil management, and geological parameters. *Water, Air, and Soil Pollution* . 228:218 (2017); 1-10.
2. Skoko, B.; Marović, G.; Babić, D.; Šoštarić, M.; Jukić, M. Plant uptake of 238U, 235U, 232Th, 226Ra, 210Pb and 40K from a coal ash and slag disposal site and control soil under field conditions: A preliminary study. *Journal of environmental radioactivity*. 172 (2017); 113-121.
3. Šoštarić, M.; Babić, D.; Petrinec, B.; Zgorelec, Ž. Determination of gamma-ray self-attenuation correction in environmental samples by combining transmission measurements and Monte Carlo simulations. *Applied radiation and isotopes*. 113 (2016);110-116.

Znanstveni radovi u drugim časopisima

1. Šoštarić, M.; Petrinec, B.; Babić, D. Air sampling by pumping through a filter: effects of air flow rate, concentration, and decay of airborne substances. *Arhiv za higijenu rada i toksikologiju*. 67 (2016); 326-331.
2. Šoštarić, M.; Petrinec, B.; Babić, D. 137CS in Soil and Fallout in the Region of Zagreb, Croatia, in the Time of the Fukushima Accident. *Arhiv za higijenu rada i toksikologiju*, 64 (2013); 561-565.

Radovi u zbornicima s recenzijom

1. Šoštarić, M.; Petrinec, B.; Babić, D. Određivanje radioaktivnosti u zraku - utjecaj uzorkovanja na vremensku korekciju rezultata. *Zbornik radova 10. simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja*. ur: Petrinec, B.; Bituh, T.; Milić, M.; Kopjar, N. HDZZ - CRPA. (2015); 341-346.
2. Šoštarić, M.; Petrinec, B.; Babić, D. ^{137}Cs u tlu i oborini zagrebačke regije. *Zbornik radova 9. simpozija Hrvatskog društva za zaštitu od zračenja*. ur: Knežević, Ž.; Majer, M.; Krajcar Bronić, I. HDZZ - CRPA. (2013); 395-400.