



УНИВЕРЗИТЕТ У КРАГУЈЕВЦУ
ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ

Љиљана Гулан

**МЕРЕЊЕ РАДИОНУКЛИДА У ТЛУ И
РАДОНА У ЗАТВОРЕНИМ ПРОСТОРИЈАМА
НА КОСОВУ И МЕТОХИЈИ**

Докторска дисертација

Крагујевац, 2014

Идентификациона страница докторске дисертације

<i>I Аутор</i>	
Име и презиме:	Љиљана Гулан
Датум и место рођења:	04.06.1973. године, Приштина
Садашње запослење:	Асистент ПМФ-а у Косовској Митровици, Универзитета у Приштини
<i>II Докторска дисертација</i>	
Наслов:	Мерење радионуклида у тлу и радона у затвореним просторијама на Косову и Метохији
Број страница:	172
Број слика:	37
Број библиографских података:	198
Установа и место где је рад израђен:	ПМФ, Крагујевац
Научна област (УДК):	539.163
Ментор:	Др Драгана Крстић, ПМФ Крагујевац
<i>III Оцена и одбрана</i>	
Датум пријаве теме:	03.07.2013.
Број одлуке и датум прихватања докторске дисертације:	
<p>Комисија за оцену подобности теме и кандидата:</p> <ul style="list-style-type: none"> ❖ Др Драгослав Никезић, редовни професор ПМФ-а у Крагујевцу ужа научна област: Радијациона физика ❖ Др Зора Жунић, виши научни сарадник ИНН Винча у Београду ужа научна област: Радијациона физика ❖ Др Гордана Милић, доцент, ПМФ-а у Приштини ужа научна област: Експериментална физика ❖ Др Драгана Крстић, доцент ПМФ-а у Крагујевцу ужа научна област: Радијациона физика, ментор 	
<p>Комисија за оцену и одбрану докторске дисертације:</p> <ul style="list-style-type: none"> ❖ Др Драгослав Никезић, редовни професор Природно-математичког факултета Универзитета у Крагујевцу, ужа научна област: Радијациона физика ❖ Др Зора Жунић, виши научни сарадник Института за Нуклеарне Науке Винча у Београду, ужа научна област: Радијациона физика ❖ Др Гордана Милић, доцент, Природно-математичког факултета у Косовској Митровици Универзитета у Приштини, ужа научна област: Експериментална физика ❖ Др Драгана Крстић, доцент Природно-математичког факултета Универзитета у Крагујевцу, ужа научна област: Радијациона физика, ментор 	
Датум одбране дисертације:	

Као у радиоактивном низу...

Све је започело драгоценим саветима др. Драгослава Никезића, редовног професора ПМФ-а у Крагујевцу. Онда је радон одиграо пресудну улогу – пристигла је несебична помоћ др. Гордане Милић удружена са великим ентузијазмом др. Зоре С. Жунјић. Под менторством др. Драгане Крстић ова дисертација добила је коначан изглед. Зато изражавам захвалност комисији на изузетним стручним сугестијама и издвојеном времену током израде овог рада.

Захвалност дугујем колегама и студентима ПМФ-а у Косовској Митровици, Универзитета у Приштини, који су несебично помогли реализацију експерименталног дела дисертације.

Својим драгим пријатељима и родбини, за интересовање, подршку и помоћ, за непосредно или посредно учешће у стварању овог дела: ХВАЛА!!!

На крају,

Бескрајна захвалност мојој породици на стрпљењу и разумевању. Све се можда не би догодило да непрекидну инспирацију за остварење овог великог подухвата нисам налазила у најближима:

Михаилу, Јани, Јовану и Игору.

*Својим родитељима
Љубици и Радовану Чолићу
за неизмерну љубав и подршку*

Списак слика

Слика 1.1. Просечна годишња ефективна доза од различитих извора зрачења, [UNSCEAR 2008]

Слика 1.2. Радиоактивни низ урана ^{238}U

Слика 1.3. Радиоактивни низ урана ^{235}U

Слика 1.4. Астрофизички сат [Magill и Galy, 2005]

Слика 1.5. Радиоактивни низ торијума ^{232}Th

Слика 1.6. Шема распада ^{40}K [Lederer и др, 1978; Harb, 2003]

Слика 1.7. Шема распада ^{137}Cs

Слика 2.1. Приказ путања атома радона између и унутар два зрна минерала

Слика 2.2. Понашање радонових потомака у близини површине објекта и уградња неких атома у танак подповршински слој [Nikezic и Yu, 1999]

Слика 3.2. Регионална подела Косова и Метохије са општинама (бројем локација) у којима су извршена мерења

Слика 3.3. Геолошке формације Косова и Метохије [4]

Слика 4.1. Спектар гама зрачења узорка земљишта

Слика 4.2. Енергетска калибрација коришћеног детектора

Слика 4.3. Крива зависности ефикасности коришћеног детектора од енергије гама зрачења

Слика 5.1. Изглед дифузионе коморе RSKS са CR-39 детектором на дну

Слика 5.2. Аутоматски Politrack и TAsL системи за читавање трагова на CR-39 детекторима

Слика 5.3. Изглед и место мерења RADUET детектором

Слика 5.4. Изглед Gamdata детектора

Слика 5.5. Изглед и место постављања DTPS/DRPS детектора

Слика 6.1. Фреквентна расподела ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs у испитиваним узорцима земљишта са 74 локације на Косову и Метохији

Слика 7.1. Фреквентна расподела концентрације радона у просторијама у I периоду

Слика 7.2. Фреквентна расподела концентрације радона у просторијама у II периоду

Слика 7.3. Концентрације радона у просторијама 25 објеката мерене CR-39 (Gamdata) детекторима

Слика 8.1. Допринос ефективној дози услед излагања ^{137}Cs из два слоја земљишта на 15 локација

Слика 8.2. Индекс радијационог ризика H_{ex} услед излагања ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K на 74 локације на Косову и Метохији

Слика 8.3. Фреквентна расподела ефективне дозе услед излагања радону у 113 објеката на Косову и Метохији

Слика 8.4. Кумулативна расподела годишње ефективне дозе услед излагања радону у 113 објеката на Косову и Метохији

Слика 8.5. Кумулативна расподела годишње ефективне дозе услед излагања торону у 48 објеката на Косову и Метохији

Слика 9.1. Корелација између измерених активности ^{226}Ra и ^{232}Th у 74 узорка тла

Слика 9.2. Корелација између измерених активности ^{226}Ra и ^{40}K у 74 узорка тла

Слика 9.3. Корелација између измерених активности ^{232}Th и ^{40}K у 74 узорка тла

Слика 9.4. Корелација између измерених активности ^{226}Ra и ^{137}Cs у 74 узорка тла

Слика 9.5. Корелација између измерених активности ^{232}Th и ^{137}Cs у 74 узорка тла

Слика 9.6. Корелација између измерених активности ^{40}K и ^{137}Cs у 74 узорка тла

Слика 9.7. Корелација између концентрација ^{222}Rn и ^{220}Rn у затвореним просторијама

Слика 9.8. Корелација између концентрација ^{222}Rn у затвореним просторијама и специфичне активности ^{226}Ra у тлу у непосредној близини 88 објеката

Слика 9.9. Корелација између концентрација радона мерених CR-39 (RSKS) и CR-39 (RADUET) детекторима

Списак табела

- Табела 1.1.** Опсег концентрација ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K у руди урана и неким стенама [Kogan и др, 1971; Durrani и Ilić, 1997]
- Табела 1.2.** Подручја са повећаном природном радиоактивношћу [UNSCEAR, 2000].
- Табела 1.3.** Годишње ефективне дозе од природних извора зрачења [UNSCEAR, 2008]
- Табела 1.4.** Ткивни тежински фактори [ICRP 60, 1991; ICRP 103, 2007]
- Табела 2.1.** Коефицијенти дифузије за радон [UNSCEAR, 1982]
- Табела 2.2.** Концентрације радона ^{222}Rn у различитим срединама [Fleischer, 1988; Durrani и Ilić, 1997]
- Табела 2.3.** Енергије и домети α – честица из распада радона и торона у води и ваздуху
- Табела 3.1.** Преглед мерења радона на Косову и Метохији (период 2009-2012)
- Табела 4.1.** Принос и ефикасност детектора за одговарајуће енергије гама зрачења радионуклида
- Табела 6.1.** Специфичне активности ^{226}Ra по дубини узоркованог земљишта и одговарајуће стандардне девијације са 15 локација Косова и Метохије
- Табела 6.2.** Специфичне активности ^{232}Th по дубини узоркованог земљишта и одговарајуће стандардне девијације са 15 локација Косова и Метохије
- Табела 6.3.** Специфичне активности ^{40}K по дубини узоркованог земљишта и одговарајуће стандардне девијације са 15 локација Косова и Метохије
- Табела 6.4.** Специфичне активности ^{137}Cs по дубини узоркованог земљишта и одговарајуће стандардне девијације са 15 локација Косова и Метохије
- Табела 6.5.** Дескриптивне статистике за вредности специфичних активности радионуклида у профилним узорцима земљишта са 15 локација на Косову и Метохији
- Табела 6.6.** Специфичне активности ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs са стандардним девијацијама у узорцима тла (0-5 cm) са 59 локација на Косову и Метохији
- Табела 6.7.** Дескриптивна статистика специфичних активности ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs у узорцима тла (0-5 cm) са 59 локација на Косову и Метохији
- Табела 6.8.** Дескриптивна статистика специфичних активности радионуклида по регионима
- Табела 6.9.** Средње вредности специфичних активности природних радионуклида у неким земљама света
- Табела 7.1.** Концентрација радона у 25 објеката – прва серија мерења

- Табела 7.2.** *Дескриптивна статистика концентрације радона у 25 објеката мерене CR-39 детекторима (RSKS)*
- Табела 7.3.** *Локације, спратност и просечне годишње концентрације радона у просторијама 63 објекта*
- Табела 7.4.** *Дескриптивна статистика концентрације радона у 63 објекта мерене CR-39 детекторима (RSKS)*
- Табела 7.5.** *Концентрације радона и торона у 49 објеката мерене CR-39 (RADUET) детекторима*
- Табела 7.6.** *Дескриптивна статистика концентрације радона у 49 објеката*
- Табела 7.7.** *Дескриптивна статистика концентрације торона у 49 објеката*
- Табела 7.8.** *Равнотежне еквивалентне концентрације радона (EERC) и торона (EETC)*
- Табела 7.9.** *Дескриптивна статистика равнотежних еквивалентних концентрација радона (EERC)*
- Табела 7.10.** *Дескриптивна статистика равнотежних еквивалентних концентрација торона (EETC)*
- Табела 7.11.** *Дескриптивна статистика концентрације радона мерене Gamdata детекторима*
- Табела 7.12.** *Дескриптивна статистика радона по регионима*
- Табела 7.13.** *Просечне концентрације радона у затвореним просторијама у свету*
- Табела 8.1.** *Јачине апсорбоване дозе гама зрачења D и годишње ефективне дозе E_E услед излагања ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K ; годишње ефективне дозе E_{Cs} услед излагања ^{137}Cs на 74 локације на Косову и Метохији*
- Табела 8.2.** *Дескриптивна статистика за јачину дозе D , ефективне дозе E_E и E_{Cs} и индекс радијационог ризика H_{ex} услед спољашњег излагања радионуклидима на 74 локације на Косову и Метохији*
- Табела 8.3.** *Јачина апсорбоване дозе у ваздуху пореклом од терестријалних радионуклида у земљама света [UNSCEAR, 2008]*
- Табела 8.4.** *Дескриптивна статистика за ефективну дозу услед излагања радону у 113 објеката*
- Табела 8.5.** *Вредности дозних конверзионих фактора DCF (у одговарајућим јединицама) препоручене ICRP и UNSCEAR публикацијама*
- Табела 9.1.** *Пирсонови коефицијенти корелације за радионуклиде*
- Табела 9.2.** *Пирсонови коефицијенти корелације за радионуклиде и радон*
- Табела 9.3.** *Пирсонови коефицијенти корелације за концентрације радона, торона и њихових потомака измерене различитим врстама детектора*

САЖЕТАК

У овом раду су гамаспектрометријски одређене активности радионуклида ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs у 104 узорка земљишта са 74 локације на Косову и Метохији; њихове средње вредности износе: 33, 35, 608 и 48 Bq kg^{-1} , респективно. Средња вредност јачине дозе гама зрачења коју прима становништво услед спољашњег излагања природним изворима јонизујућих зрачења из тла износи 61.5 nGy h^{-1} и слична је добијеним вредностима у суседним земљама. Допринос ефективної дози од природних радионуклида је 87% ($75.4 \text{ }\mu\text{Sv y}^{-1}$), док је допринос дози од ^{137}Cs 13% ($11.6 \text{ }\mu\text{Sv y}^{-1}$); средња вредност индекса радијационог ризика услед спољашњег излагања је 0.35. Измерене активности и процењени параметри указују да на Косову и Метохији не постоји значајан ризик за становништво услед спољашњег излагања изворима јонизујућих зрачења из тла. Утврђено је постојање јаке корелације између природних радионуклида, што говори о њиховој геохемијској повезаности; показано је да нема корелација природних радионуклида са вештачким радионуклидом ^{137}Cs .

У раду су представљени и резултати мерења радона, торона и њихових потомака у затвореним просторијама пасивном интеграционом методом помоћу траг детектора (CR-39 и LR115) на 113 локација на Косову и Метохији. Према просечној концентрацији радона из две просторије у објектима (129 Bq m^{-3}), средња годишња ефективна доза услед излагања радону и његовим потомцима износи 3.25 mSv y^{-1} . Идентификоване су локације на којима постоји повећан ризик услед излагања радону у затвореним просторијама; узрок је повишен садржај радионуклида у тлу. Процењена годишња ефективна доза услед излагања торону и њиховим потомцима је 4 пута већа од просечне светске вредности.

У оквиру рада први пут су директно мерене равнотежне еквивалентне концентрације радона (EERC) и торона (EETC) и на основу њих су одређени равнотежни фактори за радон и торон за атмосфере затворених просторија и они износе 0.47 и 0.021, респективно. Утврђене су слабе позитивне корелације ^{226}Ra и ^{232}Th са изотопом радона ^{222}Rn ; између осталих радионуклида и изотопа радона нема корелација. Анализиране су и дискутоване корелације између измерених концентрација радона и торона ($R^2=0.032$) и корелације између одговора различитих врста детекторских система.

САДРЖАЈ

УВОД.....	1
Г) ОПШТИ ДЕО	
1. РАДИОНУКЛИДИ У ПРИРОДИ	6
1.1 Природни радионуклиди	7
1.1.1 Радиоактивни низови.....	7
1.1.2 Садржај и карактеристике радионуклида у стенама, минералима и тлу.....	12
1.1.3 NORM и TENORM	16
1.1.4 Области (региони) са природно повећаном радиоактивношћу.....	17
1.2 Вештачки радионуклиди	19
1.3 Утицај јонизујућег зрачења на здравље.....	20
1.3.1 Пuteви излагања	20
1.3.2 Токсичност радионуклида.....	21
1.3.3 Ризик и штетност од јонизујућег зрачења	22
1.4 Процена излагања јонизујућим изворима зрачења.....	23
1.4.1 Заштита од јонизујућег зрачења.....	23
1.4.2 Неке карактеристичне величине у радијационој физици	25
1.4.3 Израчунавање јачине дозе од природних радионуклида	27
1.4.4 Израчунавање годишње ефективне дозе од природних радионуклида.....	28
1.4.5 Израчунавање индекса радијационог ризика	28
1.4.6 Израчунавање јачине дозе од ^{137}Cs	29
1.4.7 Израчунавање годишње ефективне дозе од ^{137}Cs	29
2. РАДОН У ПРИРОДИ	30
2.1 Радон и торон.....	30
2.1.1 Физичке и хемијске особине.....	30
2.1.2 Извор	31
2.1.3 Еманација.....	31

2.1.4	Транспорт	34
2.1.5	Понашање у атмосферском ваздуху	37
2.2	Радон и торон у затвореним просторијама	39
2.2.1	Фактори који утичу на концентрацију радона у затвореним просторијама ...	39
2.2.2	Вертикална и хоризонтална расподела.....	43
2.2.3	Потомци радона и торона.....	44
2.3	Величине које карактеришу концентрацију радона, торона и потомака.....	47
2.3.1	Равнотежне еквивалентне концентрације	47
2.3.2	Равнотежни фактори.....	47
2.3.3	РАЕС, слободна и припојена фракција.....	48
2.4	Процена излагања радону.....	50
2.4.1	Инхалација и ингестија	50
2.4.2	Израчунавање годишње ефективне дозе од радона и његових потомака	52
2.4.3	Израчунавање годишње ефективне дозе од торона и његових потомака	53
3.	ПОДРУЧЈА ИСТРАЖИВАЊА И ГЕОЛОГИЈА КОСОВА И МЕТОХИЈЕ.....	55
3.1	Подручја истраживања	55
3.1.1	Хронологија мерења	58
3.1.2	Селекција локација и објеката	59
3.2	Геолошке карактеристике	60
3.2.1	Хронологија настанка различитих геолошких формација по регионима	60
4.	МЕТОД ОДРЕЂИВАЊА СПЕЦИФИЧНИХ АКТИВНОСТИ РАДИОНУКЛИДА У ТЛУ	63
4.1	Сакупљање и припрема узорак земљишта.....	63
4.2	Гамаспектрометријска анализа	64
4.2.1	Калибрација енергије и ефикасности HPGe детектора	64
4.2.2	Одређивање специфичних активности радионуклида у тлу	67
5.	МЕТОД МЕРЕЊА И ДЕТЕКЦИЈЕ РАДОНА	69
5.1	Пасивни интеграциони метод мерења траг детекторима.....	69
5.2	Врсте коришћених детектора.....	71
5.2.1	CR-39 детектори.....	71
5.2.2	LR115 детектори	75

II) ИСТРАЖИВАЧКИ ДЕО

6.	РЕЗУЛТАТИ МЕРЕЊА СПЕЦИФИЧНИХ АКТИВНОСТИ РАДИОНУКЛИДА У ТЛУ	78
6.1	Специфичне активности радионуклида – по дубини земљишта	78
6.2	Специфичне активности радионуклида – површински слој земљишта	84
6.3	Фреквентна расподела радионуклида	89
6.4	Расподела радионуклида по регионима	90
6.5	Поређење вредности специфичних активности радионуклида у тлу са вредностима земаља у свету	91
7.	РЕЗУЛТАТИ МЕРЕЊА КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНА У ЗАТВОРЕНИМ ПРОСТОРИЈАМА	95
7.1	Прва серија мерења радона	95
7.2	Друга серија мерења радона, торона и њихових равнотежних еквивалентних концентрација	99
7.2.1	Концентрације радона измерене CR-39 (RSKS) детекторима	99
7.2.2	Концентрације радона и торона измерене CR-39 (RADUET) детекторима ..	105
7.2.3	Равнотежне еквивалентне концентрације радона и торона измерене LR115 (DTPS/DRPS) детекторима	111
7.3	Трећа серија мерења радона	116
7.4	Расподела радона по регионима	118
7.5	Поређење са резултатима мерења радона у другим земљама света	121
7.6	Поређење са резултатима мерења торона у другим земљама света	122
8.	ПРОЦЕНА ИЗЛОЖЕНОСТИ СТАНОВНИШТВА КОСОВА И МЕТОХИЈЕ ЈОНИЗУЈУЋИМ ИЗВОРИМА ЗРАЧЕЊА	124
8.1	Процена спољашњег излагања терестријалним радионуклидима	124
8.1.1	Јачина апсорбоване дозе гама зрачења у ваздуху и годишње ефективне дозе услед излагања радионуклидима	124
8.1.2	Индекс радијационог ризика услед излагања ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K	128
8.1.3	Поређење са резултатима истраживања у другим земљама у свету	130
8.2	Процена унутрашњег излагања радону, торону и њиховим потомцима на Косову и Метохији	131
8.2.1	Годишња ефективна доза услед излагања радону	131
8.2.2	Годишња ефективна доза услед излагања торону	135

9. КОРЕЛАЦИОНА АНАЛИЗА.....	137
9.1 Корелација између радионуклида.....	137
9.2 Корелација између изотопа радона	140
9.3 Корелација између радионуклида и радона.....	141
9.4 Корелација између измерених концентрација различитим врстама детектора ...	143
10. ПРЕГЛЕД РАДОВА ПУБЛИКОВАНИХ ИЗ ОВЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ	146
ЗАКЉУЧАК	149
ЛИТЕРАТУРА.....	155
ПРИЛОГ.....	172
ПУБЛИКОВАНИ РАДОВИ.....	172

УВОД

Овај рад припада области радијационе физике, прецизније речено једном њеном делу, радиоекологији. Радиоекологија се убрзано развијала од друге половине прошлог века, ширила се на природне науке: физику, хемију, биологију и медицину постепено заузимајући значајно место у заштити човека и животне средине. Резултати многобројних мултидисциплинарних истраживања у области радиоекологије, окосница су развоја различитих грана радиобиологије (радијациона генетика, биохемија, молекуларна радиобиологија) и гео-наука (геофизика, геохемија, метеорологија, хидрологија), као и мониторинга животне средине, с примарним циљем заштите од јонизујућег зрачења.

Главна тема представљеног рада је мерење радионуклида у тлу и радона у затвореним просторијама. Истраживања радионуклида и радона, који су пореклом терестријални извори јонизујућег зрачења, као и међусобне корелације, изузетно су актуелна последњих деценија у свету. Она су повезана са знањем да је живи свет на Земљи перманентно изложен изворима јонизујућег зрачења.

