

ДРУШТВО ЗА ЗАШТИТУ ОД ЗРАЧЕЊА СРБИЈЕ И ЦРНЕ ГОРЕ



350РНИК РАДОВА

XXIX СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ Сребрно језеро 27- 29. септембар 2017. године

> Београд 2017. године

SOCIETY FOR RADIATION PROTECTION OF SERBIA AND MONTENEGRO



PROCEEDINGS

XXIX SYMPOSIUM DZZSCG Srebrno jezero 27- 29. September 2017

Belgrade 2017

ЗБОРНИК РАДОВА

XXIX СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ 27-29.09.2017.

Издавачи:

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

За извршног издавача: Др Борислав Грубор

Уредници: Др Јелена Станковић Петровић Др Гордана Пантелић

ISBN 978-86-7306-144-3

[©]Institut za nuklearne nauke "Vinča"

Техничка обрада:

Јелена Станковић Петровић, Гордана Пантелић

Штампа:

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

Тираж:

150 примерака

Година издања: Септембар 2017.

ПРОСТОРНА ДИСТРИБУЦИЈА ПРИРОДНИХ РАДИОНУКЛИДА МЕРЕНА У СРБИЈИ УПОТРЕБОМ БИОМОНИТОРА

<u>Миодраг КРМАР¹</u>, Драган РАДНОВИЋ², Јан ХАНСМАН¹, Минучер MECAPOШ³, Chrisoula BETSOU⁴, Татјана ЈАКШИЋ⁵ и Предраг ВАСИЋ⁵

1) Универзитет у Новом Саду, Департман за физику, Нови Сад, Србија, krmar@df.uns.ac.rs

- 2) Универзитет у Новом Саду, Департман за биологију и екологију, Нови Сад, Србија, dragan.radnovic@dbe.uns.ac.rs
 - 3) Универзитет у Новом Саду, Департман за географију, туризам и хотелијерство, Нови Сад, Србија, minucer.mesaros@dgt.uns.ac.rs
- 4) Aristotle University of Thessaloniki, Physics Department, Thessaloniki, Greece, chbetsou@physics.auth.gr
- 5) Универзитет у Приштини, Природно-математички факултет, Приштина, Србија, tatjana.jaksic@pr.ac.rs, predrag.vasic@pr.ac.rs

САДРЖАЈ

Активност природних радионуклида је мерена у 217 узорака маховина Нурпит сиргеззіforme које су сакупљене крајем лета 2015. године на комплетној територији Републике Србије са циљем да се установи просторна дистрибуција радионуклида. Мерења су вршена NaI детектором облика јаме. Посебна пажња је посвећена ⁷Ве који се већ деценијама користи као природни обележивач у изучавању транспортних процеса у атмосфери. Добијено је да је дистрибуција атмосферске депозиције ⁷Ве неуниформна и да се најмања и највећа измерена вредност разликују девет пута. Просторна дистрибуција ⁷Ве не показује корелацију са рељефом терена за разлику од ¹³⁷Сѕ кога има више у планинским и шумовитим пределима. Присутност радионуклида из урановог и торијумовог низа у доброј мери зависи од структуре и састава тла на локацијама са којих су узимани узорци.

1. УВОД

Космогени радионуклид ⁷Ве се већ деценијама употребљава као природни обележивач у изучавању транспортних процеса у атмосфери [1,2]. До стварања овог радионуклида долази у интеракцијама космичког зрачења са језгрима кисеоника и азота у доњим слојевима стратосфере и вишој тропосфери. Непосредно након настанка ⁷Ве се везује за честице аеросола и на тај начин учествује у атмосферским транспортним процесима. Маховине се као биомонитори преко педесет година користе за мапирање просторне депозиције тешких метала [3] али је до сада учињено само неколико пионирских покушаја [4] да се овом техником проучи просторна дистрибуција радионуклида који се депонују из атмосфере на тло. Осим ⁷Ве у маховинама се може наћи и ¹³⁷Cs, ⁴⁰K, као и чланови низова ²³²Th и ²³⁸U [5]. За разлику од ⁷Ве који до маховина може стићи искључиво преко аеросола сувом и влажном депозицијом, остали радионуклиди у ткивима маховина бивају унесени растварањем прашине. То се у великој мери односи и на ¹³⁷Cs коме је ресуспензија из тла доминантан механизам транспорта [6]. С обзиром на то да до сада није мерена просторна дистрибуција концентрације активности ⁷Ве

у биоиндикаторима на великој области, ово је први покушај да се установи до које је мере она изотропна. Будући да остали поменути радионуклиди до маховина доспевају путем суве депозиције прашине, занимљиво је погледати на који начин њихове концентрације у маховинама осликавају састав и структуру тла.

