

NASTAVNO-NAUČNOM VEĆU FAKULTETA ZA FIZIČKU HEMIJU

Predmet: Izveštaj Komisije za ocenu i odbranu doktorske disertacije kandidata
diplomiranog fizikohemičara Miloša Živanovića

Odlukom Nastavno-naučnog veća Fakulteta za fizičku hemiju, sa III redovne sednice održane 7. decembra 2016. godine, imenovani smo za članove Komisije za ocenu i odbranu doktorske disertacije kandidata **diplomiranog fizikohemičara Miloša Živanovića**, pod naslovom „**Optimizacija merenja koncentracije radona u zatvorenom prostoru metodom ugljenih filtera**“.

Izrada doktorske disertacije pod navedenim naslovom odobrena je odlukom Nastavno-naučnog veća sa VIII redovne sednice od 12. maja 2016. godine. Na osnovu te odluke, Veće naučnih oblasti prirodnih nauka Univerziteta u Beogradu je na svojoj XXVII sednici od 26. maja 2016. godine dalo saglasnost da se prihvati predložena tema doktorske disertacije.

Kandidat Miloš Živanović je urađenu doktorsku disertaciju predao Fakultetu za fizičku hemiju 2. decembra 2016. godine. Na osnovu pregleda i analize te disertacije podnosimo Veću sledeći

I Z V E Š T A J

A. Prikaz sadržaja disertacije

Doktorska disertacija **diplomiranog fizikohemičara Miloša Živanovića** je napisana na 164 strane, a u skladu sa *Uputstvom za oblikovanje doktorske disertacije Univerziteta u Beogradu*. Sastoјi se od sledećih celina: *Rezime* (4 strane), *Uvod* (3 strane), *Radioaktivnost i jonizujuće zračenje* (12 strana), *Radon* (13 strana), *Ispitivanje koncentracije radona pomoću ugljenih filtera* (12 strana), *Merna nesigurnost i statistički testovi – teorijske postavke* (9 strana), *Eksperimentalne metode i oprema korišćeni u izradi teze* (5 strana), *Analiza podataka iz EPA metode i dodatka i određivanje kalibracionog faktora* (13 strana), *Određivanje spektralnog regiona od interesa i jednostavan model merne nesigurnosti* (13 strana), *Merna kampanja u INN Vinča* (22 strane), *Uticaj korišćenja recikliranih kanistera* (10 strana), *Paralelna merenja i međulaboratorijska poređenja* (7 strana), *Dodatno razmatranje kalibracionog faktora i optimizacija uslova merenja* (27 strana), *Zaključak* (2 strane), *Literatura* – 98 navoda (9 strana), *Biografija autora* (1 strana), *Naučni doprinos* (2 strane). Disertacija sadrži 32 slike i 21 tabelu.

U delu *Rezime* je ukratko predstavljena materija kojom se disertacija bavi, kao i najvažniji zaključci, na srpskom i engleskom jeziku.

U poglavlju *Uvod* je opisana aktuelnost materije koja je bila predmet istraživanja i definisan je cilj doktorske disertacije.

U poglavlju *Radioaktivnost i jonizujuće zračenje*, definisani su osnovni pojmovi vezani za jonizujuće zračenje i radioaktivnost – aktivnost, radioaktivna ravnoteža i tipovi radioaktivnog raspada, kao i osnovne dozimetrijske veličine. Zatim su navedeni izvori jonizujućeg zračenja u prirodi i objašnjeno je kolikom efektivnom dozom doprinose različiti izvori. Takođe su u kratkim crtama opisani biološki efekti jonizujućeg zračenja.

U poglavlju Radon, objašnjeno je na koji način radon nastaje u prirodi i navedeni bitni izotopi radona i njihovi preci i potomci u radioaktivnim nizovima. Takođe su navedene prosečne koncentracije radona u otvorenom i zatvorenom prostoru i interval u kome se koncentracije kreću, a zatim su ti podaci dovedeni u vezu sa rizikom za razvijanje različitih oboljenja, povezanih prvenstveno sa inhalacijom radona. Veza je ostvarena preko sledećih veličina: koncentracija potencijalne alfa-energije (PAEC), radni nivo (WL), radni nivo-mesec (WLM), koncentracija radona ekvivalentna stanju radioaktivne ravnoteže sa potomcima (EEC), faktor ravnoteže (F) i dozni konverzionalni faktor (DCF). U nastavku poglavlja su opisane merne tehnike, biološki efekti radona i regulativa vezana za radon.