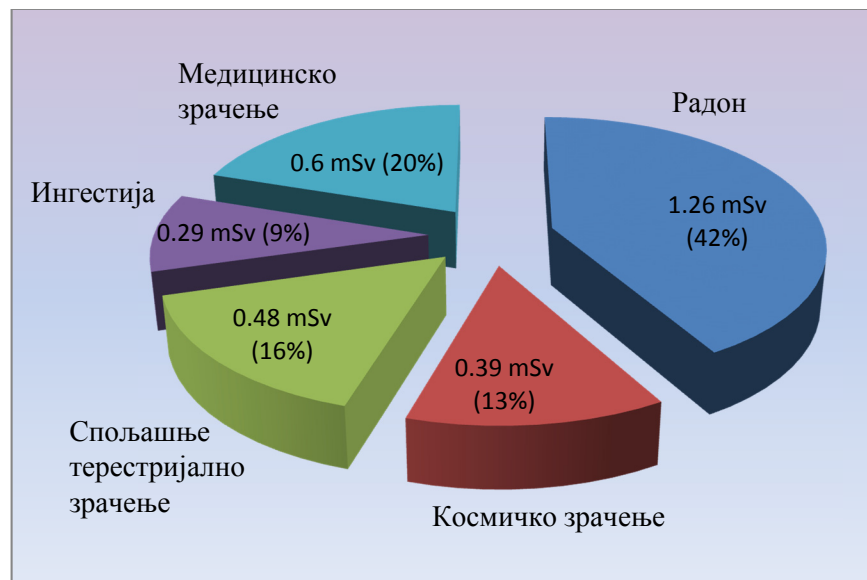
Природно зрачење у животној средини потиче од:

- примордијалних (природних) радионуклида у стенама и минералима Земље;
- непрекидног стварања радионуклида у космосу и атмосфери;
- космичког зрачења.

Зрачење примордијалних радионуклида (^{238}U , ^{232}Th и ^{40}K) чини 85% укупног природног зрачења. Њихов садржај у земљишту зависи од геолошке структуре посматране области. Другу компоненту природног зрачења чине космогени радионуклиди. Они настају у атмосфери у интеракцијама космичког зрачења са језгрима водоника, азота, аргона, кисеоника и др.

Истраживања спроведена у свету последњих деценија указују да више од 2/3 укупне годишње дозе коју прими становништво потиче од природних извора зрачења (слика 1.1) [UNSC EAR, 2008]. Примљена доза зависи од миграције радионуклида у животној средини, кроз ланце исхране, од контаминације посматране области, као и од животних навика становништва. У свету постоје области са повећаном природном радиоактивношћу у

Бразилу, Индији, Ирану, југозападном делу Француске, Кини, Русији, САД, итд. Међутим, епидемиолошке студије спроведене у овим областима не указују на значајне корелације између нивоа природне радиоактивности и учесталости канцера и морталитета [Veiga и Koifman, 2005; Tao и др, 2000; Mosavi-Jarrahi и др, 2005].



Слика 1.1. Просечна годишња ефективна доза од различитих извора зрачења [UNSCEAR, 2008]

Посебан проблем и значајну научну контраверзу представља ефекат ниских доза. Препоручено је од стране Међународне комисије за радиолошку заштиту (ICRP) и прихваћено од стране научне јавности да вероватноћа стохастичких ефекта опада линеарно са дозом и да нема прага дозе (*линеарна хипотеза без прага - LNTH hypothesis*). Међутим, постоји велики број противника ове хипотезе који тврде постојање радијационог хистерезиса, тј. идеје да су ниске дозе зрачења корисне по људски организам. (Подаци указују да се адаптивни одговори на ефекте зрачења код сисара огледају у повећању репродуктивне способности и раста).

Такође, медицинско излагање у терапији и дијагностици знатно доприноси укупној дози. На слици 1.1. приказана је „карта доза“ према којој медицинско излагање доприноси око 20 % укупног излагања.

Ризик од излагања јонизујућим зрачењима је увећан услед извесног броја радионуклида уведених у животну средину различитим људским активностима (антропогени радионуклиди). Значајно уношење фисионих продуката у животну средину започело је отвореним атмосферским нуклеарним пробама после 1945. године. Овај период се завршио око 1968. године великом контаминацијом северне хемисфере. Након тога дошло је до извесног броја нуклеарних акцидентата са већим и мањим испуштањем радионуклида у животну средину.

Радон, једини гасовити продукт распада у нивовима ^{238}U , ^{232}Th и ^{235}U , ствара се непосредним распадом радијума. Доминантан је контаминант животног простора, јер услед своје изразите мобилности, значајне концентрације достиже у атмосфери затворених просторија. По оцени Научног комитета за ефекте атомског зрачења (UNSCEAR) више 1/2 укупне дозе озрачивања потиче од радона и његових краткоживећих потомака (првенствено инхалацијом). И Светска здравствена организација (WHO) означила га је као хумани канцерогени агенс.

Поред значаја за сврхе здравствене заштите, мерења радона налазе широку примену и у геологији: за проспекцију минерала (урана и торијума), у геотермалним студијама, за предикцију земљотреса и вулканских ерупција.

Заинтересованост за радиоактивност, али и забринутост становништва Косова и Метохије не јењава након НАТО бомбардовања 1999. године. Премда постоје оскудни подаци о расподели природних и вештачких радионуклида на територији јужне српске покрајине, до кориснијих резултата се може доћи само реализацијом опсежније студије системског карактера.

РАСПОРЕД МАТЕРИЈАЛА ПО ПОГЛАВЉИМА

Рад се састоји из два дела:

- I) ОПШТИ ДЕО
- II) ИСТРАЖИВАЧКИ ДЕО

Општи део има монографски карактер и не садржи оригинални научни рад аутора. Представља опис појмова и термина неопходних за разумевање рада и истраживања у овој области радијационе физике. Састоји се из пет поглавља.

У оквиру првог поглавља дат је преглед природних и вештачких радионуклида у природи, с освртом на радиоактивне низове урана и торијума. Описане су особине појединих радионуклида, њихово геохемијско понашање и дат је садржај радионуклида у стенама, минералима и тлу. Представљен је утицај, ризик и штетност јонизујућег зрачења на здравље људи, а затим су дате основне формуле на основу којих се може проценити доза и ризик условљен излагању радионуклидима.

Друго поглавље се бави радоном (^{222}Rn - радон и ^{220}Rn – торон у даљем тексту). Детаљно су описане особине, извори, еманација и транспорт радона. Описано је понашање радона и његових краткоживећих потомака у затвореним просторијама. На основу дугогодишњих истраживања у свету објашњен је утицај радона на здравље становништва. Представљене су формуле које дефинишу и процењују дозу од излагања радону, торону и њиховим потомцима према одговарајућим измереним концентрацијама.

Треће поглавље описује подручје истраживања са поделом на регионе, уз осврт на избор локација (објеката) и хронологију истраживања. Дат је геоморфолошки преглед истраживаних подручја.

Четврто поглавље даје опис метода узорковања земљишта и гамаспектрометријски метод одређивања специфичних активности радионуклида у тлу коришћењем HPGe детектора. Проблем еманације гаса радона из узорака земљишта превазиђен је херметичким затварањем посуда и одлагањем мерења до успостављања равнотеже.

У петом поглављу описан је и објашњен примењени пасивни интеграциони метод мерења концентрације радона и торона у затвореним просторијама коришћењем траг детектора. Описане су различите врсте дифузионих комора (дозиметара) опремљених CR-39 и LR115 детекторима коришћених у мерењу радона.

Истраживачки део представља оригинални научни рад аутора. Резултате мерења, истраживања и дискусију чини пет поглавља 6, 7, 8, 9, 10 и закључак.

Шесто поглавље приказује експериментални део рада који садржи резултате мерења специфичних активности радионуклида у тлу уз статистичку анализу. Дискусија резултата мерења прати како просторну и профилну расподелу, тако и регионалну расподелу радионуклида у тлу на Косову и Метохији. Резултати мерења специфичних активности радионуклида у тлу упоређени су са резултатима у другим земљама света.

У седмом поглављу су представљени резултати једногодишњих мерења радона, торона и потомака различитим врстама детектора у 113 објеката. Резултати су дискутовани у оквиру различитих просторија у објектима, различите старости и изградње објекта на истој геолошкој подлози, као и кроз резултате мерења радионуклида у тлу у непосредној близини објеката. Извршена је статистичка анализа резултата мерења по регионима и исти су упоређивани са ранијим мерењима. Резултати мерења радона и торона у затвореним просторијама упоређени су са истраживањима изведеним у свету.

Осмо поглавље бави се проценом дозе. Према мерењима активности радионуклида из тла процењене су дозе и ризици услед спољашњег излагања изворима јонизујућих зрачења. Известан допринос радијационој дози дали су извори јонизујућег зрачења који потичу од вештачког радионуклида ^{137}Cs . Мерењем радона у затвореним просторијама процењене су дозе услед унутрашњег излагања изворима јонизујућих зрачења. Дискусију употпуњује преглед истраживања у другим земљама у свету и упоређивање са добијеним резултатима.

У оквиру деветог поглавља истражена је корелација између: радионуклида у тлу и изотопа радона у затвореним просторијама. Такође је проучавана корелација одговора више врста детекторских система коришћених за мерења.

Десето поглавље даје преглед публикованих радова из ове дисертације.

У закључку је сажет преглед резултата и достигнућа проистеклих из дисертације.

I) ОПШТИ ДЕО

1. РАДИОНУКЛИДИ У ПРИРОДИ

Радиоактивни елементи улазе у састав све живе и неживе материје у природи: налазе се у живим бићима, ваздуху, води, земљишту и грађевинским материјалима. Процес нуклеосинтезе на звездама доводи до непрекидног стварања многих стабилних и нестабилних елемената. Од тренутка стварања Сунчевог система радиоактивни елементи (радионуклиди) ушли су у састав Земље и временом су се неки од њих у потпуности распали.

Примордијални (праисконски) радионуклиди који нису окончали своје постојање на Земљи до данас чине примарну компоненту природних извора јонизујућих зрачења. Њихова главна карактеристика је дуг период полураспада, упоредив са старошћу Земље. Већина ових радионуклида припада породицама три природна радиоактивна низа: низовима урана ^{238}U , ^{235}U и низу торијума ^{232}Th . У лабораторијским условима нуклеарним реакцијама створен је и четврти, низ нептунијума ^{237}Np . Калијум ^{40}K и рубидијум ^{87}Rb су најважнији примордијални радионуклиди који не припадају радиоактивним породицама урана и торијума. Њима се могу придружити: ванадијум ^{50}V , кадмијум ^{113}Cd , индијум ^{115}In , телур ^{123}Te , лантан ^{138}La , церијум ^{142}Ce , неодимијум ^{144}Nd , самаријум ^{147}Sm , гадолинијум ^{152}Gd , хафнијум ^{174}Hf , лутецијум ^{176}Lu , ренијум ^{187}Re , платина ^{190}Pt , ^{192}Pt и бизмут ^{209}Bi [UNSC EAR, 2000].

Другу компоненту природних извора јонизујућих зрачења чине космогени радионуклиди. Они настају у интеракцијама космичког зрачења са језгрима водоника, азота и кисеоника у горњим слојевима атмосфере. Најзначајнији су трицијум ^3H , берилијум ^7Be , натријум ^{22}Na и угљеник ^{14}C . У космогене радионуклиде (који су процентуално мање заступљени) убрајају се: берилијум ^{10}Be , флуор ^{18}F , натријум ^{24}Na , алуминијум ^{26}Al , силицијум ^{31}Si , ^{32}Si , фосфор ^{32}P , ^{33}P , сумпор ^{35}S , ^{38}S , хлор $^{34\text{m}}\text{Cl}$, ^{36}Cl , ^{38}Cl , ^{39}Cl , аргон ^{37}Ar , ^{39}Ar , магнезијум ^{38}Mg и криптон ^{80}Kr . Продукција краткоживећих и дугоживећих космогених радионуклида зависи од географске ширине и дужине [UNSC EAR, 2000].

У природи су присутни и вештачки извори јонизујућег зрачења као резултат људских активности. То су углавном фисиони продукти који путем хаварија у реакторима

нуклеарних електрана и проба нуклеарног оружја доспевају у природу: трицијум ^3H , јод ^{129}I , ^{131}I , цезијум ^{134}Cs , ^{137}Cs , стронцијум ^{90}Sr , технецијум ^{99}Tc и плутонијум ^{239}Pu . Према препорукама Међународне агенције за атомску енергију (ИАЕА) од значаја у животној средини су и следећи вештачки радионуклиди: кобалт ^{58}Co , ^{60}Co , селен ^{75}Se , стронцијум ^{89}Sr , цирконијум ^{95}Zr , рутенијум ^{103}Ru , родијум ^{106}Rh , сребро $^{110\text{m}}\text{Ag}$, антимон ^{124}Sb , ^{125}Sb , цезијум ^{134}Cs , церијум ^{141}Ce , ^{144}Ce и тербијум ^{160}Tb [IAEA 295, 1989]. Већи број ових радионуклида је краткоживећи и представљају реалну опасност за становништво, нарочито одмах након акцидентних ситуација. За разлику од њих дугоживећи радионуклиди се неко време задржавају у стратофери, затим се премештају ваздушним и воденим струјама на удаљене локације од места ослобађања и након исталожења могу се детектовати у тлу [Van der Stricht и Kirchmann, 2001]. Тестовима нуклеарног наоружања, неконтролисаним ослобађањима радиоактивних материја у атмосферу, хидросферу, као и небезбедним одлагањем радиоактивног отпада у литосфери, уз неколико важнијих акцидентних ситуација на нуклеарним реакторима, вештачки радионуклиди су укључени у геолошко и биолошко кружење материје у природи.

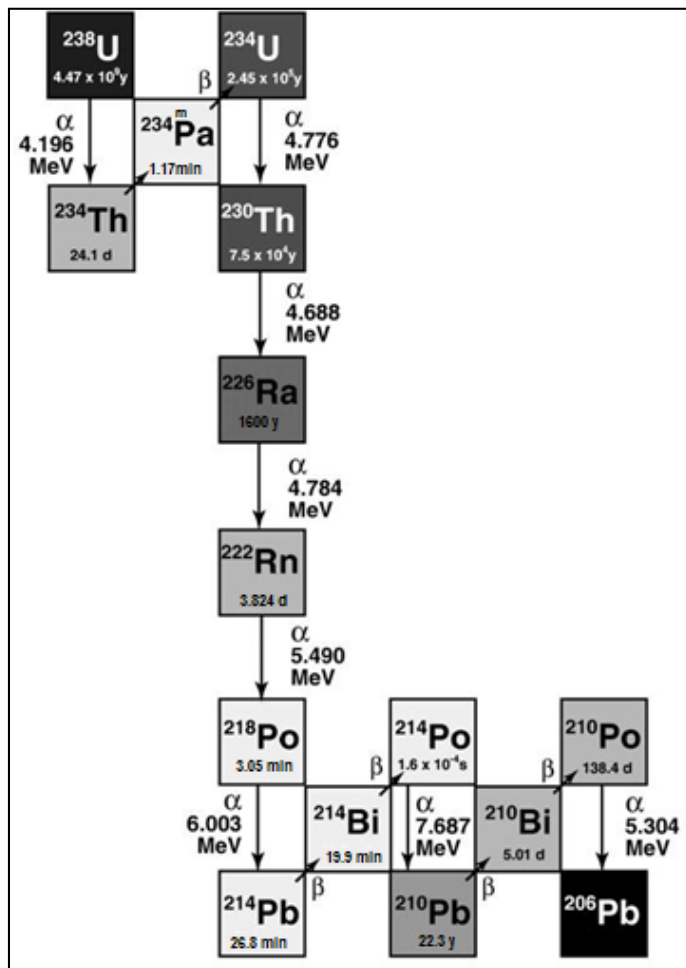
1.1 Природни радионуклиди

1.1.1 Радиоактивни низови

Сви природни радиоизотопи атомског броја $Z > 82$ могу се груписати у три радиоактивна низа: уран-радијумов (^{238}U), уран-актинијумов (^{235}U) и торијумов (^{232}Th) низ. Сви чланови низа су радиоактивни - повезани су сукцесивним распадима од родоначелника до последњег, стабилног члана низа. Родоначелници низова су примордијални радионуклиди са временима полураспада реда величине старости Земље. У сваком низу су гасовити продукти дезинтеграција - изотопи радона, а затим следе елементи који релативно кратко живе. Низови се завршавају стабилним изотопима олова, тј. елементом са магичним бројем протона (82).

Уран-радијумов низ је најдужи (по броју чланова и броју распада) познати радиоактивни низ у природи [Ivanovich и Harmon, 1992]. Чини га осам α - дезинтеграција и шест β - дезинтеграција. Приказан је на слици 1.2. са одговарајућим периодима полураспада

радионуклида и карактеристичним енергијама емитованих α - честица. Формула низа је $[A=4n+2]$, где је n цео позитиван број између 51 и 59. Низ почиње изотопом ^{238}U , који је алфа емитер.

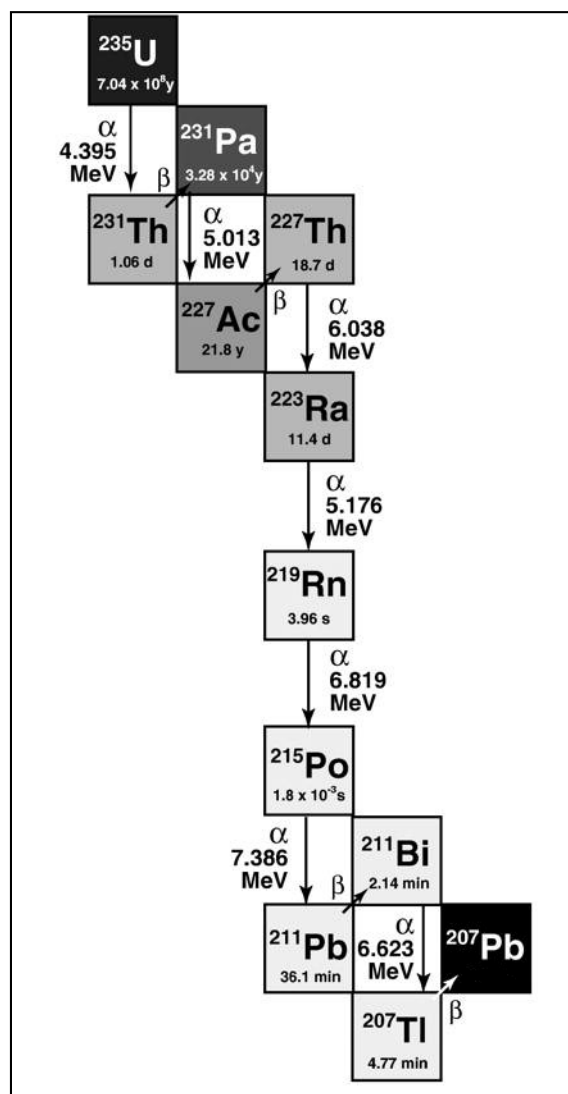


Слика 1.2. Радиоактивни низ урана ^{238}U

Чланови низа имају различита хемијска својства и времена полураспада (од $1.6 \cdot 10^{-4}$ s до $4.47 \cdot 10^9$ година), емитују α -честице, β - честице и γ -зрачење различитих енергија. У β -распаду краткоживећег ^{234}Th , непосредан потомак је $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (0.14% дезинтеграција у изомерној форми ^{234}Pa) и он се директно распада на основно стање ^{234}U . Изотоп ^{234}U (време полураспада $2.5 \cdot 10^5$ година) је важан као посредни нуклид у генерисању ^{222}Rn у распаду ^{238}U . Сукцесивне α - дезинтеграције производе ^{226}Ra и ^{222}Rn . Затим следи група краткоживећих потомака радона која с њим брзо долази у прелазну равнотежу. Низ се завршава дугоживећом групом радонових потомака и крајњим стабилним изотопом олова

^{206}Pb , (језгром са двостукиком магичним бројем: 82 протона и 126 неутрона). Историјски је важан за разумевање природне радиоактивности и при датирању минерала [Ivanovich и Harmon, 1992].

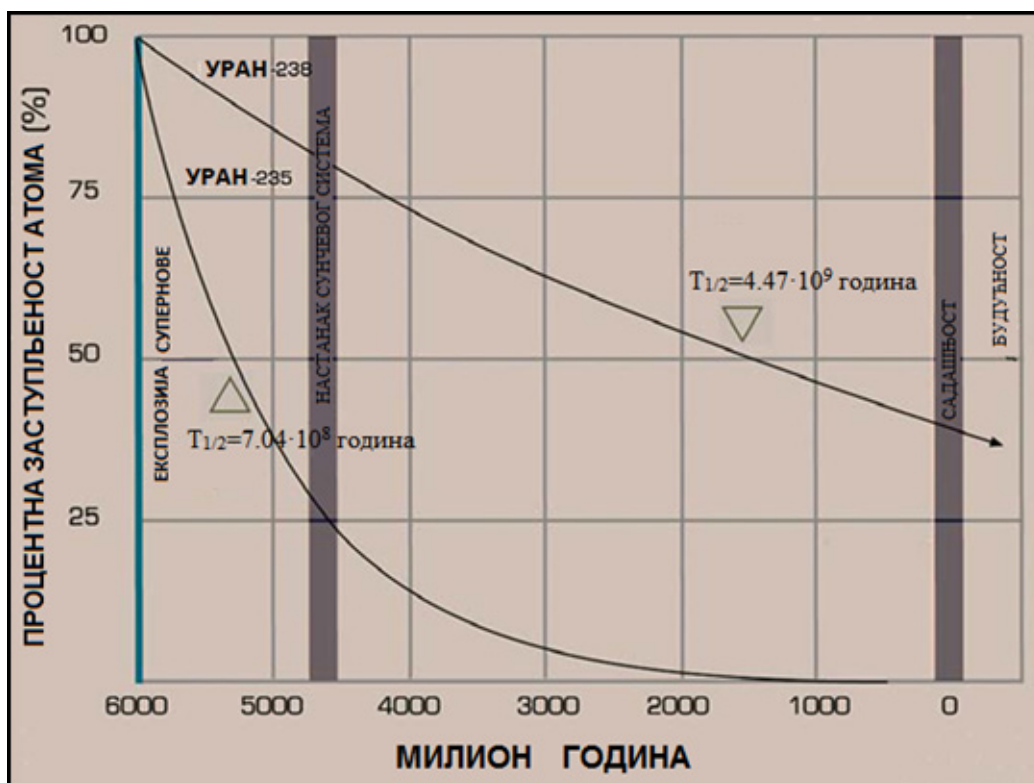
Уран-актинијумов низ почиње изотопом ^{235}U , а завршава се стабилним изотопом ^{207}Pb (слика 1.3.). Чини га седам α - дезинтеграција и четири β - дезинтеграције.