2. УЗОРКОВАЊЕ, МЕРЕЊЕ И ОБРАДА ПОДАТАКА

Крајем лета 2015. године, 217 узорака маховина је сакупљено на територији Републике Србије са циљем да се установи просторна дистрибуција свих мерљивих радионуклида. Узорковање је вршено на отвореним површинама довољно удаљеним од дрвећа и осталих препрека које би могле утицати на вертикални транспорт аеросола. Узимано је до десетак мањих количина маховина *Нурпит Cupressiforme* на једној локацији величине 50 х 50 m² да би се од њих формирао коначан узорак. Водило се рачуна да тачке узорковања буду равномерно распоређене на целој теритотији Републике Србије, што се може видети на сликама 4 и 5.

Из узорака су одстрањене механичке нечистоће да би након тога били сушени до константне масе на 104 °C. Суви узорци су паковани у пластичне цилиндре (пречник 69 mm, висина 62 mm). Маса ових сувих узорка маховина је била до 60 грама. Непосредно након паковања, узорци су мерени у NaI детектору облика јаме. Најкраћи период од момента узорковања до мерења био је мањи од две недеље. Дужина мерења је била 5000 s за све узорке. У истој дужини трајања је мерен и фон, да би тај спектар био одузиман од спектра добијеног мерењем неколико узорака.

Калибрација NaI детектора је извршена на тај начин што је одабрано 20 узорака из другог сета намењеног сличној анализи па су им гама спектри снимљени на High Purity германијумском (HPGe) детектору релативне ефикасности 32%, као и NaI детектору облика јаме. Ефикасност HPGe детектора је установљена уз помоћ референтних материјала IAEA-327, IAEA-330 и IAEA-447 сличног састава, што је омогућило да се добију апсолутне вредности активности посматраних радионуклида у одабраним узорцима. Ови су узорци послужили као интерни стандарди да се калибрише NaI детектор. Посебна је пажња посвећена избору узорака који су мерени на оба детектора. Наиме, неопходно је било да се избором покрије што је могуће већи опсег величина мерених концентрација активности. У свим од 217 спектара је била видљива гама линија ⁷Ве од 477 keV, као и гама линија ⁴⁰К од 1460 keV. Присуство ¹³⁷Cs није детектовано у свим узорцима. У анализи су употребљене и следеће гама линије видљиве у готово свим спектрима: 239 keV (²¹²Pb), 295 keV и 352 keV (²¹⁴Pb), 609 keV, 1120 keV, 1764 keV и 2204 keV (²¹⁴Bi). Интензитети одабраних гама линија у спектрима (од којих је одузет фонски спектар) су одређени ручно уз помоћ софтвера GENIE-2000. С обзиром на то да је императив био да се измери присуство ⁷Ве (период полураспада 53 дана) у сакупљеним узорцима, није било времена да се чека радиоактивна равнотежа пост-радонских чланова урановог низа, тако да се добијени резултати концентрација активности односе на ²¹⁴Pb и ²¹⁴Ві. Уз претпоставку да је у низу ²³²Тһ радиоативна равнотежа у доброј мери очувана, активности добијене мерењем гама линије ²¹²Pb се могу генералисати на читав низ. Период времена измећу узорковања и мерења је био довољно дуг да се сав гасовити ²²²Rn који би се налазио у узорку у потпуности распадне. Добијене вредности концентрација активности су анализиране помоћу програмског пакета ArcGIS 10. За процену просторне дистрибуције коришћена је метода интерполације инверзног растојања (IDW – Inverse Distance Weight). За интерполацију су коришћени следећи параметри који су дали резултате са најмањим вредностима средње квадратне грешке: пречник области узорковања – 1 степен, максимални број суседних вредности – 15, минималан број суседних вредности – 10, експонент удаљености – 2. Интерполирана површ је приказана на тематским картама методом боја унутар изо-линија које су сврстане у неколико категорија. Интервали категорија су одређени према учесталости појаве вредности, да би локалне варијације мањег интензитета биле што уочљивије. Захваљујући равномерном просторном распореду тачака узорковања и коришћењу већег броја блиских тачака које су узете у обзир приликом интерполације, може се сматрати да је добијен задовољавајући интерполирани модел.