U poglavlju *Ispitivanje koncentracije radona pomoći ugljenih filtera*, opisana je metoda ispitivanja koncentracije radona prema dokumentu EPA 520, ili EPA metoda. Predstavljen je istorijat razvoja metode, osnovni principi, detaljno su opisani parametri koji eksplicitno i implicitno ulaze u proračun. Takođe je opisana konstrukcija kanistera, kao i metod kalibracije kanistera i način određivanja kalibracionih faktora i faktora podešavanja. Definisane su i granice detekcije i način postavljanja ugljenih kanistera. U nastavku poglavlja su opisane druge metode koje koriste ugljene kanistere, pobrojane studije koje su koristile ugljene kanistere i izvršen pregled literature, sa posebnim osvrtom na nedostatke metode.

U poglavlju *Merna nesigurnost i statistički testovi – teorijske postavke* je opisan način na koji se određuje merna nesigurnost u skladu sa važećim preporukama Međunarodne organizacije za standardizaciju i Međunarodnog biroa za tegove i mere. Definisane su merna nesigurnost tipa A i B, nivo pouzdanosti, faktor pokrivanja, korelacija mernih nesigurnosti i opisano je određivanje kombinovane merne nesigurnosti.

U poglavlju *Eksperimentalne metode i oprema korišćeni u izradi teze* su navedeni merni uređaji korišćeni u izradi teze. Takođe je opisana aplikacija koja je korišćena za obradu rezultata, a koja je izradena u programskom jeziku C# i dat je algoritam.

U poglavlju *Analiza podataka iz EPA metode i dodatka i određivanje kalibracionog faktora* je izvršena detaljna analiza načina na koji se određuju kalibracioni faktori u skladu sa EPA metodom. Izvršeno je poređenje tabelarno navedenih podataka u EPA dokumentima i grafika iz istih dokumenata i ukazano na razlike između ova dva skupa podataka. Analizirane su funkcije kojima su fitovani EPA podaci, a zatim su predložene drugačije funkcije sa kojima se obezbeđuje bolje slaganje. Razlike dva pristupa su detaljno objašnjene i uporedjene korišćenjem normiranih krivih.

U poglavlju *Određivanje spektralnog regiona od interesa i jednostavan model merne nesigurnosti*, opisan je problem određivanja spektralnog regiona od interesa (ROI) i opisane prednosti i mane korišćenja jednog ROI (ili jednokanalnog analizatora) i nekoliko ROI. Opisan je i način određivanja merne nesigurnosti i budžet merne nesigurnosti do

koga se dolazi direktnom analizom jednačine za računanje koncentracije radona. Na primeru više merenja je pokazano u kom opsegu se ovako određena merna nesigurnost kreće.

U poglavlju *Merna kampanja u INN Vinča* su predstavljeni rezultati određivanja koncentracije radona u laboratorijskom prostoru u INN Vinča. Takođe su određeni sezonski i mesečni korekcioni faktori, sezonske i mesečne varijacije, kao i efektivna doza za zaposlene u laboratoriji.

U poglavlju *Uticaj korišćenja recikliranih kanistera*, opisana je razlika između korišćenja novih i recikliranih kanistera, kao i uticaj dugog skladišćenja kanistera. Pokazano je na koji način se rezultati dobijeni korišćenjem recikliranih kanistera razlikuju i kako je moguće izvršiti korekciju.

U poglavlju *Paralelna merenja i međulaboratorijska poređenja*, prikazani su rezultati poređenja EPA metode i drugih metoda određivanja koncentracije radona, a prvenstveno trag-detektora. Takođe su predstavljeni i rezultati paralelnih merenja sa više ugljenih kanistera i korišćenjem više gama-spektrometara.

U poglavlju *Dodatno razmatranje kalibracionog faktora i optimizacija uslova merenja* je izvršeno dodatno, rigorozno razmatranje merne nesigurnosti. Razmatran je veliki broj doprinos i procenjeno je u kojim uslovima su doprinosi značajni, a u kojim se njihov uticaj smanjuje. Izrađen je detaljni budžet merne nesigurnosti i predloženi dodatni uslovi u cilju smanjenja merne nesigurnosti.

U delu *Zaključci* su sumirani svi zaključci dobijeni na osnovu rezultata koji su predstavljeni u doktorskoj disertaciji.