Слика 1.3. Радиоактивни низ урана ^{235}U

Формула низа је $[A=4n+3]$, где је n цео позитиван број између 51 и 58. Време полураспада ^{235}U је око 6 пута краће ($T_{1/2}=7.04 \cdot 10^8$ година) од времена полураспада ^{238}U , што са геолошке временске скале значи да се маса ^{235}U у природи брже смањује. О томе сведочи природни реактор у Оклу (Габон, Африка) настао пре око 2 милијарде година када

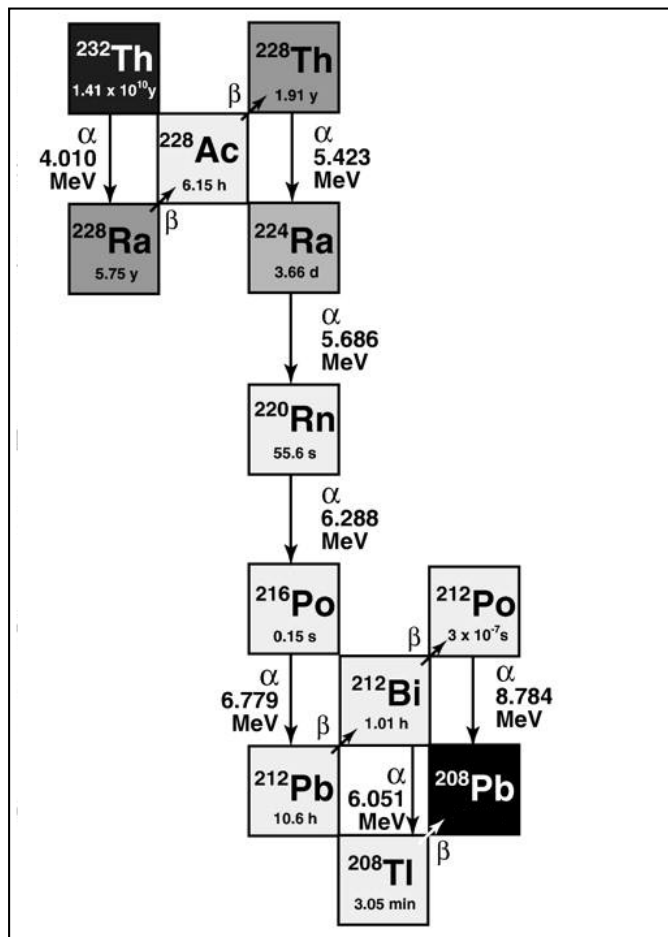
је заступљеност изотопа ^{235}U у природи била око 3% (слика 1.4.) [Magill и Galy, 2005]. Изотоп ^{235}U је α -емитер са комплексним спектром. У фисији са спорим неутронима, ^{235}U ослобађа велике количине енергије, па је од важности као нуклеарно гориво [Harb, 2003]. Најинтензивнија група α - прелаза је од ^{231}Pa . Са становишта радиоактивне експозиције низ нема већи значај.



Слика 1.4. Астрофизички сат [Magill и Galy, 2005]

Торијумов низ започиње са ^{232}Th , а завршава се стабилним изотопом ^{208}Pb (слика 1.5.). Чини га шест α - дезинтеграција и четири β - дезинтеграције. Формула низа је $[A=4n]$, где је n цео позитиван број између 52 и 58. Време полураспада ^{232}Th је око три пута дуже од тренутно процењене старости Земље. Низ може вештачки да се продужи за неколико елемената са већим масеним бројевима од ^{232}Th . Међутим, данас – након 4.5 милијарди година у природи прекурсори ^{232}Th не постоје, јер су се у целости распали на дуже-живећи ^{232}Th [Harb, 2003]. Интермедијални продукти дезинтеграција у низу су релативно краткоживећи у односу на родоначелника. Распадом ^{228}Ac настаје ^{228}Th , који такође настаје

из α -распада ^{232}U и електронског захвата ^{228}Ra . Користан је у техници мерења неравнотеже урана и торијума као радиохемијски трасер [Harb, 2003].



Слика 1.5. Радиоактивни низ торијума ^{232}Th

Нептунијумов низ је створен у лабораторијским условима. Формула низа је $[A=4n+1]$, где је n цео позитиван број између 52 и 59. Низ почиње изотопом нептунијума ^{237}Np и завршава јединим стабилним изотопом бизмута, ^{209}Bi . Време полураспада ^{237}Np је 2.14 милиона година. Само два члана овог низа се појављују у природи (^{209}Bi и ^{205}Tl). Изотоп ^{233}U је важан нуклид у нептунијумовом низу, подложен фисији спорим неутронима [Harb, 2003].

За сваки природни радиоактивни низ карактеристично је гранање (бифуркација). Оно настаје услед могућности неких радионуклида да се са одговарајућом вероватноћом распадне на два начина (β -распадом или α -распадом). Вероватноћа гранања за одређени

канал распада је однос броја атома који се распадне одговарајућим распадом према укупном броју распаднутих атома датог радионуклида [Magill и Galy, 2005].

Друга карактеристика природних радиоактивних низова је да сваки од њих садржи по један гасовити продукт: у низу ^{238}U је радон (^{222}Rn), у низу ^{235}U је актинон (^{219}Rn), у низу ^{232}Th је торон (^{220}Rn). О њима ће бити више речи у следећем поглављу.

1.1.2 Садржај и карактеристике радионуклида у стенама, минералима и тлу

Радионуклиди се најчешће уграђују у минерале и стене које садрже висок проценат земноалкалних и алкалних метала. Стене магматског порекла са значајним концентрацијама радионуклида су: базалт, андезит, габро, гранит, гранодиорит, диорит. У њима доминирају минерали: кварц, оливини, пироксени, фелдспати, фелдспатоиди, амфиболи и лискуни [Веселиновић и др, 1995]. Гранити и гранитоидне стене су најбогатије ураном и торијумом. Седиментне стене (глина, алеврит, песак, шљунак, пешчар, кречњак, доломит) садрже различите концентрације ^{238}U , ^{232}Th и ^{40}K . Садржај радиоактивних елемената у метаморфним стенама (мермер, кварцит, серпентинит, амфиболит, шкриљци) детерминисан је њиховом мобилношћу у воденим растворима и саставом примарне магматске или седиментне стене. Повишене концентрације радионуклида појављују се код пешчара и кристаластих шкриљаца, због великог удела минерала глина и органског материјала [Веселиновић и др, 1995]. Најмањи садржај радионуклида имају карбонатне стене: кречњак и доломит.

У табели 1.1. дат је опсег концентрација ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K (у Bq kg^{-1}) у руди урана и неким стенама [Kogan и др, 1971; Durrani и Ilić, 1997]. Одговарајући масени удео елемента у стени добија се конверзијом: $1 \text{ ppm U} (10^{-6} \text{ g U/1 g стенске масе}) = 12.35 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ } ^{238}\text{U} (^{226}\text{Ra})$, $1 \text{ ppm Th} (10^{-6} \text{ g Th/1 g стенске масе}) = 4.06 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ } ^{232}\text{Th}$, $1 \% \text{ K} (10^{-2} \text{ g K/1 g стенског материјала}) = 313 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ } ^{40}\text{K}$ [IAEA 309, 1989].

Табела 1.1. Опсег концентрација ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K у руди урана и неким стенама [Kogan и др, 1971; Durrani и Илић, 1997]

Тип стене	Специфична активност (Bq kg^{-1})		
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
Руда урана	$12 \cdot 10^3$ - $25 \cdot 10^5$		
Гранит	25-80	20-80	620-1500
Гранит - богат ^{238}U и ^{232}Th	100-500	40-400	1200-1900
Габро, дијабаз	1-25	5-40	25-1000
Пешчари	1-60	5-40	100-1500
Кречњаци	5-40	0.5-10	30-160
Гнајс, седименти	25-125	20-80	620-1500
Шкриљци	10-125	5-60	300-1800

Готово је правило да новоформиране копнене масе настале вулканским ерупцијама или скоријим сложеним тектонским догађајима имају већу количину радиоактивности у земљишту од старих копнених маса. Садржај радионуклида у тлу првенствено зависи од геолошке структуре, геоморфолошких карактеристика тла, и од физичкохемијских особина и покретљивости радионуклида. Просечан садржај U, Th и K у земљишту је 1 ppm, 13 ppm и 1.4 %, респективно, ($1 \text{ ppm} = 1 \text{ mg kg}^{-1}$) [Taylor, 1964; Taylor, 1966; Lima и др, 2005; Guagliardi и др, 2013]. Највећи утицај на покретљивост радионуклида у тлу имају честице глине и fine фракције, због веће способности усвајања у односу на крупне фракције. Оне се одликују јачом фиксацијом радионуклида. Под дејством киселих раствора глина се знатно уситњава и постепено транспортује у дубину. Нпр. у глиновитом земљишту на дубини од 1 m концентрација радијума ^{226}Ra варира од 10-100 Bq kg^{-1} [Durrani и Илић, 1997]. Снижавање рН вредности земљишта повећава мобилност већине радионуклида [Стојановић и др, 1993].

Уран је најтежи елемент из групе актинида који настаје природним путем (атомска маса 238.029 u). Представља смешу три природна изотопа у односима устаљеним у природи: ^{234}U (0.0054%), ^{235}U (0.72%) и ^{238}U (99.2746%). Природна радиоактивност изазвана

присуством уранове минерализације је најзначајнија. Уран улази у састав разноврсних једињења и даје близу 200 минерала од којих већину чине оксиди.

Повишене концентрације урана у природи су најчешће везане за пирокластите или ефузиве киселог и алкалног вулканизма, као и за њихове гранитоидне комплексе [Веселиновић и др, 1995]; у гранитоидима се најчешће појављује у облику пехбленде ($\text{UO}_2\text{-U}_3\text{O}_8$) у којој преовлађује четворовалентни уран - уранитит. Значајне концентрације урана у гранитоидима везане су у циркону, монациту и апатиту. Минерали из групе фелдспата и лискуна представљају изворе из којих се могу ослободити значајне концентрације урана, јер он замењује јоне алуминијума у кристалним решеткама ових минерала. У биотиту, мусковиту и минералима из групе фелдспата, уран се налази у облику U^{4+} , чак и у U^{6+} облику. Уран се појављује у облику јона U^{4+} и U^{6+} у великом броју минерала глина и његов садржај расте са садржајем глине захваљујући израженој адсорпцији.

Са радиолошке тачке гледишта U^{4+} је типичан катјон, потпуно безопасан, јер је имобилан и не раствара се. Деградација гранитоида киселим хидротермалним растворима уз присуство кисеоника доводи до ослобађања урана из петрогених и акцесорних минерала, тј. доводи до оксидације из облика U^{4+} у облик U^{6+} који је подложен процесима ремобилизације. Шестовалентни уран U^{6+} је растворан у облику UO_2^{2+} (уранил) јона. Од момента оксидације и растварања у води уран постаје прилично покретан у земљи и подземним водама. На тај начин уран се транспортом са места на којима се примарно налазио депонује у новој геолошкој средини. Редукцијом и фиксацијом уранил јона прекида се процес контаминације природе ураном.

Радијум је двовалентни земно-алкални метал сличних хемијских особина са берилијумом, магнезијумом, калцијумом и стронцијумом. Показује јаку геохемијску кохеренцију са баријумом. Постоје четири природна изотопа радијума, од којих су три релативно краткоживећа: ^{223}Ra (11.4 дана), ^{224}Ra (3.66 дана) и ^{228}Ra (5.75 година). Четврти изотоп ^{226}Ra (алфа-емитер) има време полураспада 1620 година, довољно дуго да формира геолошке депозите независно од својих прекурсора, урана и торијума [Harb, 2003].

Минерали радијума у природи не постоје, већ се он свуда налази у расејаном облику. Због везе са ураном има га у различитим количинама у свим врстама стена и земљишта. Расподела радијума је одређена појавом урана, али и торијума и модификована геохемијским особинама самог радијума. Процесима формирања тла мењају се изворне

концентрације урана и радијума у стенама [Durrani u Ilic, 1997]. Услед слабије мобилности у односу на уран јављају се секундарне локалне концентрације радијума. Растварање у редукционој средини повећава мобилност радијума и у условима када је уран непокретан може се раздвојити од урана и посебно локално концентрисати. То утиче на неравномерну расподелу радијума у биосфери. Минерале из радијумових лежишта карактерише висока тачка топљења и врло слаба растворљивост у води [Harb, 2003]. У стенама из плеистоцена и старијим, радијум је пронађен у непромењеном облику у радиоактивној равнотежи са прекурсорима [Majumdar u др, 1990].

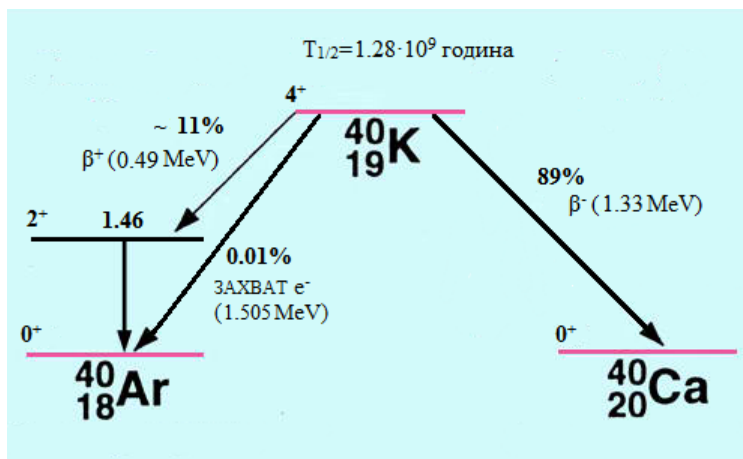
Торијум је радионуклид из групе актинида. Радиолошки значај имају два изотопа: ^{232}Th са временом полураспада $1.4 \cdot 10^{10}$ година и ^{228}Th са временом полураспада 1.9 година. У земљишту и различитим стенама садржај варира од $8.1\text{--}33 \text{ mg kg}^{-1}$. У природи се најчешће јавља као четворовалентан, гради сложена једињења у облику оксида, силиката и фосфата.

Геохемија торијума [Антоновић, 1989; Јанковић-Мандић, 2011] је једноставнија од урана, због мале растворљивости јона Th^{4+} . Циклус торијума је тесно повезан са ураном, тако да се углавном налазе у истим акцесорним минералима: торит (ураноторит), монацит, циркон, сфен и аланит. Делом торијум, а нарочито уран, прелазе у хидротермалне растворе и могу да образују сопствена рудна лежишта или да се у мањој мери концентришу у лежиштима других метала (Pb-Zn и др).

Калијум припада групи јако реактивних алкалних метала и има три изотопа: ^{39}K (93.26%), ^{40}K (0.0117) и ^{41}K (6.73%). Једино је ^{40}K радиоактиван са временом полураспада $1.28 \cdot 10^9$ година; 89% се распада на стабилан ^{40}Ca (слика 1.6.) [Lederer u др, 1978; Harb, 2003]. Са изузетком малог дела распада електронским захватом, 11% ^{40}K трпи позитронски распад уз емисију карактеристичног фотона енергије 1.46 MeV.

Повећана концентрација ^{40}K установљена је у гранитоидним стенама и сијенитима [Turekian u Wederpohl, 1961]; највећи проценат ^{40}K налази се у петрогеним силикатним минералима: фелдспатима (ортоklas), фелдспатоидима (нефелин) и лискунима (биотит и мусковит) [Веселиновић и др, 1995].

Калијум је са биолошке тачке гледишта доминантан примордијални радионуклид, есенцијалан за живот и има га око 140 g у организму човека масе 70 kg [Emsley, 1998]. Његова специфична активност у телу је практично константна.



Слика 1.6. Шема распада ^{40}K [Lederer и др, 1978; Harb, 2003]

1.1.3 NORM и TENORM

Свака геолошка подлога по природи и постанку садржи извесну количину природних радионуклида. Услед промена у геолошко-геохемијским системима (руде, стене, подземне воде) који су праћени хидротермалним процесима долази до обогаћивања примарних стена минералима који садрже радионуклиде. На тај начин природним путем се повећава садржај природних радионуклида у тлу; у научној литератури користи се акроним енглеског израза NORM – Naturally Occurring Radioactive Material.

"Основу природног нивоа јонизујућег зрачења" у Србији (NORM) чине магматске и седиментне стене [Веселиновић и др, 1995]. Природно повећан садржај урана (примарно условљен присуством уранове минерализације) пронађен је у планинским регионима Букуље, Јање, Старе Планине, Авале-Космаја, Рудника, Цера, Врања, Фрушке Горе и Вршачког брда, у просеку од $50\text{-}200 \text{ Bq kg}^{-1}$ [Gržetić и Jelenković, 1995]. Локације за које постоје подаци о повећаној природној радиоактивности су напуштена лежишта, јаловишта затвореног рудника урана у Габровници-Кална на Старој планини [Nikolov и др, 2013], потенцијални ураноносни басен Белановица у гранитоидном комплексу Букуље [Rončević, 2005], аномалија урана и торијума у Горњој Стубли на Косову и Метохији [Jakupi и др, 1988, 1990; Žunić и др, 2010a], итд.

Антропогено деловање (експлоатација и прерада руде, производња и употреба фосфатних ђубрива, сагоревање угља, одлагање шљаке и пепела и емисија гасова у

атмосферу из термоелектрана) такође повећава ниво природне радиоактивности. При томе не треба заборавити да су производ човекове делатности и вештачки радионуклиди, најчешће фисиони производи. Процењује се да је нуклеарна катастрофа у Чернобилу утицала на повећање нивоа природне радиоактивности за око 2% [Yablokov *и др*, 2009]. Овакви технолошки процеси могу изменити и значајно повећати ниво природне радиоактивности и тиме значајно утицати на квалитет животне средине у одређеном подручју. За ове процесе постоји термин TENORM (Technologically-Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material). У таквим условима неопходан је сталан мониторинг и контрола у циљу смањења радиоактивности на најмању могућу меру. Према неким проценама "природан ниво јонизујућег зрачења" у неким срединама Србије повећан је услед људске активности 30 пута у последњих 30 година. Тако, у близини термоелектрана "Колубара" и "Никола Тесла", ниво зрачења повећан је 3 до 4% изнад природног нивоа зрачења [Djurić *и Popović*, 2001].

1.1.4 Области (региони) са природно повећаном радиоактивношћу

Према подацима UNSCEAR-а постоје подручја у свету са повећаном радиоактивношћу (табела 1.2.) услед повећаног садржаја радионуклида у тлу, јачине космичког зрачења и географског положаја. Ради поређења са вредностима из табеле просечна вредност јачине дозе у ваздуху у свету која потиче од радионуклида у тлу је 58 nGy h⁻¹ [UNSCEAR, 2000].

Табела 1.2. Подручја са повећаном природном радиоактивношћу
[UNSCEAR, 2000].

Земља	Област	Карактеристике подручја	Јачина дозе у ваздуху(nGy/h)*
Бразил	Guarapari	Песак монацит, обала	90-171 улице 90-90 000 плажа просек 110-1300
	Mineas Gerais и Goias Pocos de Caldas Araxa	Вулканско интрузивно	340-2800
Кина	Yangjiang Quangdong	Честице монацита	370
Египат	Nile delta	Песак монацит	20-400
Француска	Central region	Гранити, шкриљци, пешчари	20-400
	Southwest	Минерали урана	10-10 000
Индија	Kerala и Madras	Песак монацит, обала дуга 200 km, широка 0.5 km	200-4000 просечно 1800
	Ganges delta		260-440
Иран	Ramsar		70-17 000
	Mahallat	Извори воде	800-4000
Италија	Lazio	Вулканско земљиште	180
	Campania		200
	Orvieto town		560
	South Toscana		150-200
Острво Ниуе	Pacific	Вулканско земљиште	1100 максимално
Швајцарска	Tessin, Alps, Jura	Гнајс, ²²⁶ Ra у карстном земљишту	100-200

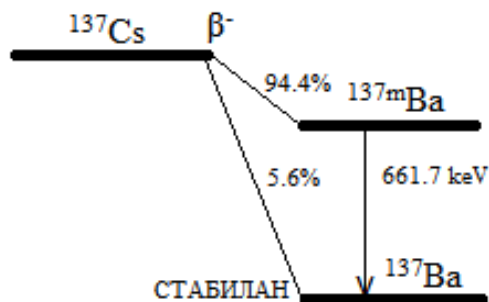
* укључује космичко и терестријално зрачење

1.2 Вештачки радионуклиди

Коришћењем нуклеарне енергије за војне и мирнодопске сврхе започета је антропогена радиоактивна контаминација животне средине. У другој половини XX века услед нуклеарних експлозија у стратосферу је доспела активност од 960 PBq у виду вештачки створених радионуклида - фисионих продуката, углавном ^{137}Cs и ^{90}Sr . То је условило глобалну контаминацију биосфере [UNSCLEAR, 1982], с обзиром да се вештачки радионуклиди лако укључују у кружење материје, а уз то имају дуга времена полураспада и високе енергије зрачења. Након извесног мирног периода са тенденцијом смањивања антропогене радиоактивности, догодила се хаварија на нуклеарном реактору у Чернобиљу (26.04.1986. године). У периоду од 10 дана у атмосферу је избачена количина активности од 1.85 EBq вештачког радиоактивног материјала [Van der Stricht, 2001]. Облак радиоцезијума ношен ветром контаминирао је европске земље и северну хемисферу. Последице тог акцидента су још присутне на територији наше земље. Недавно, хаварија у нуклеарној електрани у Фукушими (11.03.2011. године) проузрокована снажним земљотресом и цунамијем, опет је контаминирала северну хемисферу. Безначајна количина радиоактивног материјала пореклом из Фукушиме, у виду ^{137}Cs и ^{131}I детектована је у земљама Европе десетак дана након хаварије на реактору [Bossew, 2011].