3. РЕЗУЛТАТИ И ДИСКУСИЈА

Опсези детектованих вредности концентрација активности посматраних радионуклида, њихове средње вредности као и медијане су дати у табели 1. Сличне вредности су добијене и од стране других аутора [5-7]. Из табеле се може видети да се најмања и највећа вредност концентрације активности ⁷Ве међусобно разликују за фактор девет. С обзиром на то да се ⁷Ве ствара у вишим слојевима атмосфере готово униформно у области величине Србије, ваздушна струјања као и поједини локални фактори имају знатан утицај на депозицију овог радионуклида [8]. Мала разлика између средње вредности и медијане указују да је дистрибуција ⁷Ве највероватније нормална. У 83 узорка (38%) није примећен садржај ¹³⁷Сѕ који превазилази праг детекције. Но у појединим узорцима детектована је прилично висока концентрација овог радионуклида.

Из табеле 1 се може видети да међусобни однос медијана ⁴⁰K, ²¹²Pb и ²¹⁴Bi одражава вредности концентрација активности ⁴⁰K, ²³²Th и ²³⁸U у земљишту мереном на неким деловима територије Републике Србије [9]. Ова чињеница указује на пасивни захват ових радионуклида путем суве депозиције. На слици 1 се може видети да концентрације активности три радионуклида, који су карактеристични за земљиште, показују добре корелације. Линеарни фит за ²¹⁴Bi и ⁴⁰K је дао вредност r = 0,88, док је за ²¹⁴Bi и ²¹²Pb та вредност r = 0,91. Између ⁷Be и радионуклида карактеристичних за земљиште није уочена корелација.

радионуклид	опсег [Bq/kg]	средња вредност [Bq/kg]	медијана [Bq/kg]
⁷ Be	60 - 538	251(94)	244
40 K	128 - 2235	465(268)	400
¹³⁷ Cs	0 - 296	23(43)	8
²¹² Pb	3 - 259	58(40)	50
²¹⁴ Bi	0 - 793	114(116)	79

Табела 1. Опсег измерених концентрација активности, средње вредности и медијане (у загради иза средње вредности су дате стандардне девијације)

Веома је занимљиво погледати и како изгледају дистрибуције измерених концентрација активности посматраних радионуклида. Дистрибуција свих радионуклида осим ⁷Ве изразито лог-нормална. Очигледан пример лог-нормалне

дистрибуције се уочава код ¹³⁷Cs. На слици 2 је приказана дистрибуција концентрације активности ¹³⁷Cs, као и релативно широка, али ипак нормална дистрибуција мерених вредности концентрације активности ⁷Be. Суштинска разлика између ове две дистрибуције се огледа у томе да се по нормалној дистрибуцији распоређују мерене вредности које су резултат збира дејстава фактора који утичу на статистички растур вредности, док се лог-нормална дистрибуција добија у случајевима када је вредност неке величине зависна од производа дејстава. У конкретном случају се то може објаснити чињеницом да на вредности концентрација краткоживећег ⁷Be делује истовремено неколико фактора, док на пример на радионуклиде карактеристичне за земљиште пресудан утицај има геолошка дистрибуција, па затим низ фактора типа ерозије, растварања, транспорта, итд.



Слика 1. Корелације мерених вредности концентрација активности одабраних радионуклида



Слика 2. Фреквенције појављивања мерених вредности концентрација активности ¹³⁷Сs и ⁷Ве

Слика 3 показује дистрибуције логаритма измерених концентрације активности 40 К и 214 Ві. Може се видети да је логаритам концентрација активности 40 К распоређен по готово правилној нормалној дистрибуцији. Вредности логаритма мерених концентрација активности 214 Ві се групишу у две нормалне дистрибуције које се делимично преклапају. У мањој дистрибуцији се налазе сви они узорци којима је вредност концентрације активности 214 Ві мања од 33 Bq/kg, док су све

више вредности груписане у другу дистрибуцију нормалног облика. Из претходно реченог следи да се на територији са које су узорци узимани налазе две одељене групе узорака, са нижом и вишом концентрацијом ²¹⁴Bi и да је лог-нормална дистрибуција карактеристична за обе групе узорака.