B. Opis rezultata teze

U ovoj tezi je detaljno analiziran budžet merne nesigurnosti i određeni uslovi merenja koji omogućavaju smanjenje merne nesigurnosti. Pokazano je da su najznačajniji izvori merne nesigurnosti kalibracioni faktor i efikasnost detektora, a u pojedinim slučajevima i odbroj u spektru kanistera. Na mernu nesigurnost kalibracionog faktora najviše utiču kretanje vazduha, ambijentalna temperatura, promena koncentracije radona, određivanje faktora podešavanja i određivanje promene mase kanistera. U tezi je procenjena merna nesigurnost za svaki od ovih doprinosova za različite uslove i opisan način da se merna nesigurnost smanji. Tako se većina doprinosova mernoj nesigurnosti smanjuje ako se vreme izlaganja kanistera ograniči na 48 sati i izlaganja kanistera obavljaju pri niskoj ili srednjoj vlažnosti vazduha (do 50 %). Pored toga, neophodno je kanistere izlagati u prostoru gde ne postoji intenzivno kretanje vazduha, a poželjno je i da se temperatura kreće u što manjem intervalu oko temperature pri kojoj su kanisteri kalibrirani. Da bi se smanjio uticaj promene koncentracije radona, poželjno je kanistere zatvarati ujutru. Pored navedenih najvažnijih doprinosova mernoj nesigurnosti, razmatrani su i drugi doprinosi, kao što su dugovremenska stabilnost gama-spektrometra, merna nesigurnost tipa A pri određivanju kalibracionog faktora, statistika brojanja kanistera itd. Uticaj statistike brojanja kanistera raste kako se rezultat merenja bliži granici detekcije metode, odnosno kako se odbroj u spektru kanistera približava odbroju u spektru fona.

U posebnom poglavlju je razmatran uticaj određivanja promene mase kanistera, jer se

ovaj parametar koristi za korekciju rezultata na vlažnost vazduha prilikom izlaganja kanistera. Pokazano je da korelacija između promene mase kanistera i vlažnosti vazduha nije ista za nove i reciklirane kanistere i da se korišćenjem neadekvatnih krivih unosi značajna sistematska greška. Posle poređenja i analize rezultata objavljenih u EPA metodi i eksperimentalno određenih rezultata, predložena je korekcija za reciklirane kanistere. Takođe je ispitana uticaj dugoročnog skladištenja kanistera na rezultat merenja, pri čemu je utvrđeno da prilikom stajanja dolazi do adsorbovanja vlage u aktivnom uglju, iako je kanister zatvoren po uputstvu proizvođača. Pored korekcije, u tezi je predloženo i da se izvrši posebna kalibracija za reciklirane kanistere ili da se napusti korišćenje faktora podešavanja, što bi omogućilo smanjivanje merne nesigurnosti.

U tezi su prikazani i rezultati merne kampanje sprovedene u laboratorijskim prostorijama Instituta za nuklearne nauke "Vinča". Merna kampanja je trajala 14 meseci, od februara 2015. godine do aprila 2016. godine i za to vreme je izvršeno po 118 merenja na dva merna mesta. Rezultati su iskorišćeni za određivanje mesečnih i sezonskih varijacija i korekcionih faktora. Tako određeni korekcioni faktori se razlikuju za dva merna mesta u januaru, julu i avgustu, što je objašnjeno niskim obimom posla u januaru, što je uzrokovalo da se kalibracione sobe manje provetrvaju i da nastane veća razlika koncentracija radona u različitim prostorijama. S druge strane, visoki obim posla u julu i avgustu (i češće provetrvanje) je izazvao ujednačenje koncentracije radona u celom objektu.

Izvršena je analiza načina konstruisanja krivih kalibracionog faktora i krivih faktora podešavanja, na osnovu eksperimentalnih podataka iz EPA metode i dodatka EPA metode. Predloženo je fitovanje podataka polinomskim funkcijama i zatim su takve funkcije poređene sa originalnim fitovanjem. Pored toga, predložen je i drugačiji način kalibracije, koji bi pretpostavljao napuštanje korišćenja faktora podešavanja.

U tezi je takođe opisan način na koji se obavlja kontrola kvaliteta za EPA metodu i prikazane su i analizirane kontrolne karte. Analiziran je i uticaj ponovljenih merenja istog kanistera i postavljanja više kanistera na istom mernom mestu, čime je ispitana uticaj razlika između kanistera iz iste serije, ponovljivosti merenja kanistera, pozicioniranja na gama-spektrometu, promena vrednosti fona i primene korekcije na period poluraspada radona. Prikazani su i rezultati paralelnih merenja i poređenja sa drugim metodama i pokazano je dobro slaganje rezultata (uzevši u obzir merne nesigurnosti) osim u slučaju velikih promena koncentracije radona (za red veličine).