Цезијум је алкални елемент са физичким и хемијским особинама сличним рубидијуму и калијуму. Цезијум има већи број изотопа, од којих је стабилан само ^{133}Cs . Радиоактивни изотоп ^{137}Cs је бета емитер, фисиони продукт који се издваја у отпаду из нуклеарних реактора са временом полураспада 30.2 године. Шема распада представљена је на слици 1.7. Деекситацијом, емисијом γ - зрачења карактеристичне енергије из стања метастабилног баријума прелази у стабилни ^{137}Ba .

Коренов систем биљке лако усваја вештачке радионуклиде, па се цезијум брзо укључује у геолошко и биолошко кружење материје. На покретљивост цезијума осим физичкохемијских карактеристика земљишта утиче и локална конфигурација терена, тако да је у песковитом земљишту брзина продирања већа. Ако је цезијум у анјонском облику, земљиште га слабо апсорбује и покретљивост је већа. Мањак калијума у земљишту убрзава процес продирања у дубље слојеве. Различити геохемијски процеси могу довести до значајних концентрација цезијума на микролокацијама.



Слика 1.7. Шема распада ^{137}Cs

1.3 Утицај јонизујућег зрачења на здравље

1.3.1 Пuteви излагања

Постоје два главна пута излагања становништва изворима јонизујућих зрачења у природи [UNSCEAR, 1993]:

- спољашње - од радионуклида из ваздуха, тла, грађевинског материјала и космичког зрачења;
- унутрашње - од радионуклида унетих инхалацијом и ингестијом.

У неким околностима и унос радионуклида преко отворених рана не треба занемарити [Van der Stricht, 2001]. Механизми дистрибуције и транспорта радионуклида у животној средини су врло сложени и недовољно познати. Важност различитих путева излагања одређена је врстом и карактеристикама зрачења, дисперзијом, карактеристикама животне средине, начином живота и навикама становништва.

Унос радионуклида у организам зависи од:

- особина зрачења (дозе, просторне и временске дистрибуције доза, карактеристика радионуклида и врста зрачења) и
- особина организма (старост, пол, здравствено стање, осетљивост ткива на зрачење).

1.3.2 Токсичност радионуклида

Радионуклиди се разликују по физичким и геохемијским особинама, па и у погледу потенцијалних биолошких ефеката на организме. Биофизичко и биохемијско понашање радионуклида повезано је са процесима инкорпорирања у критичне органе и ткива организма. Највећи радијациони хазард представљају α - честице емитоване распадом радионуклида. Због велике масе и кратког домета α - честица долази до густе јонизације биолошког материјала, што примарно резултује радиохемијским ефектима. Велики број слободних радикала, пероксида, јона и атома који се формира након озрачивања индиректно доводи до стварања оксиданаса и токсичних једињења [Turner, 2007].

Токсичност уранових једињења директно зависни од његове растворљивости, тј. од облика у коме се налази. Када растворљива једињења урана у облику честица прашине стигну у респираторни тракт прелазе у крв и ткивне течности и распоређују се у све органе. Честице већег дијаметра задржавају се на спољашњим дисајним органима, а ситније честице се депонују дубоко у плућима [WHO, 2001]. Токсикологију нерастворних (у крви и ткивима) једињења урана чине два механизма: нерадијациони (директно хемијско-токсични) карактеристичан за тешке метале и радијациони (јонизациони) карактеристичан за радионуклиде. Многи истраживачи имају дилему у погледу токсичних ефеката урана: шта је последица зрачења, а шта дејства тешког метала [Додић и Милачић, 1993]. Бубрег је критичан орган у коме се уран највише депонује (0.05-12%). Време полуелиминације је 6-1500 дана [Janković-Mandić, 2011].

Торијум се у организму концентрише у плућима и костима. Према метаболичким моделовањима сматра се да се од унетог торијума у организам 70% задржава у костима [UNSCEAR, 2000]. Биолошко време полуелиминације је око 700 дана [Glover и др, 2001].

Радијум се у организам углавном уноси ингестијом и преко отворених рана, а ређе инхалацијом. То је остеотропни радионуклид, па су критични органи његовог накупљања кости (скелет). ^{226}Ra има дуго биолошко време полураспада (45 година), у организму прати метаболизам калцијума. Један је од најтоксичнијих радионуклида са израженим канцерогеним деловањем.

Цезијум се брзо и готово потпуно апсорбује у гастроинтестиналном тракту. Хемијски је аналоган калијуму и прати његов метаболизам. Нема посебан критични орган

за депоновање, већ се распоређује у свим ћелијама организма (органотропни радионуклид). Биолошко време полураспада је од 10-110 дана и зависи од старосног доба и метаболизма организма.

1.3.3 Ризик и штетност од јонизујућег зрачења

Ризик је вероватноћа да организам претрпи одређени штетни ефекат услед излагања јонизујућим зрачењима. Ризик се може само проценити, јер се одређује преко дозе, величине која квантитативно приказује ниво излагања зрачењу. Штетност од јонизујућих зрачења подразумева поред вероватноће и степен озбиљности могућих ефеката. Дејства јонизујућих зрачења на живи свет манифестују се низом хемијских и биолошких промена (на ћелијама ткива и органа) које могу бити пролазне, сталне или могу довести до смрти ћелије.

Штетни ефекти јонизујућих зрачења деле се на соматске и генетске. Када се штетне последице јављају на озраченој особи ефекти се називају соматским. Соматски ефекти могу резултовати канцером, дегенеративним променама, тератогеним ефектима, стерилитетом, скраћењем живота. У зависности од дужине трајања и јачине дозе озрачивање може бити: **акутно** (изложеност високим дозама зрачења у кратком временском интервалу) и **хронично** (изложеност зрачењу у дужем временском интервалу). Уколико се штетне последице зрачења јављају на потомству озрачене особе, оне се називају генетским. Од генетских ефеката јонизујућих зрачења издвајају се тачкасте мутације и хромозомске аберације [Turner, 2007].

Штетни ефекти зрачења се такође могу поделити на стохастичке и нестохастичке. Вероватноћа настанка стохастичких ефеката зависи од дозе зрачења (расте са дозом). Не постоји праг дозе испод које се ови ефекти неће појавити. Генетски ефекти и неки соматски ефекти су стохастичке природе. Појава канцера је главни соматски ефекат који настаје услед излагања ниским дозама. Минимални латентни период за изазивање канцера зрачењем је 10 и више година са изузетком леукемије и канцера костију (појављују се у периоду од 2-4 године). За разлику од стохастичких, нестохастички (детерминистички) ефекти показују јасну узрочно последичну везу са дозом. За њих постоји праг дозе испод

које се неће појавити (нпр. црвенило коже, катаракт), а изнад кога се увек појављују [Turner, 2007].

Основне последице зрачења на опште здравље становништва су канцер и генетски ефекти који се приписују истом биолошком феномену - прекиду база у молекулу ДНК. При продуженом излагању ниским и екстремно ниским дозама јонизујућих зрачења за опстанак ћелије су пресудни процеси на ћелијској мембрани [Dainiak, 1997; Janković-Mandić, 2011]. То значи да хронично излагање ниским дозама није занемарљиво, већ носи извештан ризик, имајући у виду дуг латентни период за појаву малигнитета изазваних јонизујућим зрачењима.

У циљу изучавања и јаснијег разумевања ефеката јонизујућих зрачења основане су међународне организације које дају препоруке по питањима заштите од зрачења, прикупљају и систематизују податке о ефектима и ризицима зрачења у свету, постављају стандарде сигурности за излагање:

- ICRP (International Commission on Radiological Protection) - међународна комисија за радиолошку заштиту;
- UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on Effect of Atomic Radiation) - научни комитет за ефекте атомских зрачења;
- IAEA (International Atomic Energy Agency) - међународна агенција за атомску енергију;
- WHO (World Health Organization) - светска здравствена организација и др.

1.4 Процена излагања јонизујућим изворима зрачења

1.4.1 Заштита од јонизујућег зрачења

Ефективна доза указује на ниво ризика при унутрашњем и спољашњем излагању. Процењује се на основу начина озрачивања и врсте радионуклида. Поред тога у обзир треба узети: начин живота и исхране, старост, пол, као и локалне геолошке и метеоролошке факторе. У циљу заштите утврђена је граница ефективне дозе на основу препорука

међународних организација (ICRP, WHO) и она за излагање појединца из опште популације јонизујућим зрачењима износи 1 mSv годишње [ICRP 103, 2007; ICRP 116, 2010]. Ради поређења у табели 1.3. дат је преглед годишњих ефективних доза за излагање становништва појединим изворима природног зрачења.

Табела 1.3. Годишње ефективне дозе од природних извора зрачења [UNSCEAR, 2008]

ИЗВОРИ ЗРАЧЕЊА		Средња вредност (mSv)	Опсег вредности (mSv)
Космичко зрачење	Директна јонизујућа и фотонска компонента	0.28	
	Неутронска компонента	0.10	
	Космогени радионуклиди	0.01	
	Укупно	0.39	0.3-1.0 ⁽¹⁾
Терестријално зрачење	Спољашње	0.07	
	Унутрашње	0.41	
	Укупно	0.48	0.3-1.0 ⁽²⁾
Инхалација	Низови урана и торијума	0.006	
	Радон	1.15	
	Торон	0.10	
	Укупно	1.26	0.2-1.0 ⁽³⁾
Ингестија	Калијум ⁴⁰ К	0.17	
	Низови урана и торијума	0.12	
	Укупно	0.29	0.2-1.0 ⁽⁴⁾
Укупно		2.4	1.0-13

⁽¹⁾ На нивоу мора;

⁽²⁾ Зависно од садржаја радионуклида у тлу и грађевинском материјалу

⁽³⁾ Зависно од унутрашње акумулације гаса радона;

⁽⁴⁾ Зависно од садржаја радионуклида у храни и води за пиће.

Становништво је перманентно изложено зрачењу које потиче од космичких зрака и радионуклида који се налазе у Земљиној кори, грађевинском материјалу, ваздуху, води и храни. Јачина дозе од космичког зрачења варира са географском ширином (већа је на половима него на екватору) и расте са надморском висином [UNSCEAR, 2000]. Јачина дозе зрачења од радионуклида из тла зависи од геолошких карактеристика посматране области. Примаран допринос дози првенствено инхалацијом даје радиоактивни гас радон (^{222}Rn и ^{220}Rn), о коме ће у другом поглављу бити више речи. Значајну дозу може произвести унос радионуклида из животне средине који су ушли у ланац исхране.

Циљ заштите од зрачења је да се усвајањем довољно ниских вредности спречи појава нестохастичких ефеката, а да се вероватноћа стохастичких ефеката сведе на прихватљив ниво. Основни концепт заштите од јонизујућих зрачења заснива се на ALARA (As Low As Reasonably Achievable) принципу: све дозе треба држати онолико ниско колико је то разумно могуће постићи. Другим речима, свако непотребно излагање зрачењу треба избећи, а неопходно свести на најмању могућу меру [Van der Stricht, 2001].

1.4.2 Неке карактеристичне величине у радијационој физици

Основна величина у радијационој физици, која квантитативно изражава ефекте јонизујућих зрачења на организме (ткива и органе) је **апсорбована доза** (или само доза), D . Дефинише се као количник средње енергије dE коју јонизујуће зрачење преда малом запреминском елементу масе dm органа или ткива и масе тог елемента запремине:

$$D = \frac{dE}{dm} \quad (1)$$

Промене које изазивају хемијски и биолошки ефекти на озраченом органу (ткиву) шире се запремински условљавајући реакцију читавог органа на озрачивање. Стога је неопходно усредњити дозу преко целог органа: дефинише се средња апсорбована доза у органу или ткиву, као количник укупне апсорбоване енергије у том органу и масе органа. Јединица за апсорбовану дозу и средњу апсорбовану дозу у органу је греј, $\text{Gy} = \text{J kg}^{-1}$.

Узимајући у обзир да различита зрачења не производе исте биолошке ефекте у ткиву дефинисана је **еквивалентна доза**, H_T као збир апсорбованих доза $D_{T,R}$, uteжњених радијационим тежинским факторима - w_R , карактеристичним за сваку врсту зрачења:

$$H_T = \sum_R w_R D_{T,R} \quad (2)$$

За алфа зрачење које интензивно јонизује средину кроз коју пролази $w_R = 20$, док је за продорно гама зрачење, које ствара просторно удаљена оштећења $w_R = 1$. Јединица еквивалентне дозе је сиверт, $Sv = J kg^{-1}$.

Еквивалентна доза процењује ризик од појаве канцера, али не узима у обзир различиту осетљивост ткива и органа на зрачење. Дозиметријска величина која то описује је **ефективна доза**:

$$E = \sum_T w_T H_T \quad (3)$$

Она представља збир еквивалентних доза по органима и ткивима усредњених ткивним тежинским факторима, w_T . Јединица ефективне дозе је такође сиверт, $Sv = J kg^{-1}$.

Ткивни тежински фактор је вероватноћа појаве канцера на неком органу при униформном озрачивању целог човечјег тела. Збир свих ткивних тежинских фактора је једнак јединици. У сврху рачунања ефективне дозе, људски организам је подељен у главне органе (за које је вероватноћа појаве канцера већа од 1 %) и остатак, који садржи све остале органе и у прорачуну ефективне дозе рачуна се као један орган. Ткивни тежински фактори су изведени из студија популације озрачене у Хирошими и Нагасакију, али су касније анализе и новодобијени подаци епидемиолошких студија довели до њихових промена и увођења нових органа у листу „главних органа“. У табели 1.4. приказани су ткивни тежински фактори дати у ICRP публикацијама [ICRP 60, 1991; ICRP 103, 2007] за 14 главних органа и остатак. У органе остатка спадају: адреналне жлезде, мозак, горњи део дебелог црева, танко црево, бубрези, мишићи, панкреас, слезина, тимус и утерус. Према публикацији ICRP 103 мозак и пљувачне жлезде сврстани су у основне органе због повећаног броја малигнитета ових органа, док су у органе остатка придодати лимфни чворови, срце и простата.

Табела 1.4. Ткивни тежински фактори [ICRP 60, 1991; ICRP 103, 2007]

Ткиво (орган)	Ткивни тежински фактор, w_T	
	ICRP 60 (1991)	ICRP 103 (2007)
Коштана срж	0.01	0.12
Бешика	0.05	0.04
Дојке/груди	0.05	0.12
Дебело црево	0.12	0.12
Гонаде	0.20	0.08
Јетра	0.05	0.04
Плућа	0.12	0.12
Једњак	0.05	0.04
Црвена коштана срж	0.12	-
Кожа	0.01	0.01
Стомак	1.12	0.12
Тироида	0.05	0.04
Површина костију	-	0.01
Мозак	-	0.01
Пљувачне жлезде	-	0.01
Остатак	0.05	0.12

1.4.3 Израчунавање јачине дозе од природних радионуклида

Процена излагања становништва јонизујућем зрачењу које потиче од природних радионуклида у земљишту заснива се на јачини дозе израчунатој на основу активности коју производе радионуклиди ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K . Јачина дозе $D(\text{nGy h}^{-1})$ у ваздуху 1 m изнад тла рачуна се на основу једначине [UNSCEAR, 2000]:

$$D = 0.462 \times A_{Ra} + 0.604A_{Th} + 0.0417 \times A_K \quad (4)$$

где су A_{Ra} , A_{Th} и A_K специфичне активности ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K (Bq kg^{-1}), респективно. При томе се претпоставља да други радионуклиди, као што су ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{235}U са својим потомцима незнатно доприносе укупној дози.

1.4.4 Израчунавање годишње ефективне дозе од природних радионуклида

Годишња ефективна доза E_E ($\mu\text{Sv y}^{-1}$) за излагање становништва природним радионуклидима из тла израчунава се на основу коефицијента конверзије апсорбоване дозе у ваздуху у ефективну дозу у људском телу који износи 0.7 Sv Gy^{-1} , према следећој једначини [*UNSCEAR, 2000*]:

$$E_E = 0.7 \cdot D \cdot t \cdot p \quad (5)$$

где је t годишње време експозиције (8760 h), а p је фактор 0.2 који се односи на време боравка становништва на отвореном.

1.4.5 Израчунавање индекса радијационог ризика

Индекс радијационог ризика услед спољашњег излагања H_{ex} је модификована величина радијумског еквивалента активности и може се изразити следећом једначином [*Beretka u Mathew, 1985; Papastefanou u др, 2005*]:

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \quad (6)$$

где су A_{Ra} , A_{Th} и A_K специфичне активности ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K (Bq kg^{-1}), респективно. Ризик није значајан ако је индекс радијационог ризика мањи од јединице.

1.4.6 Израчунавање јачине дозе од ^{137}Cs

Јачина дозе, D_{Cs} (nGy h^{-1}) у ваздуху која потиче од цезијума ^{137}Cs из тла на висини 1 m изнад површине у овом раду је рачуната се као збир конверзионих коефицијената k_i за све органе људског тела умножених са специфичном активношћу A_{Cs} :

$$D_{Cs} = A_{Cs} \sum_i k_i \quad (7)$$

Коришћени конверزيونи коефицијенти k_i за главне органе и остатак тела израчунати су на основу дозиметријског модела ORNL фантома и MCNP-4B софтверског програма [Krstić и Nikezić, 2006].

1.4.7 Израчунавање годишње ефективне дозе од ^{137}Cs

Ефективна доза која потиче од ^{137}Cs , E_{Cs} (nSv y^{-1}) у земљишту рачуна се на основу једначине:

$$E_{Cs} = \sum_T w_T \cdot D_{Cs} \quad (8)$$

умножене за фактор 0.2 боравка становништва на отвореном у току године. Вредности ткивних тежинских фактора, w_T узети су из табеле 1.4. према најновијој публикацији ICRP 103, за ткива и органе према публикацији ICRP 60 у којој је људско тело дефинисано са 12 главних и 10 органа који чине остатак.

2. РАДОН У ПРИРОДИ

Радон је радиоактиван елемент из групе племенитих гасова атомског броја 86. Познат је већи број изотопа радона масених бројева од 200 до 226. Већ је поменуто присуство неких изотопа у средини природних радиоактивних низова:

- ^{222}Rn - **радон** са периодом полураспада 3.824 дана у низу урана ^{238}U (слика 1.2.);
- ^{220}Rn - **торон** са периодом полураспада 55.6 s у низу торијума ^{232}Th (слика 1.5.);
- ^{219}Rn - **актинон** са периодом полураспада 3.92 s у низу урана ^{235}U (слика 1.3.).

Важност изотопа радона расте са њиховим присуством у природи и средњим временом живота (5.52 d за радон, 80.2 s за торон и 5.71 s за актинон). Како је у природи однос $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0.00719$, актинон се ствара у мањој количини од радона и уз то има краће време живота, те није значајан са радиолошког аспекта. С друге стране, иако торон релативно кратко живи у односу на радон, однос $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ у природи може да буде изузетно висок, што доводи до повећања концентрације торона према радону. Поменути су примери у свету (табела 1.2.) са повећаном радиоактивношћу, која је последица повећаног садржаја торијума у тлу: у Индији, у држави Керала песак монацит (ThPO_4) продукује високе концентрације торона; у Египту, делта Нила и у Бразилу приобално подручје Гуарапари су области са високом апсорбованом дозом у ваздуху услед присуства монацита. Поред тога, у експерименталним нискофонским мерењима торон даје значајан допринос фону (повећавајући грешку мерења).

2.1 Радон и торон

2.1.1 Физичке и хемијске особине

Откриће радона приписује се Фридриху Ернсту Дорну 1900. године. Елстер и Геител су га први детектовали у ваздуху, 1901. године [Cook, 1961; Milić, 2003]. Утврђено је да је радон радиоактиван гас без мириса, укуса и боје са највећом густином (9.73 kg m^{-3}) од свих

до тада познатих племенитих гасова. У поређењу са ваздухом тежи је ≈ 8 пута. Температуре топљења и кључања радона, вредности критичне температуре и притиска износе: 202 К и 211.4 К, 168.8 К и $63.2 \cdot 10^5$ Ра, респективно.

Особина радиоактивности дозвољава лаку детекцију и мерење радона, док особина инертности указује на покретљивост на нормалним температурама и слабу реактивност. Радон је најмање реактиван од свих племенитих гасова и једино гради флуориде, RnF_2 и RnF_6 . Растворљивији је у води од осталих племенитих гасова, али се растворљивост у њој смањује са порастом температуре [Sykes, 1998]. Раствара се и у сумпор угљенику, хлороформу, етил етру, етил шпиритусу, ксилолу и толуолу. Спектар радона је сличан спектрима осталих племенитих гасова.

2.1.2 Извор

Настанак радона ^{222}Rn у минералним зрнима резултат је директне еманације из радијума ^{226}Ra (слика 1.2.), док се процес настајања торона ^{220}Rn везује за директну еманацију из радијума ^{224}Ra (слика 1.5.). Еманација је процес ослобађања атома радона из минералног зрна у просторе пора, обично узмаком у алфа распаду родитељског атома радијума. Брзина настајања радона и торона у минералима је константна величина, зависна само од концентрације родитељских елемената (урана, торијума и радијума). Најзначајнији извори радона су гранитне, вулканске стене, руде урана и фосфатне стене, као и алуминијумски шкриљци и гнајсеви [Thad, 2001]. Извор радона може бити и радијум који се у раствороном облику транспортом исталожио далеко од места настанка.