Слика 3. Фреквенције појављивања мерених вредности логаритама концентрација активности ⁴⁰К и ²¹⁴Вi

На слици 4 приказана је просторна дистрибуција мерених вредности концентрација активности ¹³⁷Cs, паралелно са мапом рељефа Републике Србије одакле се види да су најниже концентрације ¹³⁷Cs измерене на северу, у равничарским пределима, где је земљиште у потпуности култивисано. Тај се тренд уочава и у нижим и обрађиваним пределима у долини реке Мораве и Тимока. Највише вредности концентрација активности ¹³⁷Cs су измерене у узорцима који су покупљени у планинским крајевима јужно од Ужица као и у планинама у околини Ђердапа. Једно од могућих објашњења би могло бити и то да је обрађивана земља у већој мери била изложена утицају падавина, које су могле добрим делом и да исперу адсорбовани цезијум. Такође се орањем преврће земљиште што доводи до мешања и смањења концентрације ¹³⁷Cs у површинском слоју са кога прашина доспева до маховина. Постоји могућност да се у планинским пределима где се земљиште не меша орањем, нити се уклања биљни материјал, ¹³⁷Cs остаје на површини што даје већу могућност да се ресуспензијом транспортује до маховина.

На слици 5 приказана је просторна дистрибуција измерених концентрација активности ²¹⁴Ві и ⁷Ве. Највише концентрације активности ²¹⁴Ві детектоване су у маховинама узоркованим непосредно уз границу са Албанијом. На територији Војводине где је све земљиште култивисано без сталног травнатог покривача па је самим тим и миграција прашине знатно вероватнија него у другим деловима Србије су детектоване више вредности концентрација активности ²¹⁴Ві. У обе ове области су детектоване и повишене вредности ⁴⁰К, тако да се може сматрати да су ту маховине биле изложене прашини у већој мери него на другим локацијама. Трећа област са повишеним концентрацијама ²¹⁴Ві у маховинама се уочава на истоку земље, непосрдно уз границу са Бугарском, у регији где тло поседује повишену концентрацију уранијума. Једини рудник уранијума у Србији је био у тој области, а познато је да се у водама из околине Ниша налазе повишене концентрације радона [10].



Слика 4. Просторна дистрибуција мерених концентрација активности ¹³⁷Сs и рељефна мапа Србије



Слика 5. Просторна дистрибуција мерених вредности концентрација активности ²¹⁴Ві и ⁷Ве

Просторна дистрибуција ⁷Ве такође показује неуниформност. Може се видети да се локације на којима су узорковане маховине са највишим и најнижим вредностима налазе на малом међусобном растојању, као на пример на линији између Шапца и Београда. Дистрибуција ⁷Ве се не може довести у везу са рељефом или расподелом обрадивог земљишта или вегетације. Највероватније велики број локалних фактора утиче на ову дистрибуцију. Повишена концентрација мерених активности ⁷Ве по дијагоналном правцу од југоистока ка северозападу може да буде и последица атмосферских кретања или можда продора ваздушних маса из виших слојева атмофере (стратосферске интрузије), што су фактори за које је показано да имају утицај на концентрацију радионуклида у ваздуху [11].

4. ЗАКЉУЧАК

У гама спектрима узорака маховима мереним NaI детектором облика јаме се уочава гама линија ⁷Be и ⁴⁰K, као и гама линије радионуклида чланова низа ²³²Th и ²³⁸U. Гама линија ¹³⁷Cs је примећена код нешто мало више од пола узорака. Међусобни односи концентрација активности ⁴⁰K, ²¹²Pb и ²¹⁴Bi су слични као и одговарајући односи у земљишту, што је и разумљиво пошто ови радионуклиди доспевају до маховина у облику прашине. Из тог разлога дистрибуција ових радионуклида у маховинама може да се доведе у везу са структуром тла на коме расту. Просторна дистрибуција ¹³⁷Cs би могла да се доведе у везу са распоределом обрадивог земљшта и рељефом. Мерене вредности концентрација активности ⁷Be се крећу у веома широком опсегу, мада се може сматрати да је продукција овог радионуклида константна изнад целе површине Србије. Велика неунифомност просторне дистрибуције ⁷Be указује на пресудан утицај локалних фактора, а сама дистрибуција се не може довести у везу са рељефом.

5. ЗАХВАЛНИЦА

Овај је рад реализован као део пројеката "Истраживање климатских промена и њиховог утицаја на животну средину – праћење утицаја, адаптација и ублажавање" (43007) и "Биосенсинг технологије и глобални системи за континуирано и интегрисано управљање екосистемима" (43002) финансираних од стране Министарства просвете, науке и технолошког развоја Републике Србије као и пројекта "Геотрансформација простора Војводине у функцији регионалног развоја" 142-451-2511/2017-01 Покрајинског секретаријата за високо образовање и научноистраживачку делатност.