C. Uporedna analiza rezultata disertacije sa rezultatima iz literature

U literaturi nije moguće pronaći mnogo podataka o mernoj nesigurnosti EPA metode ili o načinima optimizacije merenja. Tako u EPA metodi (Gray, D.J., Windham, S.T., 1987, EERF Standard Operating Procedures for Radon-222 Measurement Using Charcoal Canisters, EPA 520/5-87-005) merna nesigurnost nije razmatrana. U WHO vodiču (WHO, 2009, WHO Handbook on Indoor Radon: A Public Health Perspective, World Health Organization) je merna nesigurnost procenjena na 10 % do 30 % bez analize, a Žukovski i saradnici (Zhukovski, M., Onischenko, A., Bastrikov, V., 2010, Radon Measurements - Discussion of Error Estimates for Selected Methods, Applied Radiation and Isotopes, 68,

pp. 816 – 820) su mernu nesigurnost procenili na 25 % do 35 %, uz kratku analizu. S druge strane, u disertaciji je naveden i procenjen čitav niz doprinos mernoj nesigurnosti koji u dostupnoj literaturi nisu analizirani. Analizom eksperimentalnih rezultata i literature je pokazano da, za razliku od navedenih procena dostupnih u literaturi, merna nesigurnost metode može biti čak i 70 %, a da je u optimalnim uslovima oko 20 %. Predloženi su dodatni uslovi za postavljanje kanistera koji omogućavaju da merna nesigurnost bude što niža.

Pojedini autori su kritikovali EPA metodu, pri čemu su posebno ukazali na uticaj promene koncentracije radona i vlažnosti vazduha na rezultat merenja (Ronca-Battista, M., Gray, D., 1988, *The Influence of Changing Exposure Conditions on Measurements of Radon Concentrations With the Charcoal Adsorption Technique*, *Radiation Protection Dosimetry*, 24(1), pp. 361-365), zatim na nekritičko korišćenje recikliranih kanistera (Jenkins, P.H., 2002, *A Critique of the "EPA Method" for Analyzing and Calibrating Charcoal Canisters for Radon Measurements*, Proceedings, 2002 International Radon Symposium Proceedings, American Association of Radon Scientists and Technologists, Inc., USA) i uticaj visoke vlažnosti vazduha ili prisustva drugih hemijskih vrsta, kao što je CO₂ (Gervino, G., Bonetti, R., Cigolini, C., Marino, C., Prati, P., Pruitt, L., 2004, *Environmental Radon Monitoring: Comparing Drawbacks and Performances of Charcoal Canisters, Alpha-Track and E-PERM Detectors*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 518, pp. 452–455). U ovoj tezi su navedene kritike analizirane. Kada je u pitanju korišćenje recikliranih kanistera, predložena je korekcija koja bi se primenila na promenu mase kanistera, ili alternativno, posebna kalibracija za reciklirane kanistere. Analizom literaturnih podataka i eksperimentalnih rezultata, a posebno rezultata međulaboratorijskog poređenja, utvrđeno je da promena koncentracije radona zaista značajno utiče na rezultat merenja, ali u manjoj meri nego što su odredili Ronka i Batista. Na promenu koncentracije radona na mernom mestu nije moguće uticati, ali je u tezi utvrđeno da je uticaj na rezultat manji ako se kanister zatvori u momentu kada je koncentracija najviša, što je u većini objekata rano ujutru. Analizom izvršenom u tezi je potvrđeno da uticaj vlažnosti vazduha takođe može biti veoma veliki i veći je što je veća vlažnost vazduha i duže vreme izlaganja. Ovaj uticaj je moguće smanjiti ograničavanjem vremena izlaganja na 48 sati.

Dugoročna merna kampanja pomoću ugljenih filtera, kakva je izvedena u ovoj doktorskoj disertaciji, nije opisana u dostupnoj literaturi, pa nije moguće porebiti rezultate.

D. Naučni radovi i saopštenja u kojima su publikovani rezultati iz doktorske disertacije

M13 Monografskastudija/poglavlje u knjizi M11 ili rad u tematskom zborniku vodećeg međunarodnog značaja

- 1) Pantelić, G., Živanović, M., Krneta Nikolić, J., Eremić Savković, M., Rajačić, M., Todorović, D., (2015b), Chapter 9: Indoor Radon Activity Concentration Measurement Using Charcoal Canister, in: Radon, Geology, Environmental Impact and Toxicity Concerns, Nova Publishers, New York, USA.