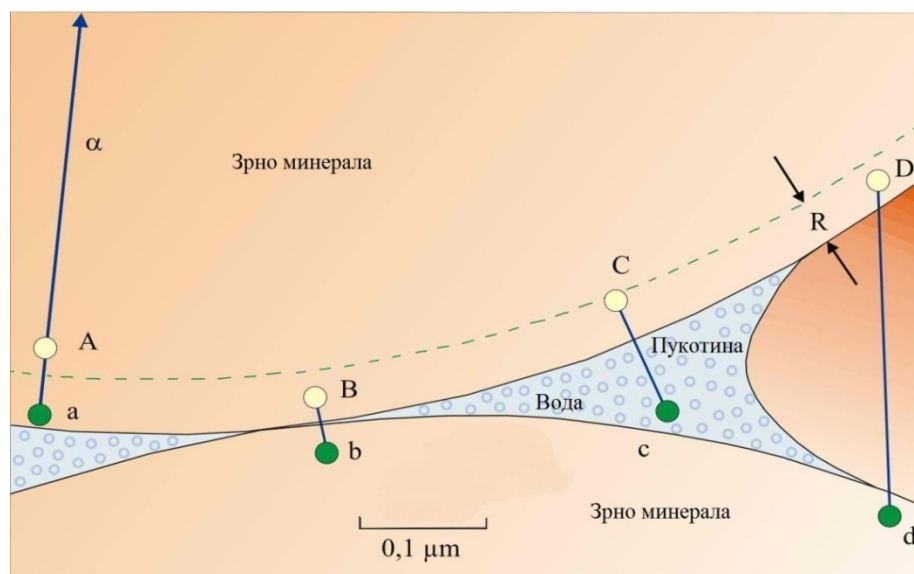
С друге стране, брзина настајања радона у земљишту није константна, јер на концентрације утиче низ других фактора о којима ће више речи бити у даљем тексту.

2.1.3 Еманација

На примеру ^{222}Rn биће објашњен процес еманације радона из минералног зрна.

На слици 2.1. приказана су два минерална зрна промера 10^{-6} m која се додирују. Атоми ^{226}Ra су жути, а атоми ^{222}Rn зелени кружићи. Домет радона R је представљен

испрекиданом линијом. При распаду радијума ^{226}Ra емитује се α -честица енергије 4.78 MeV, а новоформирано језгро радона ^{222}Rn узмакне са енергијом 86 keV. У минералном зрну нормалне густине атом радона може да се помери са места генерисања у решетки минерала на растојање од $0.02\text{--}0.07 \cdot 10^{-6}$ m. Пређено растојање управо омогућава атому радона да напусти минерално зрно [Fleischer, 1980, 1982; Kigoshi, 1971; Tanner, 1980].



Слика 2.1. Приказ путања атома радона између и унутар два зрна минерала

Коефицијент еманације радона се дефинише као део укупног броја атома радона насталих распадом радијума, који се ослободе у просторе пора стена или земље. Коефицијент еманације чине три компоненте које потичу од:

- директног узмака,
- индиректног узмака и
- молекуларне дифузије,

а односе се на место завршетка путање атома радона у зрну минерала. Директан узмак доживљавају атоми радона који завршавају свој пут у водом испуњеном простору између два суседна зрна минерала (слика 2.1. приказ C-c). Они настављају кретање дифузијом кроз воду и транспортују се даље с њом [Kigoshi, 1971]. Атоми који напуштају зрно минерала у коме су створени, пролазећи међупростор (пукотину) продиру у суседно зрно, и доживљавају индиректни узмак (слика 2.1. прикази B-b и D-d). Молекуларна дифузија се

односи на оне атоме радона којима је почетак и крај путање унутар појединог зрна минерала, а који дифузијом мигрирају у простор између њих (слика 2.1. приказ А-а). Уколико је међупростор сув, радон може узмакнути у суседно зрно минерала. Оштећење дуж трага узмака може попунити вода. Ако се првобитно сува зрна минерала поквасе пре него се распадне атом радијума, онда се узмакнути атоми радона ефективније заустављају у простору између зрна. Овај ефекат је откривен у кварцу, а карактеристичан за мусковит, ортоклас, апатит и сфен [Fleischer, 1980, 1982].

Већина атома радона насталих распадом радијума лагано дифундује и напушта место стварања. Мањи део атома радона се ослобађа из минералних зрна пре распада и кроз поре креће до површине тла. Колико ће створених атома прећи из минералних зрна у поре зависи од положаја атома радијума у зрну, састава, величине и сорпције на површини зрна, садржаја воде, температуре и величине пора земљишта.

Концентрација радона у ваздуху земље C_{max} ($Bq\ m^{-3}$), зависи од специфичне активности радијума у стенама и тлу A ($Bq\ kg^{-1}$), коефицијента еманације радона из минералних зрна у просторе пора e (бездимензионална величина), компактне густине минерала d ($kg\ m^{-3}$) (просечна густина минерала земље је $2.7 \cdot 10^3\ kg\ m^{-3}$), и порозности ε (односа запремине пора према укупној запремини) према следећој једначини:

$$C_{max} = \frac{A \cdot e \cdot d(1 - \varepsilon)}{\varepsilon} \quad (9)$$

Брзина стварања радона (^{222}Rn и ^{220}Rn) у минералима је константна величина, па је и коефицијент еманације константан за магматске и седиментне стене, као и за минерале руда. Седиментне стене имају мањи коефицијент еманације радона од осталих типова земљишта, тј. мање су порозне. За земљиште је коефицијент еманације променљив услед геохемијских и метеоролошких услова. Нпр., фине фракције глине имају далеко већи сорпциони капацитет од кварцног песка [Tanner, 1980]; присуство воде и влаге у порима земљишта спречава сорпцију радона на површини зрна, тј. повећава његову еманацију. Еманација радона је већа код земљишта са ситнијим зрнима (нпр. глина). Разлог је већа порозност ситнијих честица, тако да након формирања у њима, атоми радона лако могу да пређу у просторе пора. Еманација радона је већа из влажног тла него из сувог. То значи,

повећањем садржаја воде у порама тла, повећава се концентрација радона у ваздуху пора, па је већа и еманација. Нпр. ако се садржај воде повећа од 0% до 5%, еманација се повећа 2-3 пута [Markkanen u Arvela, 1992; Milić, 2003]. Уобичајене вредности за порозност земљишта се крећу између 0.25-0.5.

2.1.4 Транспорт

Транспорт радона кроз земљиште описује следећа диференцијална једначина [Durrani u Пић, 1997]:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{ef} \cdot \Delta C - \nabla(\vec{v} \cdot C) - \lambda \cdot C + \phi \quad (10)$$

где су: C - концентрација радона у простору поре (m^{-3}), D_{ef} - ефективни коефицијент дифузије радона ($m^2 s^{-1}$), \vec{v} - брзина транспорта радона ($m s^{-1}$), λ - константа радиоактивног распада радона (s^{-1}), ϕ – генерисање радона ($m^{-3} s^{-1}$).

Први део десног дела једначине (10) описује дифузију, други адвекцију, трећи дезинтеграцију (радон се распада током дифузионог процеса,) и четврти изворе радона. Једначина може да се реши нумерички, нпр. методом коначних разлика [Savović u др, 2012].

Дифузија радона описује се Фиковим законом, који повезује градијент концентрације са флуksom радона (атоми радона крећу низ градијент концентрације). За најједноставнији једнодимензионалан случај једначина која описује дифузију радона има облик:

$$J_d = -D_{ef} \cdot \frac{\partial C}{\partial z} \quad (11)$$

где су: J_d - флуks радона ($Bq m^{-2} s^{-1}$), $\frac{\partial C}{\partial z}$ – градијент концентрације дуж правца z ($Bq m^{-4}$). Негативан предзнак означава да се дифузија врши у правцу смањења концентрације.

Електронска конфигурација радона ограничава његову хемијску реактивност. Зато радон може да се нађе далеко од места еманације. Важну улогу у томе има процес дифузије

(кретање иако ограниченог домета одвија се услед разлике у концентрацијама радона). „Дифузиона дужина“, l је просечна дужина коју радон прелази дифузионим кретањем, и израчунава се: $l = (D \cdot \tau)^{1/2}$, где је D - коефицијент дифузије, а τ - средње време живота изотопа радона. „Дифузиона дужина“ је битна због ефективног померања радона и торона. За ^{222}Rn је експериментално одређена: за суво земљиште износи 1.6 - 1.9 m, док је за земљиште са доста воде $l = 0.01$ m [Nagda, 1998]. Од атома радона који су еманирали са извора дубоко у земљи и крећу се дифузијом, 90% се дезинтегрише после пређеног растојања: 5 cm у води, 2 m у песковитој земљи са просечним садржајем влаге, 5 m у ваздуху [UNSCEAR, 1982]. Због кратког времена живота, торон прелази средње растојање од 2.85 cm дифузионим кретањем у ваздуху [Fleischer, 1997; Kher и др, 2008].

Дифузионо кретање радона кроз земљиште зависи од његове пермеабилности, која је условљена величином честица, степеном компактности и садржајем воде у њему. У табели 2.1. су наведене вредности коефицијената дифузије радона кроз неке средине [UNSCEAR, 1982]. Повећањем порозности повећава се степен дифузије радона (мања влажност земљишта омогућава интензиван процес дифузије радона, нпр. сув и влажан песак). Порознија средина, као што је шљунак има већи коефицијент дифузије, тј. омогућава обимнији дифузиони транспорт од глине. Пермеабилност стена и земље су најзначајнији фактори при транспорту радона. У тренутку када се изједначе концентрације радона у минералним зрнима и у порама тла, дифузија и транспорт радона престају.

Табела 2.1. Коефицијенти дифузије за радон [UNSCEAR, 1982]

Средина	D ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)
Ваздух	10^{-5}
Крупан шљунак	$10^{-5} - 5 \cdot 10^{-6}$
Суви песак	10^{-5}
Влажни песак	$2.5 \cdot 10^{-6}$
Земљиште	$5 \cdot 10^{-7} - 2.5 \cdot 10^{-7}$
Глина	$8 \cdot 10^{-8}$
Вода	10^{-9}

Растојања са којих радон долази су врло значајна са аспекта истраживања и трагања за рудом урана. Геолошки подаци о локацијама са вишеструко повећаним концентрацијама радона могу означити потенцијално налазиште. Међутим, због миграције радијума и дифузије радона, наслаге урана не морају да леже вертикално испод локализоване аномалије радона. Подземне воде такође могу да учествују у премештању места минерализације урана, па повећане концентрације радона могу пружити непоуздане податке о налазишту. Посебно, зоне раседа могу бити узрок повећане еманације радона из радијума раствореног у подземној води који се таложи на површини пукотина. У зони раседа концентрације угљен-диоксида и хелијума су повећане; с њима се радон транспортује до површине земље [Hunyadi и др, 1995; Milić, 2003].

Процес конвекције зависи од градијента притиска. Услед разлике у притисцима који владају између ваздуха у порама земљишта и атмосферског ваздуха долази до вертикалног струјања. Утицај струјања је јако изражен на дубинама од 0.5-1 m, док је на дубинама већим од 10 m безначајан. Градијент притиска могу да проузрокују и различити геофизички и геохемијски феномени, као што су: земљотреси, ерупције вулкана, подземне експлоатације нафте и урана. При томе се јављају ефекти емисије и конвекције различитих гасова (CO_2 , CH_4 , H_2S , SO_2 , H_2) који су погодни и за транспорт радона ка површини земље.

Процес адвекције нема великог значаја на целокупан процес транспорта радона. Настаје услед разлике у хоризонталним струјањима ваздуха кроз порозну средину изазивајући мале промене у еманацији радона у земљишту испод објекта. За једнодимензионални случај описује се помоћу Дарсијевог закона:

$$v = -\frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{k}{\eta} \frac{\partial P}{\partial z} \right) \quad (12)$$

где су: ε - порозност земљишта, k - пермеабилност (m^2), η - динамичка вискозност ваздуха (Pa s), $\frac{\partial P}{\partial z}$ – градијент притиска дуж слоја дебљине z (Pa m^{-1}).

2.1.5 Понашање у атмосферском ваздуху

Иако су у одређеном геолошком подручју садржаји радионуклида, као и количина насталих гасовитих потомака у минералима стена готово непроменљиви, у атмосферском ваздуху концентрације гасовитих продуката немају сталне вредности. На местима где напушта земљу, радон се дифузијом разређује са ваздухом до вредности од 8-14 Bq m⁻³, на висини 0.5 m изнад земље [Durrani и Ilić, 1997]. Средња годишња вредност концентрације радона у спољашњој средини варира од 0.1-10 Bq m⁻³, а просечна вредност изнад копна је 3 Bq m⁻³[UNSCEAR, 1982]. Концентрација радона на датој локацији је врло варијабилна величина, зависна од низа фактора: климатских, метеоролошких (температура, притисак, влажност, струјање ваздуха), морфолошког стања тла, итд. Ови фактори утичу да се радон разноси у свим правцима чинећи га примарним извором природне радиоактивности у нижим слојевима атмосфере. Са повећањем висине, концентрација радона се смањује, јер се због кратког времена живота атоми радона распадно пре него достигну неку висину [UNSCEAR, 1982].

Температура и притисак имају значајан утицај на концентрацију радона у приземном слоју ваздуха: пораст температуре и нижи атмосферски притисак погодују елиминисању влаге из земљишта, што подстиче екshalацију радона (емисију радона са површине земљишта дифузионим или конвективним кретањем кроз просторе пора). Супротно, ниске температуре са интензивним падавинама (ледени покривач и снежне падавине) представљају баријеру за продор радона, тако да се он накупља у порама тла. Овакви услови узрокују малу концентрацију радона у ваздуху у зимском периоду.

Након распада радона, више од 50% потомака адсорбује се на постојећим аеросолима у ваздуху, који се постепено таложе на површини тла. То је разлог што се у атмосферском ваздуху не успоставља равнотежа између радона и потомака. Такође, промена концентрације радона није у складу са променом концентрације његових потомака. На пример, при интензивним струјањима ваздуха евидентно је смањење обе концентрације. При повећању или смањењу температуре и при релативно великој влажности ваздуха, концентрација (број) радиоактивних аеросола у приземним слојевима ваздуха је већа од концентрације радона [Durrani и Ilić, 1997].

Концентрације торона у приземним слојевима атмосфере су знатно ниже од концентрација радона, првенствено због кратког растојања које може да пређе у току свог времена живота. Изузетке представљају геолошка подручја са повишеним садржајем торијума у тлу [UNSCEAR, 2000; Kher *и др*, 2008].

Концентрације радона су мање над океанима и у области северног и јужног пола за два реда величине у односу на континенталне делове. Унутар минералних зрна концентрација радона је за око седам редова величине већа од исте у ваздуху изнад океана (табела 2.2.).

Табела 2.2. Концентрације радона ^{222}Rn у различитим срединама [Fleischer, 1988; Durrani *и Ilić*, 1997]

Место продукције радона	Концентрација (cm^{-3})
Ваздух над океанима	0.04
Ваздух изнад земљине површине	4
Типична кућа у САД	20
Ваздух у земљишту	20000
Минерална зрна	500000

Поред геолошких карактеристика тла непосредни утицај на концентрацију радона на малим дубинама имају метеоролошки параметри: температура, притисак, брзина ветра, итд. До значајног смањења нивоа радона у ваздуху долази и за време јаког дуготрајног ветра.

Концентрација радона може достићи максимум на дубини од 2 m у земљи, што зависи од комплексних процеса транспорта радона и расподеле извора. Мерење радона у земљишту је неопходно извести на дубини 0.7-1 m, где се успоставља равнотежа између површинских мерења (под утицајем метеоролошких услова) и мерења на дубини [Nikolić *и др*, 2010].

У свету се изводе системска мерења радона у земљишту ради идентификације зона са повећаним концентрацијама, с циљем спречавања изградње или доношења мера санације на изграђеним објектима у којима су установљене веће концентрације.

2.2 Радон и торон у затвореним просторијама

Радон доспева у затворене просторије директно из земље дифузионим транспортом кроз грађевинске материјале: темеље и подове, али и из атмосфере преко зидова и прозора. Кроз поре и шупљине у земљишту, везујући се за ваздух или воду, радон проналази место уласка у затворену просторију повећавајући концентрацију у односу на остале делове просторије. Значајан утицај на концентрације радона у затвореним просторијама имају јачина еманације, јачина ексхалације, као и флукс радона из зидова који зависи од: особина зидова, метеоролошких параметара, атмосферског притиска, температуре, струјања ваздуха итд.

Ваздух у затвореним просторијама садржи аеросоле којима се могу припојити потомци из распада радона. Они се у форми припојене и слободне фракције таложе на површинама у затвореним просторијама.

2.2.1 Фактори који утичу на концентрацију радона у затвореним просторијама

На повећање концентрације радона у затвореним просторијама утичу: његова еманација из земљишта и грађевинског материјала, порозност средине кроз коју дифундује и вентилација просторија.

Концентрација радона у објектима, C_{Rn}^{in} зависи од концентрације радона у спољашњој средини, C_{Rn}^{out} и низа независних, мултипликативних фактора, као што су: садржај радијума у земљишту, пермеабилност (порозност и влажност) земљишта, број и интензитет извора радона у објекту, вентилација објекта, на следећи начин:

$$C_{Rn}^{in} = C_{Rn}^{out} + A \cdot B \cdot C \cdot \dots \quad (13)$$

или

$$\ln(C_{Rn}^{in} - C_{Rn}^{out}) = \ln(A) + \ln(B) + \ln(C) + \dots \quad (14)$$

где су A, B, C – независни, мултипликативни фактори који одређују колико радона долази са извора и колико дуго се задржава. Ова једначина је у складу са захтевима за нормалну расподелу као збир независних фактора: ако има довољно много независних насумице дистрибуираних фактора, онда би $\ln(C_{Rn}^{in} - C_{Rn}^{out})$ требало да има нормалну расподелу. Еквивалентно томе, $(C_{Rn}^{in} - C_{Rn}^{out})$ има логнормалну расподелу [Durrani и Ilić, 1997].

2.2.1.1 Земљиште као извор радона

Најјачи извори радона су земљиште и стене дубоко испод објекта које су богате ураном и радијумом или се налазе у близини рудних лежишта (у примесама руда фосфата, олова и цинка и других сировина). Фисуре (пукотине) и раседи у земљи испод објекта омогућавају ефикасан транспорт радона процесом дифузије. Концентрација радона у земљишту значајно зависи од врсте земљишта и региона. Допринос радијума из земљишта концентрацији радона у близини објекта зависи од јачине еманације, дебљине и чврстоће грађевинског објекта.

Радон може директно из земље да дифундује кроз темеље у затворене просторије, али и из атмосфере преко зидова и прозора. Пuteви улаза радона су отвори и пукотине у бетонским плочама и блоковима, лоше везе између зидова и плоча, лоша изолација између појединих грађевинских материјала, одводне цеви, сливници и др. Радон из земље улази и процесом адвекције у затворене просторије, јер је у њима стално присутан нижи притисак.

2.2.1.2 Вентилација

Концентрације радона у затвореним просторијама су далеко веће због „нагомилавања” радона услед сталног дотока из земљишта и грађевинских материјала, или услед смањеног проветравања. То значи да је интензивна вентилација ефикасан начин да се елиминише радон из затворених просторија, тј. навике и понашање становника који бораве у њима (нпр. отварање прозора и врата) значајно могу утицати на ниво радона. Јачина вентилације од 1 h^{-1} одговара добро вентилисаним просторијама. Спољашњи услови (нпр.

слаб интензитет ветра када нема ваздушних промена у објекту) понекад могу утицати на нагло повећање нивоа радона у затвореним просторијама [Jonsson, 1992].

2.2.1.3 Грађевински материјали

Извори радона у ваздуху затворених просторија моги бити и сами грађевински материјали који садрже повећану концентрацију радијума и торијума [Popović u Todorović, 2006; Krstić u др, 2007]. Радиоактивност грађевинског камена зависи од минералног састава, нпр. гранит, алуминијумски шкриљац и вулкански туф имају повишен садржај природних радионуклида. Песак и шљунак имају вредности специфичних активности радијума блиске средњој вредности за земљишта. Садржај природних радионуклида у грађевинским материјалима зависи од места и начина производње. Употреба секундарних сировина из индустријских поступака (електрофилтерски пепео-добијен сагоревањем угља у термоелектранама или сагоревањем бокситне руде-шљака) има за последицу повећање садржаја природних радионуклида у грађевинском материјалу. Високотемпературска обрада материјала смањује јачину ексхалације радона из грађевинског материјала, услед збијања микрочестица и затварања пукотина. Зато црвена цигла, пепео, цемент, шљака имају мали коефицијент еманације η око 1%, док материјали који тек треба да се термички обраде (силикатна цигла, шљунак, песак) имају далеко већи коефицијент еманације око 10%.

2.2.1.4 Остали извори

Површинске воде, природни гас и угаљ су секундарни извори радона у затвореним просторијама. Вода коју становништво користи за потрошњу садржи мало радона, због тога што долази из отворених водених басена (река и језера) и након третирања из ње се ослобађа радон. Концентрација радона подземним и минералним водама зависи од петролошких карактеристика, тј. од садржаја ^{238}U и ^{226}Ra : подземне воде у гранитним подручјима имају највећи ниво радона. Нивои радона неким бунарима у САД превазилазе 10^6 Bq m^{-3} , а у Немачкој се концентрације радона у ваздуху у постројењу за третирање подземне воде крећу до неколико стотина хиљада Bq m^{-3} [UNSCEAR, 2006].

2.2.1.5 Сезонске и дневне промене

Услед метеоролошких фактора долази до дуготрајних (повезаних са сменом годишњих доба) и краткотрајних (дневних) промена у концентрацији радона.

Сезонске промене везане су за параметре температуре, притиска и влажности, а од њих зависи концентрација радона у слоју ваздуха изнад земљишта. Максимум концентрације радона у затвореним просторијама треба очекивати у јесен или на почетку зиме, јер је тада највиши ваздушни притисак и нема интензивних струјања ваздуха. Опadaње концентрације радона може се очекивати у пролеће, а минимум у лето. На сезонске варијације концентрације радона у затвореним просторијама утиче још неколико параметара: врста објекта, извор радона, навике укућана, вентилација и грејање објекта.

Један од фактора који може довести до повећања концентрације радона у зимском периоду је начин загревања просторија. Сагоревање чврстог или течног горива могуће је у присуству свежег ваздуха, што доводи до смањења притиска у затвореним просторијама. Ови услови дозвољавају интензивнији продор радона из земљишта. Чак и у случајевима краткотрајног отварања прозора, након затварања долази до наглог пораста концентрације радона. Како је температура у затвореној просторији већа од спољне, конвекциона кретања ваздуха (од нижих ка вишим деловима просторије) су главни разлог промена у концентрацији радона зими [Jonsson, 1992]. Облачно и хладно зимско време производи слабе промене у концентрацији радона [Porstendörfer, 1994].