6. ЛИТЕРАТУРА

- [1] R. Vecchi, G. Valli. ⁷Be in surface air: a natural atmospheric tracer. *J. Aerosol Sci.* 28, 1997, 895-900
- [2] M.A. Hernandez-Ceballos, G. Cineli, M. Marin Ferrer, T. Tolefsen, L. De Felice, E. Nweke, P.V. Tognoli, S. Vanzo, M. De Cort. A climatology of ⁷Be in surface air in European Union. *J. Environ. Radioact.* 141, 2015, 62-70
- [3] A. Buse, D. Noris, H. Harmens, P. Buker, H. Ashenden, G. Millis. Heavy Metals in European Mosses: 2000/2001 Survey. UNECE ICP Vegetation

- [4] M. Krmar, D. Radnović, S. Rakić, M. Matavulj. Possible use of terestrial mosses in detection of atmospheric deposition of ⁷Be over large areas. J. Environ. Radioact. 93, 2007, 53-61
- [5] M. Dowdall, J.P. Gwynn, C. Moran, J. O'Dea, C. Davids, B. Lind. Uptake of radionuclides by vegetation at high Artic location. *Environmental Pollution* 133, 2005, 327–332.
- [6] R. Delfanti, C. Papucci, C. Benco. Mosses as indicators of radioactivity deposition around a coal-fired power station. *The Science of the Total Environment* 227, 1999, 49 – 56.
- [7] J.M. Godoy, L.A. Schuch, D.J.R. Nordemann, V.R.G. Reis, M. Ramalho, J.C. Reico, R.R.A. Brito, M.A. Olech. ¹³⁷Cs, ^{226,228}Ra,²¹⁰Pb and ⁴⁰K concentrations in Antarctic soil, sediment and selected moss and lichen samples. *J. Environ. Radioact.* 41, 1998, 33 45.
- [8] R. Vecch, G. Valli. ⁷Be in surface air: a natural atmospheric tracer. *J. Aerosol Sci.* 28(5), 1997, 895–900.
- [9] I. Bikit, J. Slivka, Lj. Čonkić, M. Krmar, M. Vesković, N. Žikić-Todorović, E. Varga, SĆurčić, D. Mrđa. Radioactivity of the soil in Vojvodina, J. Environ. Radioact.78, 2005, 11-19
- [10] J. Nikolov, N. Todorović, T. Petrović Pantić, S. Forkapić, D. Mrđa, I. Bikit, M. Krmar, M. Vesković. Exposure to radon in the radon spa Niška Banja, Serbia. *Rad. Meas.* 47, 2012, 443-450
- [11] M. Baskaran. Po-210 and Pb-210 as atmospheric tracers and global atmospheric Pb-210 fallout: a review. J. Environ. Radioact. 102, 2011, 500 - 513.

SPATIAL DISTRIBUTION OF NATURAL RADIONUCLIDES MEASURED BY THE USE OF MOSSES

<u>Miodrag KRMAR</u>¹, Dragan RADNOVIC², Jan HANSMAN¹, Minucer MESAROS³, Chrisoula BETSOU⁴, Tatjana JAKSIC⁵ and Predrag VASIC⁵

 University Novi Sad, Department of Physics, Novi Sad, Serbia, krmar@df.uns.ac.rs
University Novi Sad, Department of Biology and Ecology, Novi Sad, Serbia,

dragan.radnovic@dbe.uns.ac.rs

3) University Novi Sad, Department of Geography, Thurism and Hotel Management, Novi Sad, Serbia, minucer.mesaros@dgt.uns.ac.rs

4) Aristotle University of Thessaloniki, Physics Department, Thessaloniki, Greece, chbetsou@physics.auth.gr

5) University Pristina, Faculty of Science, Pristina, Serbia, tatjana.jaksic@pr.ac.rs, predrag.vasic@pr.ac.rs

ABSTRACT

The activities of natural radionuclide were measured in 217 moss samples that were collected at the entire territory of Serbia. Measurements were taken by well-type NaI detector in order to establish the spatial distribution of radionuclides. Special attention was paid to 7Be. It is obtained that the distribution of atmospheric deposition of 7Be is non-uniform; the minimum and maximum measured value differs nine times. No coincidence of the spatial distribution of 7Be with the relief was observed. It was noticed that higher values of 137Cs were detected in mountain and wooded areas. The presence of radionuclides from the Uranium and Thorium chains in the large extent depends on the structure of the soil at the sampling site.