M21 Rad u vrhunskom međunarodnom časopisu

- 1) Pantelić, G., Eremić Savković, M., Živanović M., Nikolić, J., Rajačić, M., Todorović, D., (2014), Uncertainty Evaluation in Radon Concentration Measurement Using Charcoal Canister, *Applied Radiation and Isotopes*, 87, pp. 452-455.

M22 Rad u istaknutom međunarodnom časopisu

- 1) Živanovic, M.Z., Nikolic, J.D., Apostol, A.I., Anagnostakis, M.J. (2012), Analysis of Interferences from Full Energy Peaks in Gamma Spectrometry of NORM and TENORM Samples, *Nuclear Technology and Radiation Protection*, 27(4), pp. 380-387.

M23 Rad u međunarodnom časopisu

- 1) Živanovic, M.Z., Pantelić, G.K., Krneta Nikolić, J.D., Rajačić, M.M., Todorović, D.J., (2016), Radon Measurements with Charcoal Canisters: Temperature and Humidity Considerations, *Nuclear Technology and Radiation Protection*, 31(1), pp. 65-72.

M33 Saopštenje sa međunarodnogskupa, štampano u celini

- 1) Pantelić, G., Živanović, M., Rajačić, M., Nikolić, J., Todorović, D., (2013), Radon Concentration Intercomparison in Serbia, *Proceedings of the Ninth Symposium of the Croatian Radiation Protection Association*, pp. 193-198, Krk, Hrvatska, 10-12 april 2013.
- 2) Pantelić, G., Živanović, M., Rajačić, M., Krneta Nikolić, J., Todorović, D., (2015a), QA/QC for Radon Concentration Measurement with Charcoal Canister, *Proceedings of the Tenth Symposium of the Croatian Radiation Protection Association*, pp. 384-389, Šibenik, Hrvatska, 15-17. april 2015.

M63 Saopštenje sa skupa nacionalnog značaja, štampano u celini

- 1) Živanović, M., Pantelić, G., Krneta Nikolić, J., Rajačić, M., Todorović, D., (2015), Opravdanost korišćenja EPA krivih za korekciju na relativnu vlažnost vazduha kod merenja radona pomoću ugljenih filtera, XXIII simpozijum DZZSCG, pp. 234-240, Vršac, 30. septembar – 2. oktobar 2015

E. Zaključak komisije

Na osnovu izloženog, komisija zaključuje da rezultati kandidata, diplomiranog fizikohemičara Miloša Živanovića, prikazani u okviru ove doktorske disertacije, predstavljaju originalan i značajan naučni doprinos oblasti fizičke hemije, posebno u domenu zaštite od zračenja. Doprinos se ogleda u definisanju optimalnih uslova za određivanje koncentracije radona u zatvorenom prostoru metodom ugljenih filtera, što bi omogućilo smanjivanje merne nesigurnosti, odnosno bolje poznavanje rezultata merenja, zatim detaljnom izučavanju merne nesigurnosti metode i određivanju korekcije za merenja izvršena recikliranim kanisterima.

Deo rezultata doktorske disertacije kandidata je publikovan u poglavlju u monografiji međunarodnog značaja, časopisima međunarodnog značaja, kao i na domaćim i međunarodnim konferencijama.

Na osnovu izloženog, Komisija pozitivno ocenjuje doktorsku disertaciju diplomiranog fizikohemičara Miloša Živanovića, pod naslovom „**Optimizacija merenja koncentracije radona u zatvorenom prostoru metodom ugljenih filtera**“ i predlaže Nastavno-naučnom veću Fakulteta za fizičku hemiju da je prihvati i odobri njenu javnu odbranu, čime bi bili ispunjeni svi uslovi da kandidat stekne naziv *doktor fizičkohemijskih nauka*.

ČLANOVI KOMISIJE:

dr Šćepan Miljanić
redovni profesor Fakulteta za fizičku hemiju u пензији

dr Gordana Pantelić
naučni saradnik Instituta za nuklearne nauke „Vinča“

dr Marko Daković
docent Fakulteta za fizičku hemiju

dr Miloš Mojović
vanredni profesor Fakulteta za fizičku hemiju

U Beogradu, 14. decembra 2016.