Дневне варијације концентрације радона су такође везане за атмосферске промене (температура, притисак и ветар, а они су повезани и са дневном сатницом). Око поноћи и у раним јутарњим часовима јавља се максимум концентрације радона због температурне инверзије која спречава вертикално струјање ваздуха. Након свитања долази до постепеног загревања и до издизања ваздуха са површине тла, и смањења концентрације радона. У поподневним часовима се ваздух најинтензивније премешта, доводећи до изједначавања концентрације радона по висини, тј. смањења у приземном слоју ваздуха. У вечерњим часовима расте стабилност атмосфере, а тиме и концентрација радона. То је показано експериментима [Chao и др, 1997].

2.2.2 Вертикална и хоризонтална расподела

Системска истраживања спроведена у свету [Jonsson, 1992; Denman, 2007] у циљу установљавања расподеле концентрације радона по висини (спратности) објекта довеле су до следећих закључака: највећа концентрација радона је у подземним спратовима зграда, подрумима и гаражама, због дирекне везе са земљом и слабе вентилације. У приземљу је мања концентрација радона него у подруму, а још мања је на првом спрату. Даљим порастом спратности концентрација радона нагло опада, тако да је на спратовима вишим од трећег у граници грешке мерних уређаја. За стандардне методе мерења се узима да на спратовима који су изнад другог спрата нема значајне концентрације радона. У једном истраживању у Београду нађено је да концентрација радона опада са спратношћу (од приземља ка вишим спратовима) приближно 20% [Popović u Todorović, 2006]. Слично је показано у истраживању концентрације радона у згради од 12 спратова у Хонгконгу [Chao u др, 1997]. Анализом вертикалне расподеле радона у приземљу и на пет спратова у 97 објеката у Трабзону (Турска) утврђена је разлика у концентрацији радона (постепено опада са порастом спратности у просеку од 236 Bq m⁻³ до 51 Bq m⁻³) [Kurnaz u др, 2011].

Истраживања хоризонталне расподеле концентрације радона показују [Jonsson, 1992; Denman, 2007] приближну уједначеност у различитим просторијама на истом спрату објекта. Ако су зидови, подови и плафони од истог грађевинског материјала на истом спрату, евентуалне разлике у концентрацији радона између две просторије на истом спрату могу потицати од навика укућана, грејања и вентилације [Denman, 2007].

Експериментални подаци потврђују да је амбијентално понашање радона условљено терестријалним пореклом и гасовитом природом. Расподела радона у просторији је униформна.

Истраживања торона (повезаност са геологијом и понашање) у затвореним просторијама нарочито су актуелна последњих година. У областима са високом концентрацијом торијума у тлу и стенама (геолошке формације богате минералима ²³²Th) или у затвореним просторијама са високим садржајем ²³²Th у грађевинским материјалима могу се очекивати високе концентрације торона. Концентрација торона слабо зависи од јачине вентилације, тако да се не акумулира у затвореним просторијама [Tommasino u др, 2010]. Краће време живота торона (55.6 s) у односу на радон указује на много мању

вероватноћу инфилтрације из земље у објекте. Из истог разлога, за торон се не може претпоставити да је униформно распоређен у просторији [Doi *и др*, 1994; Janik *и др*, 2013]. Веома нехомогена расподела јако зависи и од удаљености од површина са којих торон ексхалира. Концентрација експоненцијално опада са растојањем од извора (зида, плафона или пода просторије) [Nikezic *и Stevanovic*, 2007; Urosevic *и др*, 2008]. Ако се прихвати да је примарни извор торона грађевински материјал, нижи ниво вентилације може довести до нагомилавања у просторији [Kovacs, 2010]. У објектима саграђеним од вулканског материјала измерене су веће концентрације торона од радона [Bochicchio *и др*, 1996].

2.2.3 Потомци радона и торона

α - распадом радона настају краткоживећи потомци полонијума ^{218}Po , олова ^{214}Pb , бизмута ^{214}Bi , полонијума ^{214}Po и дугоживећи потомак олова ^{210}Pb (слика 1.2.). Он доживљава распад преко ^{210}Bi и ^{210}Po , који га воде до стабилног елемента у природи изотопа олова ^{206}Pb .

Слично радону, торон се распада кроз низ од пет трансформација до стабилног изотопа ^{208}Pb (слика 1.5.), при чему настају краткоживећи потомци ^{216}Po , ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{212}Po чији се периоди полураспада значајно разликују. ^{216}Po је увек у блиској равнотежи са гасом тороном, због кратког времена живота; ^{212}Pb због дужег времена живота може бити удаљен вентилацијом из собе и његова активност у ваздуху затворених просторија варира од 2% до 10% [Prasad *и др*, 2010]. Атоми ^{212}Pb носе највећи део потенцијалне енергије α - честица које се емитују при распаду, док је концентрација атома ^{212}Bi далеко мања (<5%) и део је активности родитеља [Mishra *и Maууа*, 2008].

Енергије и домети α - честица емитованих распадом радона, торона и њихових α - радиоактивних потомака у ваздуху и води су наведене у табели 2.3.

Затворене просторије садрже већи број аеросола (мањег дијаметра) у односу на отворен простор. У ваздуху затворених просторија велики део новоформираних атома из распада радона и торона је позитивно наелектрисан. У току свог кретања сударају се са молекулима водене паре и формирају кластере; ови кластери су познати као неприпојени (слободни) потомци дијаметра од 0.5-5 nm. У току даљег кретања могу се срести и

припојити природним атмосферским аеросолима различитог састава, облика и димензија; тако настају припојени потомци са дијаметрима од 50 nm до неколико стотина μm .

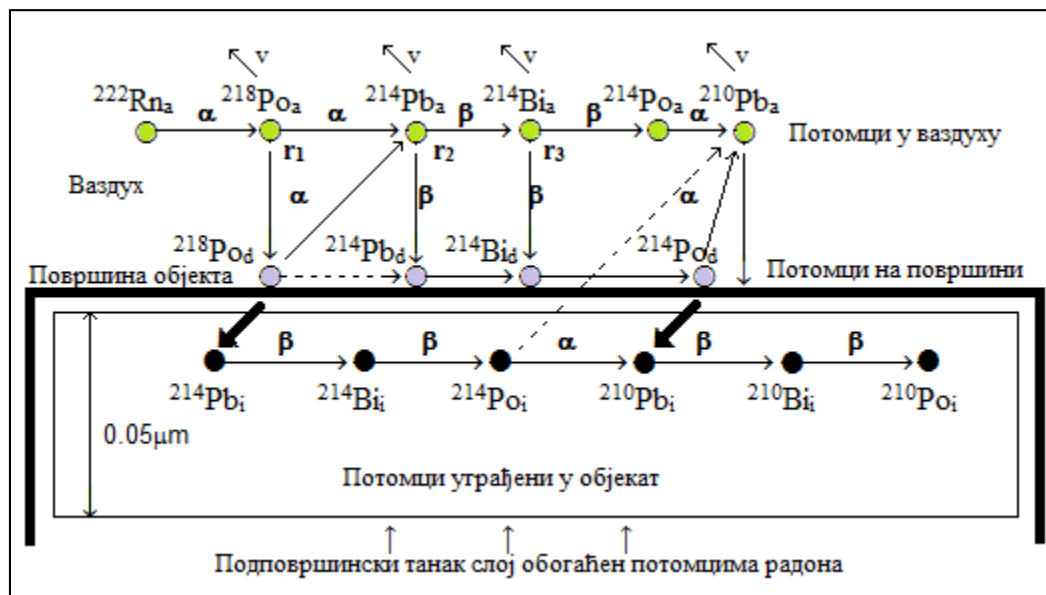
Табела 2.3. *Енергије и домети α – честица из распада радона и торона у води и ваздуху*

Радионуклид	α - честице		
	Енергија (MeV)	Домет у води (μm)	Домет у ваздуху (cm)
^{222}Rn	5.49	39	4.08
^{218}Po	6.00	44	4.67
^{214}Po	7.69	66	6.91
^{220}Rn	6.29	48	5.01
^{216}Po	6.78	41	5.67
^{212}Po (64%)	8.78	83	8.53
^{212}Bi (36%)	6.05	45	4.73

Услед сталних судара потомци се спајају и повећавају, али се такође и распадају, одвајају и таложе [Porstendörfer *и др*, 1984]. Припојени и неприпојени (слободни) потомци се таложе на површинама унутар затворених просторија (на површинама зидова, подова и намештају). Депозицијом се значајно смањује концентрација радонових потомака у затвореним просторијама. Таложење зависи од концентрације аеросола, расподела аеросола по величинама, јачине вентилације. Вероватноћа таложења (брзина депозиције) потомака је значајно већа за неприпојене него за аеросолима припојене потомке радона [Stevanovic *и др*, 2009]. Нпр., ^{218}Po се припаја молекулима водене паре, кисеоника и других гасова. Распадом припојеног потомка ^{218}Po емитује се α - честица; новонастало језгро доживљава узмак који је довољан да одвоји атом од аеросола: енергија узмака језгра ^{214}Pb износи од 117 keV до 125 keV, а енергија везе атома у аеросолу је реда величине eV. Вероватноћа за процес одвајања тј. фактор узмака износи око 0.8 [Mercer, 1976], али је показано да може бити и знатно мањи [Stevanovic *и др*, 2004].

На слици 2.2. приказано је понашање радонових потомака у близини површине објекта и уградња атома у танак подповршински слој (ознаке на слици: v- атоми уклоњени

вентилацијом, γ - депозициони флукс; индекси означавају: а- атоми у ваздуху, d- атоми депоновани на површини, i- атоми уграђени у подповршински слој; стрелице означавају: \rightarrow распад потомака, \downarrow депозиција потомака, \swarrow уградња атома, \nwarrow уклањање вентилацијом, \nearrow одвајање од површине, \dashrightarrow занемарљиви процеси) [Nikezic и Yu, 1999].



Слика 2.2. Понашање радонових потомака у близини површине објекта и уградња неких атома у танак подповршински слој [Nikezic и Yu, 1999]

У нормалним условима таложeње потомака онемогућава достизање потпуне равнотеже између радона ^{222}Rn и потомака (и такође између торона ^{220}Rn и потомака). Уз то, у затвореним просторијама у којима се борави постоји извесна размена ваздуха, тако да поједини атоми у дезинтеграционом низу имају могућност да их напусте.

Процеси који контролишу концентрацију потомака торона не зависе од стварања торона. Торониви потомци, с обзиром да дуже живе од торона могу се расподелити мање-више униформно у просторији и њихове активности ће представљати просечну концентрацију торона [Мауа и др, 1998].

Два потомка торона су α - емитери: ^{216}Po (услед кратког времена живота углавном се не припаја аеросолима у ваздуху) и ^{212}Bi (пошто настаје β - распадом има малу енергију узмака и углавном се не одваја од носећег аеросола). Енергије узмака њихових потомака, ^{212}Pb и ^{208}Tl су 128 keV и 116 keV, респективно [Nikezic и Stevanovic, 2007]. Атоми ^{212}Pb су

углавном припојени или депоновани на површинама, зато што релативно дуже живе у односу на торон (10.6 h). Активност неприпојеног ^{208}Tl износи $\sim \leq 0.1\%$ активносне концентрације ^{220}Rn . Однос концентрације потомака према концентрацији торона опада са јачином вентилације [Nikezic и Stevanovic, 2007].

2.3 Величине које карактеришу концентрацију радона, торона и потомака

2.3.1 Равнотежне еквивалентне концентрације

Концентрацију потомака радона која је у еквивалентној равнотежи са концентрацијом гаса радона *EERC* (Equilibrium Equivalent Radon Concentration) могуће је израчунати према формули [UNSCEAR, 2000]:

$$EERC = 0.105 \cdot C_1 + 0.515 \cdot C_2 + 0.380 \cdot C_3 \quad (15)$$

где су C_1, C_2, C_3 - активносне концентрације у Bq m^{-3} ^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi , респективно. Допринос од ^{214}Po је занемарљив.

Равнотежна еквивалентна концентрација торона *EETC* (Equilibrium Equivalent Thoron Concentration) рачуна се према формули:

$$EETC = 0.913C_4 + 0.087C_5 \quad (16)$$

где су C_4 и C_5 активносне концентрације ^{212}Pb и ^{212}Bi у Bq m^{-3} , респективно.

2.3.2 Равнотежни фактори

Равнотежни фактор за радон, F_{Rn} изражава степен неравнотеже између концентрација краткоживећих потомака и гаса радона [Swedjemark, 1983]:

$$F_{Rn} = \frac{EERC}{C_{Rn}} \quad (17)$$

где је C_{Rn} – концентрација радона у $Bq\ m^{-3}$. Слично се дефинише и равнотежни фактор за торон, F_{Tn} :

$$F_{Tn} = \frac{EETC}{C_{Tn}} \quad (18)$$

где је C_{Tn} – концентрација торона у $Bq\ m^{-3}$. Равнотежни фактор за радон (или за торон) се дефинише као однос стварне концентрације потенцијалне енергије α - честица према концентрацији потенцијалне енергије α - честица која би постојала да су сви продукти распада у одговарајућем низу у радиоактивној равнотежи са радоном (тороном) [UNSC^{EAR}, 2006]. На вредности равнотежних фактора нарочито утичу различити амбијентални услови и вентилација.

2.3.3 PAEC, слободна и припојена фракција

Присуство и деловање потомака радона (или торона) се мери и истражује заједно, тако да се не говори о њиховим појединачним концентрацијама, већ о концентрацији потенцијалне енергије α - честица које се емитују при распаду, PAEC (Potential Alpha Energy Concentration). PAEC је сума потенцијалних алфа енергија свих атома у $1\ m^3$ ваздуха било које смеше краткоживећих радонових или торонових потомака [Swedjemark, 1983] и може се изразити једначином:

$$PAEC = \sum_{i=1}^N N_i E_i \quad (19)$$

где су: N_i - концентрација i - тог радоновог краткоживећег потомка изражена у m^{-3} , E_i - потенцијална α - енергија коју емитује i - ти потомак изражена у J или MeV.

Системска јединица за РАЕС је $J m^{-3}$. Вансистемска јединица, која се у пракси често користи је WL (Working Level): $1 WL = 20.8 \mu J m^{-3} = 1.3 \cdot 10^{14} eV m^{-3}$. У случају да је ^{222}Rn у равнотежи са својим краткоживећим потомцима, концентрација радона при којој је РАЕС = 1 WL износи $3.7 kBq m^{-3}$. За мерење радона у затвореним просторијама користи се јединица mWL (и WL). У случају да је ^{220}Rn у равнотежи са својим краткоживећим потомцима, концентрација торона при којој је РАЕС = 1 WL износи $276 Bq m^{-3}$.

Мерена концентрација радона (торона) може бити конвертована у равнотежну еквивалентну концентрацију *EERC* (*EETC*) која је директно пропорционална РАЕС:

$$1 Bq m^{-3} = 5.56 \cdot 10^{-6} mJ m^{-3} = 0.27 mWL (^{222}Rn) \text{ и}$$

$$1 Bq m^{-3} = 7.6 \cdot 10^{-5} mJ m^{-3} = 3.64 mWL (^{220}Rn).$$

Излагање радоновим потомцима дефинише се као производ РАЕС-а и времена проведеног у атмосфери са тим РАЕС-ом. Системска јединица ове величине је $J s m^{-3}$. У пракси се често користи WLM (Working Level Month). Појединац је изложен радоновим потомцима од 1 WLM ако у атмосфери у којој је РАЕС = 1 WL проведе 170 часова. Веза између WLM и системске јединице је: $1 WLM = 12.73 J s m^{-3}$.

Удео неприпојених потомака у укупном РАЕС-у назива се неприпојена (слободна) фракција, f_i^u . Дефинише се Јакобијевом једначином:

$$f_i^u = \frac{\lambda_i(f_{i-1}^u + p_{i-1}f_{i-1}^a)}{\lambda_i + \lambda_v + \lambda_d^u + \lambda_a} \quad (20)$$

где су: $\lambda_i, \lambda_v, \lambda_a, \lambda_d^u$ константа распада, коефицијент вентилације, коефицијент припајања и константа депозиције неприпојеног потомка, респективно, параметри Јакобијевог модела; индекси: u, a означавају неприпојени и припојени потомак радона, респективно, p_{i-1} је фактор узмака [Amgarou и др, 2003]. Слично се дефинише и припојена фракција, f_i^a :

$$f_i^a = \frac{\lambda_a f_i^u + \lambda_i(1 - p_{i-1})f_{i-1}^a}{\lambda_i + \lambda_v + \lambda_d^u} \quad (21)$$

f_i - представља однос активносних концентрација i - тог радоновог потомка и радона (за обе фракције).

2.4 Процена излагања радону

Према даје променљив допринос дози (зависно од геофизичког стања тла и метеоролошких услова), радон ^{222}Rn је најзначајнији радијациони контаминант у природи. У околностима неконтролисаног накупљања у боравишним просторијама може представљати значајан здравствени ризик.

Енергије α - честица емитованих распадом радона и његових потомака су у интервалу од 5.49 – 8.78 MeV (табела 2.3.); оне врше интензивну јонизацију у ткивима живих бића и изазивају промене у начину функционисања група ћелија, који се манифестују појавом малигнух обољења. Негативан здравствени ефекат радона и његових потомака на здравље становништва испољава се у повећаном здравственом ризику за појаву малигнух обољења плућа. Радон спада у прву групу канцерогена [WHO, 1987]. Карциногенеза услед зрачења претпоставља да је карцином проузрокован низом промена на хромозомским протеинима (од којих неке настају старењем). Испитивање радијационог ризика заснива се на претпоставкама о постојању пропорционалности између излагања плућа радоновим потомцима и одговарајућег броја, зрачењем изазваних плућних канцера. Годишња инциденца према подацима UNSCEAR-а је 10-40 случајева карцинома плућа на милион становника услед излагања радону и његовим потомцима [BEIR VI, 1999]. Епидемиолошке студије спроведене у разним земљама света међу запосленима у рудницима урана потврђују директну везу канцера плућа са удисањем радона [UNSCEAR, 2006]. Плућни канцер учествује у 2% до 6% случајева као узрок смртности у развијеним индустријским земљама. Учестаност канцера је већа за пушаче у односу на непушаче.

2.4.1 Инхалација и ингестија

Инхалација представља доминантни пут унутрашњег излагања радону и његовим краткоживећим потомцима. Када се радон и његови краткоживећи потомци, било слободни или припојени аеросолима удахну, задржавају се делимично у носу, усној шупљини или у горњим деловима трахеје. Могу да продру и дубље, до алвеола. Због релативно дугог

времена полураспада у односу на време предах, инхалиран радон може бити издахнут, па се распад радона не мора десити у плућима. То говори да при инхалацији радона главну опасност не представља сам радон који се као инертни гас не везује за ткива, већ његови краткоживећи потомци. Део радиоактивних аеросола са одређеним дијаметром представљају α -емитере са високом енергијом зрачења. Они се као чврсте честице задржавају у респираторним путевима и у њима настављају даљи распад. Величине аеросола од 0.1 nm до 10 nm се највише таложе у људским плућима, а уколико су аеросоли већи, остају у носној дупљи. Вероватноћа таложења потомака у плућима је знатно већа за слободне него за припојене потомке. Неприпојени потомци имају значајан негативан здравствени ефекат, иако их при нормалним условима има знатно мање од припојених.

Свака ћелија бронхијалног епитела садржи у себи неколико милијарди атома. Процењено је да једна α -честица може да јонизује неколико десетина хиљада атома. Велика моћ јонизације и мали домет α -честица радонових потомака депонованих у плућима изазивају промене на ћелијама ткива. Јонизован атом у времену 10^{-9} s формира слободне радикале који реагују са биолошки значајним молекулима и изазивају последице у облику мутација, хромозомских аберација, ћелијске смрти или онкогених трансформација. Промене на ћелијском и молекуларном нивоу су изазване јонизујућим зрачењем знатно су изражене у раном животном добу, због формирања и раста ткива и органа. Зато је потребно обратити посебну пажњу на предшколске и школске установе. Ефективна еквивалентна доза код деце је већа него код одраслих: код шестогодишњег детета је око 2.5 пута већа него код одраслог тридесетогодишњег човека. У просеку старосна група до десет година прима ефективну еквивалентну дозу 1.5-2 пута већу него одрасли [Kaletsch *u др*, 1999; Jevtić *др*, 2001]. С тим у вези у нашој земљи започета су системска мерења радона у школама [Zunic *u др*, 2010b; Carpentieri *u др*, 2011; Zunic *u др*, 2013].

Инхалација гаса радона доводи до прилично униформне расподеле у телу. Због мале растворљивости у ткивима, доза при инхалацији радона је мала у поређењу са дозом која потиче од инхалације потомака радона. Брзина дисања, величина аеросола, као и величина ћелије-мете, су битни параметри који утичу на јачину дозе. Доза у горњем делу дисајног тракта је релативно мала и износи 5%, због слабије апсорпције у горњим деловима дисајних путева.

Доза у трахео-бронхијалном делу износи 95%. При инхалацији потомака радона доза коју примају остали органи, осим плућа, је занемарљива.

Доза услед инхалације торона и потомака је реда 10-20% у поређењу са радоновим краткоживећим потомцима [Nambi, 1994; Dwivedi и др, 2001]. Остали органи људског тела примају мању дозу за ред величине од оне коју прима трахео-бронхијални део респираторног система. Дозе од радона, торона и њихових краткоживећих потомака представљају приближно половину процењене дозе од излагања природним изворима јонизујућих зрачења [UNSCEAR, 2008].

Ингестија радона је један од путева унутрашњег излагања радону, али не тако значајан као инхалација. Ингестијом воде уноси се у организам одређена количина радона и потомака растворених у води. Највећи део се релативно брзо плућима елиминише из тела. Критични органи у којима се депонују и задржавају радон и његови потомци су у првом реду кости (унети радионуклиди прате метаболичке путеве калцијума). Органи који су јако осетљиви на радионуклиде унете ингестијом су поред желуца и јетра, бубрези, масно ткиво, коштна срж, итд. Време полуелиминације радона из плућа је 30 min, а из осталих ткива 15 min. Радон се полако раствара у ткивима и транспортује путем крви у друге органе, где се саопштена доза зрачења ткиву увећава доприносом од потомака.

Човек све више времена проводи у затвореним просторијама и под изговором уштеде топлотне енергије смањује природну вентилацију, чиме утиче на акумулирање радона и његових краткоживећих потомака. За смањење нивоа радона је круцијална интензивна вентилација радних и боравишних просторија. Она представља најефикаснији начин заштите од радона, торона и њихових краткоживећих потомака.

2.4.2 Израчунавање годишње ефективне дозе од радона и његових потомака

За процену годишње ефективне дозе E_{Rn} (mSv y^{-1}) услед излагања радону и његовим потомцима може се користити следећа формула:

$$E_{Rn} = C_{Rn} \cdot F_{Rn} \cdot t \cdot DCF_{Rn} \quad (22)$$

где је C_{Rn} - средња годишња концентрација радона ($Bq\ m^{-3}$); $F_{Rn} = 0.4$ је равнотежни фактор између радона и потомака [ICRP 65, 1993; ICRP 115, 2010], $t = 7000\ h$ је време боравка у затвореним просторијама у току једне године. Вредности дозних конверзионих фактора, DCF_{Rn} за радон и краткоживеће потомке према публикацији ICRP 115 и UNSCEAR износе $12\ nSv\ (Bq\ h\ m^{-3})^{-1}$ и $9\ nSv\ (Bq\ h\ m^{-3})^{-1}$, респективно [ICRP 115, 2010; UNSCEAR, 2008].

Чињеница је да ова поједностављена формула занемарује варијабилност која постоји у озрачивању популације; ефективна доза се на овај начин грубо процењује, услед немогућности одређивања равнотежног фактора за појединачне случајеве (јер углавном нису познате концентрације активности потомака), а време проведено у затвореним просторијама је врло различито од појединца до појединца.

На вредности дозног конверзионог фактора DCF_{Rn} утиче низ параметара: старост особа, ниво физичке активности, пол, квалитет ваздуха, итд. Постоје два приступа за рачунање дозних конверзионих фактора: епидемиолошки (који се заснива на епидемиологији канцера плућа код рудара у уранским рудницима) и дозиметријски (подразумева дозиметријски модел људских плућа према ICRP 66 публикацији). Епидемиолошка вредност дозног конверзионог фактора је око $5\ mSv\ WLM^{-1}$ ($\approx 8\ nSv\ (Bq\ h\ m^{-3})^{-1}$) и она је препоручена за коришћење при прорачуну доза и ризика од радонових потомака [ICRP 66, 1994].

2.4.3 Израчунавање годишње ефективне дозе од торона и његових потомака

Није практично одређивати дозу из мерења гаса торона, због тога што F_{Tn} између торона и потомака није установљен [UNSCEAR, 2006]. Годишња ефективна доза E_{Tn} ($mSv\ y^{-1}$) коју прима становништво услед излагања торону у затвореним просторијама процењује се на основу следеће једначине:

$$E_{Tn} = EETC \cdot t \cdot DCF_{Tn} \quad (23)$$

где је $EETC$ - равнотежна еквивалентна концентрација торона, $t = 7000$ h је време боравка у затвореним просторијама у току једне године. Вредност дозног конверзионог фактора, DCF_{Tn} износи $40 \text{ nSv (Bq h m}^{-3}\text{)}^{-1}$ и у затвореним просторијама и на отвореном [UNSCLEAR, 2000]. У овом случају, ефективна доза је процењена преко потомака торона, не користећи фактор равнотеже и концентрацију торона.

3. ПОДРУЧЈА ИСТРАЖИВАЊА И ГЕОЛОГИЈА КОСОВА И МЕТОХИЈЕ

Покрајина Косово и Метохија се налази у јужном делу Републике Србије између 41°51' и 43°15' северне географске ширине и између 20°01' и 21°48' источне географске дужине [1]. Заузима површину од 10.887 km² са просечном надморском висином од око 800 m, али са изразитим висинским променама рељефа и морфологије. Покрајина је углавном брдовита, најнижи делови се налазе на надморској висини од 297 m, а највиша тачка је на надморској висини од 2.656 m. У разноликом рељефу издвајају се тектонска косовска потолина и метохијска котлина. Планински обод котлина изграђен је од палеозојских шкриљаца, мезозојских кречњака, вулканских и метаморфних стена, са наслагама лапораца, пешчара и налазиштима угља [2].

Клима на Косову и Метохији је континентална, са топлим летима и хладним зимама. Просечне температуре крећу се од око +30 °С до -10 °С. Децембар и јануар се издвајају као најхладнији месеци у години, док су јул и август најтоплији. Просечна количина падавина варира од 600 mm у сувљим областима (Косовска котлина) до 1300 mm у планинским областима [2].

3.1 Подручја истраживања

Косово и Метохија је територијално подељено на пет региона којима припада укупно 30 општина. Преглед мерења радона у затвореним просторијама подељен у три серије хронолошким редом и према врстама коришћених детектора, представљен је у табели 3.1. Мерења су спроведена у 16 општина (слика 3.1.) и 49 углавном руралних насеља, односно 113 стамбених објеката.

Истраживања радионуклида у тлу и радона у затвореним просторијама су изведена у насељима у којима до сада нису мерена јонизујућа зрачења терестријалног порекла.

Табела 3.1. Преглед мерења радона на Косову и Метохији (период 2009-2012)

Регион	Општина	Насеље	Број објеката			
			I серија	II серија	III серија	
КОСОВСКО ПОМОРАВСКИ	Косовска Каменица	Велико Ропотово	1			
		Ранилуг	2			
	Ново Брдо	Извор	1			
		Прековце	1			
		Јасеновик	1			
	Гњилане	Шилово	1	1		
		Пасјане	2			
	Витина	Врбовац	1			
	КОСОВСКИ	Приштина	Грачаница	4	4	
			Сушица	3		
Доња Брњица				1		
Бадовац				1		
Лапље Село				2		
Преоце				1		
Обилић		Племетина		2		
		Бабин Мост		3		
		Милошево		1		
Липљан		Липљан		1		
		Суви До		1		
		Доња Гуштерица	1	1		
		Добротин	4	1		
		Радево		1		
		Рабовце		1		

Регион	Општина	Насеље	Број објеката		
			I серија	II серија	III серија
КОСОВСКИ	Штрпце	Штрпце		1	
		Севце		1	
		Доње Битиње		2	
КОСОВСКО МИТРОВАЧКИ	3. Поток	Зубин Поток			5
	Лепосавић	Лепосавић		2	
		Сочаница		2	
		Кутње		3	
		Лешак		2	
		Јариње		1	
	Звечан	Звечан		2	
		Рударе		2	
		Грабовац		2	
		Житковац		2	
		Жеровница		1	
		Јошевик		3	
	Косовска Митровица	Кос. Митровица		6	
		Брђани		2	
	Вучитрн	Прилужје		1	
		Гојбуља		1	
	ПРИЗРЕНСКИ	Драгаш	Драгаш		
Плањане					10
Брод					3
Крушево					3
Диканце					1

Регион	Општина	Насеље	Број објеката		
			I серија	II серија	III серија
ПЕЋКИ	Пећ	Гораждевац		5	
	Исток	Осојане	3		



Слика 3.2. Регионална подела Косова и Метохије са општинама (бројем локација) у којима су извршена мерења

Због већих измерених концентрација радона на 12 локација у општинама Приштина и Липљан, у овом истраживању су поновљена мерења изведена пре неколико година [Milić, 2003; Milic и др, 2010; Milic и др, 2011].

3.1.1 Хронологија мерења

Прва серија мерења радона у затвореним просторијама остварена је у руралним подручјима југоисточног и централног Косова и Метохије и метохијском селу Осојану. CR-

39 детектори (комерцијалне ознаке RSKS) су постављени у 25 објеката. Једногодишњим мерењем је обухваћено укупно 13 насеља у 7 општина од децембра 2009. године.

Друга серија је обухватила истовремена мерења радона, торона и њихових краткоживећих потомака у 34 рурална и урбана насеља већег дела територије Косова и Метохије. Ова серија мерења радона изведена је у 63 објекта CR-39 детекторима (RSKS); у 49 тих објеката детекторима CR-39 RADUET мерен је радон и торон, док су потомци мерени у 48 објеката LR115 (комерцијалне ознаке DTPS/DRPS) детекторима, у једногодишњем периоду почев од октобра 2010. године.

Трећа серија мерења радона спроведена је у 25 кућа у пет насеља општине Драгаш и у општини Зубин Поток. Мерења радона CR-39 детекторима Gammadata започета су априла 2011. године и изведена су континуално у једногодишњем периоду.

За одређивање садржаја радионуклида у тлу, узорци земљишта су сакупљени са 74 локације у близини објеката крајем априла 2011. године. Узорковање земљишта није спроведено у општини Драгаш и Зубин Поток (трећа серија мерења радона).

3.1.2 Селекција локација и објеката

Селекција локација је извршена с примарним циљем да се укључи више нових насеља ради комплетнијег прегледа приликом процене излагања становништва јонизујућем зрачењу и ради имплементације добијених података при изради мапе радонског ризика. Други важан фактор је био демографски и подразумевао је насељеност општина. На појединим локацијама на којима су мерења радона у затвореним просторијама поновљена, узорковано је земљиште да би се одређивањем садржаја радијума у тлу поред објеката употпунило истраживање природне радиоактивности и истражило постојање корелације са радоном у затвореним просторијама.

Објекти су селектовани случајним одабиром и у истраживања су укључени без обзира на годину изградње. Међутим, спратност објеката је била примарна за селекцију, јер је један од фактора који значајно утиче на концентрацију радона [Denman и др, 2007]. У неким објектима детектори су постављани у приземним и у спратним просторијама. Истраживањем је обухваћено 78% приземних самосталних кућа, 22% кућа са подрумом и/или спратних кућа.

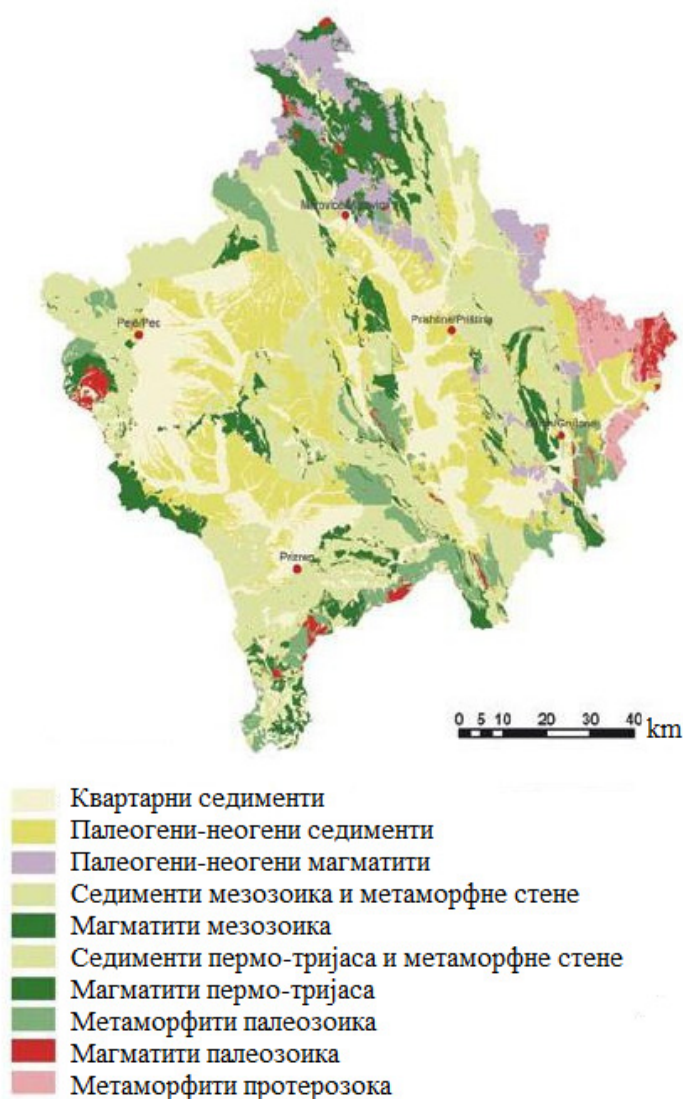
У циљу прегледнијег и свеобухватнијег истраживања прикупљени су подаци о геолошкој подлози око стамбених објеката, грађевинским карактеристикама објекта и просторија, навикама укућана, итд. Генерално, породични објекти на Косову и Метохији обухваћени овим истраживањем су самостални, углавном приземни са или без бетонске плоче и просечне старости око 30 година. Обично су грађени на песковитом земљишту или глини, укључујући чак камениту подлогу испод и око подрума објекта. За грејање просторија се користи чврсто гориво, а вентилација је углавном природна.

3.2 Геолошке карактеристике

Разноврсност геолошких структура и грађе Косова и Метохије условљена је различитим периодима у њиховом настанку од камбријума (ера палеозоик) до холоцена у квартару (слика 3.2). То је јединствени простор карактеристичног тектонског и магматског збивања које укључује вертикално и хоризонтално раседање. У току фазе орогенезе и под утицајем климатских промена дошло је до формирања и таложења значајнијих лежишта угља и појава металичних и неметаличних минералних сировина.

3.2.1 Хронологија настанка различитих геолошких формација по регионима

У *косовскопоморавском региону* (југоисточни део Косова и Метохије) у геолошкој грађи се истичу вулканогено-седиментне формације, које укључују пирокластите, гранодиорите и метаморфите. Источни део овог региона нарочито обилује гранитним, вулканогеним и вулканогено-седиментним стенама. Чине их метаморфити зелених шкриљаца са сочивима мермера, калкшиста и гнајсева, нешто сочива са актинолитом и хорнблендом. Офиолитску зону чине дијабази и ултрамафити (шкриљци, гнајсеви и амфиболити) [Dimitrijević, 1995; Геолошки Атлас Србије, 2002]. Југоисточно се јављају рециклирани офиолитски меланж (који садржи сенонске кречњаке и доњокредни парафлиш) и уске зоне краљушти дијабаза и габрова. Вулканогено-седиментне творевине маринског олигоцена чине конгломерати, смењују их седименти и вулканити, а завршавају се кластитима и лапоровитим кречњацима са доломитима [Dimitrijević, 1995].



Слика 3.3. Геолошке формације Косова и Метохије [3]

За *косовски регион* карактеристичан је пространи неогени басен који поред депозита угља укључује граните, метаморфисане вулканогено-седиментне формације у северном делу и кредни флиш у јужном делу. Средишњи део овог региона тектонски сачињавају вулканогено-седиментне формације са ултрамафитима и габровима у које су утиснути гранити и гранитпорфири са врло мало лискуна, као и метаморфити зелених шкриљаца. У северном и јужном делу региона офиолитски меланж почиње базалтним кластитима и рудитима, а затим прелази у лапорце и алевролите. Депонати миоцена и плиоцена запуњавају бројне котлине и потолине на Косову и Метохији, од којих је најзначајнији

косовски неогени басен. У њему депозиција почиње таложењем лапоровито-песковитих глина и пескова, глина са шљунковима и конгломератима који прелазе у сложени угљени хоризонт прекривен глином, шљунком и песком [Dimitrijević, 1995].

Косовскомитровички регион припада зони терцијарног магматизма [Геолошки Атлас Србије, 2002]. Геолошке структуре формиране су у од ордовицијума-силура до квартара. Вулканогено-седиментне формације средњег тријаса карактеришу кластити са вулканитима, доломити, мермери, карбонати, филити и зелени шкриљци. У периоду креде настаје флиш кога чине: лапоровити кречњаци, пешчари и конгломерати. Вулканска активност је била интензивна од доњег олигоцена кроз цео миоцен. Она је произвела велике масе изливних стена дацито-андезита, кварцлатита и пирокластита и интрузију гранитних стена. У северном делу метаморфисани меланж чине слабо метаморфисани пешчари, филити, калкшисти и мермери.

Подручје *призренског региона* састоји се од слабо метаморфисаних кластита у које су утиснути сијенити и кварцпорфири, а преко којих леже кречњаци. Раседном зоном са офиолитским меланжом подручје је одвојено од околних планинских падина састављених од шкриљаца, кварцита, мермера, калкшиста, базичних и киселих магматита.

У *пећком региону* истиче се неогени метохијски басен који чине депозиционе угљоносне формације и кредни офиолитски појас [Геолошки Атлас Србије, 2002].

Уска и дуга тектонска зона сенонских депозита састављена од флиша простире се од севера до југа Косова и Метохије. Дуж ове зоне протежу се два раседа правцем север-северозапад и југ-југоисток [Геолошки Атлас Србије, 2002].

Значајна лежишта олово-цинка и сребра припадају типу скарновских, карстних и жичних лежишта на више места на Косову и Метохији. Настанак офиолита и реверзно раседање су од посебног значаја за ултрабазичне стене-носиоце хрома, и разламање серпентинисаних стена, које су довеле до формирања и таложења лежишта боксита и никла [4]. Такође, постоје значајна налазишта високо квалитетних грађевинских минералних сировина, као што су андезити, базалти, дијабази, габрови, гранити, кречњаци и мермери.

4. МЕТОД ОДРЕЂИВАЊА СПЕЦИФИЧНИХ АКТИВНОСТИ РАДИОНУКЛИДА У ТЛУ

4.1 Сакупљање и припрема узорака земљишта

Сакупљање узорака земљишта спроведено је у току априла 2011. године у непосредној близини објеката у којима је започето мерење концентрације радона. Сакупљено је укупно 104 узорка необрадивог земљишта на удаљености до 3 m од објеката. Земљиште са три различите дубине узорковано је са 15 локација, док су површински узорци прикупљени са 59 локација. За објекте у суседству (углавном различитих година изградње) узет је један узорак земљишта. У експерименталном раду је доследно примењена процедура препоручена и прописана од Међународне Агенције за атомску енергију (International Atomic Energy Agency) [IAEA 295, 1989]. Површински узорак (слој земљишта од 0-5 cm) добијен је из 1 m² површине сједињавањем четири узорка са углова квадрата и једног узорка у пресеку дијагонала. Профилни узорци земљишта са дубина 10-20 cm и 20-40 cm узети су само из средишта квадрата. Након чишћења од биљних остатака и ситног камења, узорци масе око 1 kg спаковани су у полиетиленске кесе.

Припрема узорака тла за мерења специфичних активности радионуклида обављена су у лабораторији за Радијациону физику, Природно-математичког факултета у Крагујевцу. Вишак влаге елиминисан сушењем у пећници на температури 100-110 °C до константне масе. За хомогенизовање узорака и добијање гранулације мање од 2 mm коришћени су аван и сито. Након хомогенизовања узорци су одмеравани и паковани у пластичне Marinelli посуде запремине 450 ml. Посуде су пуњене тако да сви узорци имају исту запремину, али су због различите густине, измерене масе узорака варирале у опсегу од 400-600 g. Marinelli посуде су затим заптиване силиконом, у циљу успостављања секуларне равнотеже међу члановима радиоактивног низа (тј. радиоактивне равнотеже између радијума, радона и њихових потомака). Гамаспектрометријско мерење започето је 30 дана након херметизовања узорака.

4.2 Гамаспектрометријска анализа

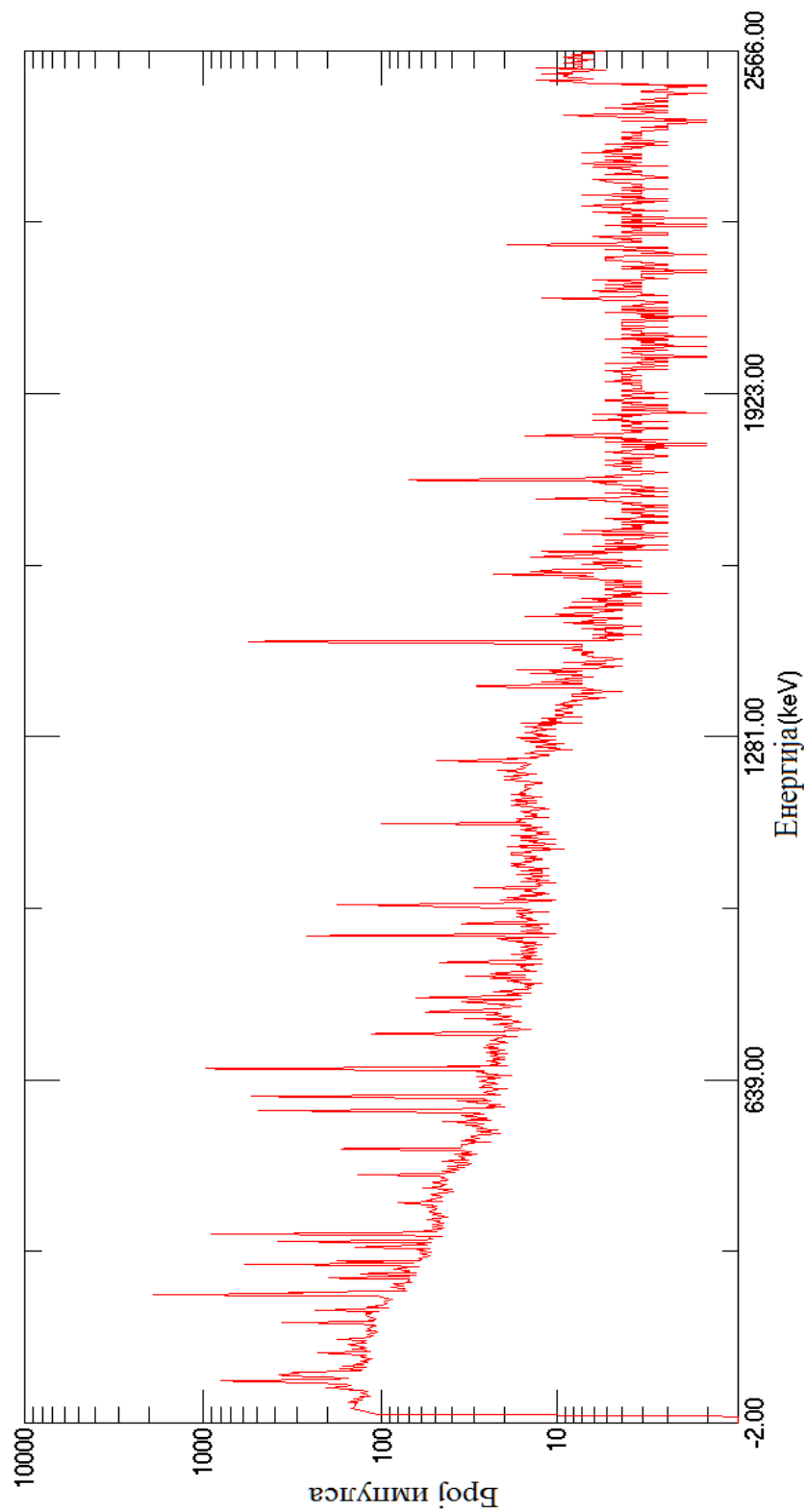
Гамаспектрометрија представља експерименталну методу одређивања спектра енергије гама зрачења са одређеног извора и на основу тога идентификацију изотопа и одређивање њихових активности. Примењује се у мониторингу радиоактивности различитих узорака из животне средине према усвојеним протоколима узорковања [IAEA 295, 1989].

Гамаспектрометријски систем за одређивање активности радионукида коришћен у овом раду састоји се од беспримесног германијумског детектора (HPGe - High Purity Germanium) модел GEM30-70 ORTEC и вишеканалног анализатора, који су повезани са рачунаром за снимање, визуелизацију и обраду добијених спектра. Кућиште детектора је смештено у оловну заштиту дебљине 10 cm. Енергетска резолуција детектора (Full Width at Half Maximum - FWHM) је 1.85 keV на 1.33 MeV(⁶⁰Co) и 725 eV на 122 keV(⁵⁷Co), а релативна ефикасност детектора је 32% на 1.33 MeV(⁶⁰Co).

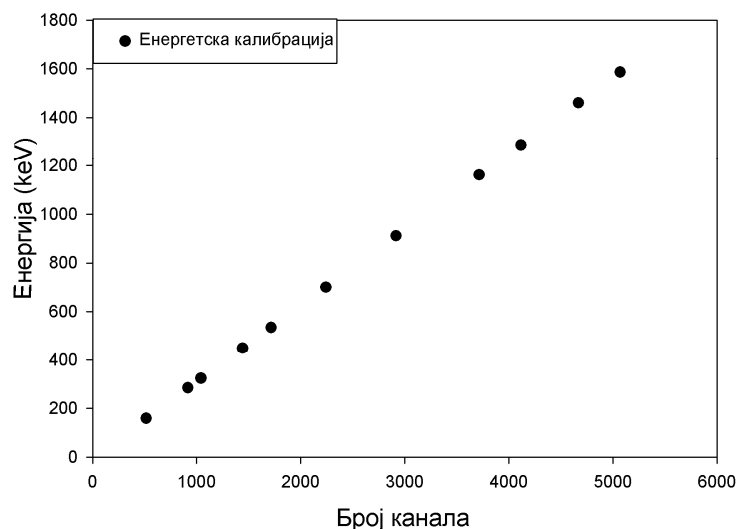
Гама-спектрометријска мерења су извршена према стандардној методи [ASTM C 1402 – 04 Standard Guide for High Resolution Gamma Ray Spectrometry of Soil Samples]. Снимање спектра за сваки узорак и за фон је трајало 10800s. Помоћу програма MAESTRO 32 снимљени спектри су анализирани уз претходно одузимање фона. Спектар гама зрачења узорка земљишта приказан на слици 4.1.

4.2.1 Калибрација енергије и ефикасности HPGe детектора

Енергетска калибрација детектора (зависност енергије од броја канала) је извршена коришћењем калибрационог извора Чешког Метролошког Института (Czech Metrological Institute) са Marinelli смешом типа MBSS 2 која садржи једанаест радионуклида (²⁴¹Am, ¹⁰⁹Cd, ¹³⁹Ce, ⁵⁷Co, ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ¹¹³Sn, ⁸⁵Sr, ⁸⁸Y, ²⁰³Hg, ¹⁵²Eu) познатих активности затопљених у епоксидној смоли. На слици 4.2. приказана је калибрациона крива енергије детектора коришћеног у овом раду.

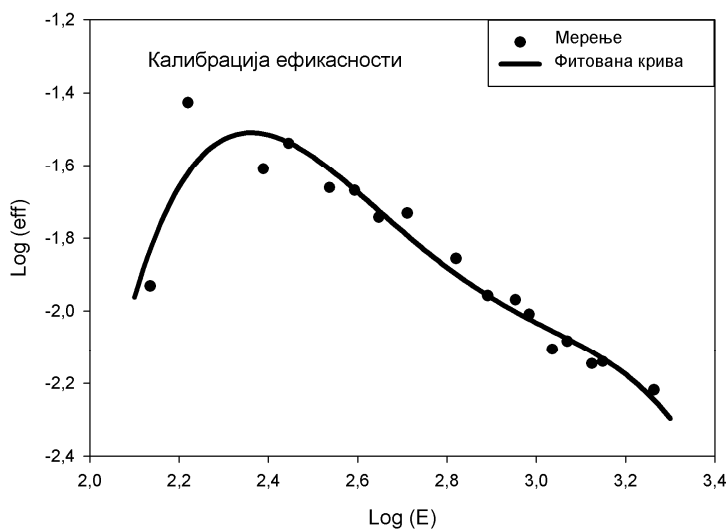


Слика 4.1. Спектар гама зрачења узорка земљишта



Слика 4.2. Енергетска калибрација коришћеног детектора

Калибрација детектора на ефикасност (ефикасност детекције) даје везу између укупног одброја под пиком и активности датог изотопа за неку одређену геометрију. Крива ефикасности детектора, рађена на основу поменутог калибрационог извора (који има исту геометрију и исти елементарни састав као узорци којима је одређивана активност) за Marinelli посуду запремине 450 ml и густине 0.985 g cm^{-3} приказана је на слици 4.3.



Слика 4.3. Крива зависности ефикасности коришћеног детектора од енергије гама зрачења

Однос између ефикасности ε и енергије E описан је полиномом шестог реда:

$$y(E) = \sum_{k=0}^6 a_k x^k \quad (24)$$

где је $\varepsilon(E) = 10^{y(E)}$, $x = \log_{10} E$.

Коефицијенти фитовања a_k износе: $a_0 = -20948.035$; $a_1 = 46417.265$; $a_2 = -42691.835$; $a_3 = 20861.033$; $a_4 = -5712.0269$; $a_5 = 830.9904$; $a_6 = -50.183364$.

Ефикасности детектора за радионуклиде са енергијама гама зрачења од интереса у овом истраживању израчунате су према једначини (25) и приказане у Табели 4.1. Такође су дати и приноси за одговарајуће енергије.

Табела 4.1. Принос и ефикасност детектора за одговарајуће енергије гама зрачења радионуклида

Радионуклид*		Енергија E(keV)	Принос I_γ	Ефикасност ε_E
²²⁶Ra	²¹⁴ Pb	351.9	0.376	0.0213
	²¹⁴ Bi	609.3	0.461	0.0158
²³²Th	²⁰⁸ Tl	583.0	0.845	0.0165
	²⁰⁸ Tl	860.6	0.124	0.0106
	²²⁸ Ac	911.1	0.258	0.0099
	²²⁸ Ac	968.9	0.158	0.0092
⁴⁰K		1460.7	0.11	0.0073
¹³⁷Cs		661.6	0.851	0.014588

*Радионуклид коме одговара енергија под фотопиком

4.2.2 Одређивање специфичних активности радионуклида у тлу

У распаду низа урана ²³⁸U емитује се око 50 интензивних гама линија, које су карактеристичне за радионуклиде низа. Када је низ у равнотежи, активности свих радионуклида у низу су исте, те се активносна концентрација предака може одредити

мерењем интензитета γ -зрачења било ког потомка. Нарушавање равнотеже услед геохемијских процеса се може догодити код дугоживећих чланова низа (^{230}Th и ^{226}Ra у низу ^{238}U ; ^{231}Pa у низу ^{235}U). Еманација радона из узорака нарушава равнотежу код чланова ^{222}Rn и ^{219}Rn [Бикит и Сливка, 1993]. У херметички затвореним судовима у времену које одговара око 10Т, Т- период полураспада (за ^{222}Rn , 38.25 дана) ова се равнотежа може накнадно успоставити пре мерења. За време од 7Т у херметички затвореном узорку распадне се $\approx 99.22\%$ радона [Мухин, 1983], па је мерење могуће започети након 4 недеље од херметичког затварања [Nada и др, 2009; Singh и др, 2009; Khan и др, 2011]. У низу ^{232}Th еманација ^{220}Rn такође доводи до нарушавања равнотеже. У херметички затвореним посудама равнотежа између торона и чланова у низу се достиже за 10 минута.

За одређивање специфичних активности радионуклида A_E (Bq kg^{-1}) на одређеној енергији E коришћена је једначина:

$$A_E = \frac{N_E}{m \cdot t \cdot \varepsilon_E \cdot I_\gamma} \quad (25)$$

где су:

N_E - број импулса под фотопиком (површина врха тоталне апсорпције) на енергији E ,

m - маса узорка (kg)

t - време снимања спектра (s),

ε_E - ефикасност детектора за гама линију на енергији E ,

I_γ - принос (апсолутни интензитет) гама линије на енергији E .

Специфична активност радијума ^{226}Ra одређена је усредњавањем активности фотопикова олова ^{214}Pb (на енергији 351.90 keV) и бизмута ^{214}Bi (на енергији 609.32 keV). За одређивање специфичне активности торијума ^{232}Th коришћени су фотопикови талијума ^{208}Tl (на енергијама 583.01 и 860.56 keV) и актинијума ^{228}Ac (на енергијама 911.07 и 968.90 keV). Специфична активност калијума ^{40}K одређена је на основу интензитета једине гама линије на енергији 1460.75 keV. За одређивање специфичне активности вештачког радионуклида цезијума ^{137}Cs коришћен је интензитет гама линије на енергији 661.62 keV.

5. МЕТОД МЕРЕЊА И ДЕТЕКЦИЈЕ РАДОНА

Методе мерења концентрације активности радона могу се поделити на активне и пасивне у зависности од циљева и потреба истраживања. Активном техником мерења које подразумева коришћење активних електричних компоненти (као што су пумпе, бројачи и слично) у краћем временском интервалу се утврђује концентрација радона и/или краткоживећих потомака на одређеном месту. Ова метода мерења је корисна приликом локализовања продора радона у просторију. Како концентрација радона јако флукутира у току времена (флукутације су дискутоване у секцији 2.2.1.5 другог поглавља), краткотрајно мерење може да доведе до сасвим погрешних резултата.

За процену здравственог ризика неопходно је утврдити средњу вредност концентрације активности радона у дужем временском интервалу. Због тога се користе дуговременске интеграционе пасивне технике мерења. Оне су засноване на дифузионом кретању радона у дужем временском периоду (од 1 месеца до 1 године). Мерења радона у овој дисертацији изведена су коришћењем пасивне интеграционе технике.

5.1 Пасивни интеграциони метод мерења траг детекторима

Пасивни интеграциони метод мерења чврстим траг детекторима заснива се на регистрацији трагова које алфа честице остављају на детекторима. Оштећења које честице изазивају у структури детектора дуж правца свог кретања представљају латентне трагове (дијаметра 10 nm), који постају видљиви под микроскопом након процеса нагризања. Потапањем у раствор агресивног хемијског реагенса (најчешће NaOH или KOH) одређено време и на одређеној температури, раствор продире у оштећене структуре детектора, нагриза их дуж оштећења и на тај начин увећава траг (реда μm и више) који постаје видљив под оптичким микроскопом. У литератури је различитим моделима детаљно дискутована геометрија развоја трага [*Somogyi u Szalay, 1973; Fews u Henshaw, 1982; Fromm u др, 1996; Nikezic u Yu, 2003;*] за различите углове упада честице у детектор при константним и променљивим брзинама нагризања [*Nikezic u Yu, 2004*].

Ова врло једноставна техника омогућава детекцију елементарних честица (протона, неутрона, алфа честица и тежих), али не и бета честица и гама зрака.

При мерењу радона, главна мерена величина је густина трагова по јединици времена излагања ρ (траг $m^{-2} s^{-1}$). Техника мерења радона заснива се на регистрацији трагова алфа честица остављених на детектору. Детектор се поставља на једном крају дифузионе коморе (кућишта детектора), док је други крај слободан за улаз радона. Проблем при мерењу радона (^{222}Rn) може представљати присуство торона (^{220}Rn), у ваздуху. Овај проблем се може решити на два начина. Први начин: постављањем дифузионих баријера спречава се улаз торона у дифузину комору, па се услед краћег времена полураспада он распада на путу кроз баријеру и не стиже до детектора. Због дужег времена полураспада, а истог коефицијента дифузије, радон ће стићи до детектора. (То ће касније бити евидентно на примеру RADUET детектора). Такође, од користи могу бити и различите мембране које истовремено спречавају продор влаге у кућиште детектора, затим ваздушна баријера удружена са геометријом дифузионе коморе, итд. Други начин: различит одзив дифузионих комора на радон и торон омогућава дискриминацију торона коришћењем детектора са различитим осетљивостима (нпр. Gamdata детектори).

Детаљан преглед примене траг детектора у мерењима радона и потомака уз теоријски и експериментлни приступ решавања проблема везаних за одређивање осетљивости детектора и грешке мерења условљене непознатом фракцијом ^{218}Po дат је у раду [Nikezic u Yu, 2004].

Поред сврхе мерења концентрације радона у затвореним просторијама (која су најважнија са аспекта процене ефективне дозе), важно је истаћи још неке примене траг детектора које су повезане са мерењима радона:

- Мерења радона у води и земљи ради проспекције урана и торијума и идентификације подручја богатих ураном [Prasad u др, 2008];
- Еманација и ексхалација радона из земљишта и грађевинских материјала [Moharram u др, 2012; Imte u др, 2014];
- Мониторинг радона у рудницима и подземним локацијама [Fisne u др, 2005];
- Одвојена мерења торона и радона [Khokhar u др, 2008];
- Мерења радона у пећинама и примена у геологији [Vaupotič u др, 2007; Bezek u др, 2012];

- Предикција земљотреса [Yang и др, 2005; Espinosa и др, 2013];
- Вулканска истраживања [Imme и др, 2006; Moreno и др, 2014].

5.2 Врсте коришћених детектора

Праг регистрације нуклеарних честица на детектору зависи од врсте диелектричног материјала. Пластични полимери имају нижи праг регистрације у односу на стакло или кристале минерала, малих су димензија, па је то разлог што се највише користе у интегралној методи мерења [Milić, 2003]. Међу њима се истичу: CR-39 (PADC - poly allyl diglycol carbonate), LR115 (cellulose nitrate), Lexan и Makrofol (Polycarbonate film) детектори. Далеко најосетљивији материјал за детекцију алфа честица у ширем енергетском интервалу, и трагова других нуклеарних честица је CR-39.

За мерење концентрације радона и торона у овом раду, коришћени су CR-39 детектори смештени у три различите дифузионе коморе познате по комерцијалним називима: RSKS, RADUET и Gammadata детектори. (Примедба: иако постоји суштинска разлика између детектора и дифузионе коморе, ради једноставности у даљем тексту користи се термин детектор). За мерење равнотежних еквивалентна концентрација радона и торона (тј. потомака из њихових распада) коришћени су LR115 детектори смештени у систем познат по комерцијалном називу DTPS/DRPS. Детектори су производ успешне међународне сарадње са научним институтима у Италији, Јапану, Шведској и Индији.

5.2.1 CR-39 детектори

5.2.1.1 CR-39 RSKS детектори

Пасивни детектор радона модел TASTRAK (Track Analysis Systems Ltd.) приказан на слици 5.1., састоји се од дифузионе коморе од проводне пластике у облику куполе дијаметра 4.5 cm и 2 cm у чијем кућишту је на дну смештен CR-39 детектор (2.5×2.5 cm², дебљине 1mm).

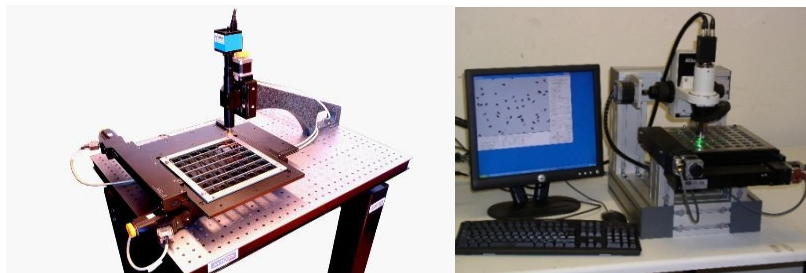
Мерење концентрације радона, комерцијално доступним CR-39 RSKS детекторима изведено је у два шестомесечна периода у 88 породичних објеката на Косову и Метохији. Детектори су постављани на орманима у дневним и спаваћим собама, на растојању око 30 cm од зидова (да би се умањио допринос торона) и на висини 1.5 - 2 m од пода просторије.



Слика 5.1. Изглед дифузионе коморе RSKS са CR-39 детектором на дну

Након периода излагања детектори су нагризани хемијски у воденом купатилу 1 h у 6.25 M раствору NaOH на 98 °C. После вађења, детектори су опрани врелом дестилованом водом, а затим 30 минута задржани у 2% воденом раствору сирћетне киселине уз мешање да би се прекинуло нагрizaње. Затим су поново опрани водом и стављени у комору за сушење са вентилатором [Carpentieri *и др*, 2011]. Два потпуно аутоматска система (слика 5.2.) коришћена су за скенирање и анализу трагова на CR-39 детекторима: Politrack систем (са софтвером Politrack version 4.1) и са TASL систем (version 10.9) [Henshaw, 1992].

Нагрizaње и бројање трагова, као и процена концентрације радона извршена је од стране италијанског Националног института за здравље. Калибрација дифузионих комора је извршена излагањем у коморама са високом концентрацијом радона у агенцији за заштиту здравља (Health Protection Agency, Велика Британија) и италијанском националном метролошком институту за јонизујућа зрачења (Italian National Metrology Ionising Radiation Institute, Италија). Вредности калибрационог излагања кретале су се од 300 до 65000 kBq h m⁻³.



Слика 5.2. Аутоматски Politrack и TASL системи за читавање трагова на CR-39 детекторима

5.2.1.2 CR-39 RADUET детектори

Пасивни дискриминативни са CR-39 RADUET детектори коришћени су за мерење радона и торона. Систем за детекцију чини пар различитих дифузионих комора приказаних на слици 5.3. Свака комора је направљена од електропроводне пластике и цилиндричног је облика (димензија око 6 cm и 3.2 cm) са унутрашњом запремином од око 30 cm³. CR-39 се користи као детекторски материјал и постављен на дну коморе са лепљивом глином. [Tokonami *и др*, 2003]. Радон из ваздуха може да продре у комору дифузијом кроз ваздушни процеп између поклопца и дна. Пошто овај ваздушни простор функционише као висока дифузиона баријера, торон једва може да уђе у комору због веома кратког полуживота (55.6 s) у поређењу са радоном (3.82 дана). У циљу ефикаснијег откривања торона, шест рупа (6 mm у пречнику) је отворено на страни друге коморе и покривене су са електропроводним сунђером уместо филтер папира [Tokonami *и др*, 2005].



Слика 5.3. Изглед и место мерења RADUET детектором

Детектори су постављени у два шестомесечна периода у 49 спаваћих соба на орманима или на прикладним местима (слика 5.3.), на растојању око 10 cm од зидова и на висини око 2 m од пода просторије. На растојању <10 cm од зида, услед ексхалације торона из грађевинских материјала, мерена концентрација торона не би била репрезентативна за просторију [Meisenberg u Tschiersch, 2010].

CR-39 детектори су обрађени у лабораторији за радиолошке науке (National Institute for Radiological Sciences, NIRS, Chiba, Јапан). Детектори су хемијски нагризани у 6.25 M раствору NaOH на 90°C током 6 h. Након вађења из раствора испрани су са 50% етанола и јонском изменом воде, и природно сушени. Формирани трагови су аутоматски читавани [Tokonami u др, 2003; Tokonami u др, 2005]. Калибрација RADUET детектора извршена је излагањем у добро контролисаним калибрационим коморама за радон и торон у NIRS, уз обезбеђено осигурање и контролу квалитета за мерење торона [Sorimachi u др, 2010]. Мерна несигурност у густини трагова при калибрацији је 6-20% за излагање радону и 16-26% за излагање торону и оне варирају у зависности од интегрисаних концентрација. Доње границе детекције RADUET детектора зависе од друге концентрације: то је 5 Bq m⁻³ за радон и 15 Bq m⁻³ за торон у случају шестомесечног излагања у типичним условима [Tokonami u др, 2005].

5.2.1.3 CR-39 Gamdata детектори

Дифузионе коморе CR-39 Gamdata детектора произведене у Шведској (слика 5.4.) су полусфеног облика, нешто већег дијаметра од комора CR-39 RSKS детектора.



Слика 5.4. Изглед Gamdata детектора

Детектори су подвргнути стандардним протоколима нагризања и читавања у добро контролисаним калибрационим коморама за радон. Мерење концентрације радона пасивним CR-39 Gammadata детекторима изведено је у једногодишњем периоду у 25 породичних објеката на Косову и Метохији. Детектори су постављани на орманима у дневним и спаваћим собама, на растојању око 30 cm од зидова и на висини 1.5 - 2 m од пода просторије.

5.2.2 LR115 детектори

5.2.2.1 LR115 DTPS/DRPS детектори

DTPS/DRPS (Direct Thoron Progeny Sensors/Direct Radon Progeny Sensors) је пасивни систем приказан на слици 5.5., који користи два детектора типа LR115 (површине $3 \times 3 \text{ cm}^2$) за мерење просечне концентрације потомака из распада радона и торона у току времена. DTPS је LR115 детектор прекривен алуминијумском фолијом дебљине 50 μm који детектује само алфа честице енергије 8.78 MeV које емитују атоми ^{212}Po . Ови атоми настају распадом атома ^{212}Pb и ^{212}Bi који се депонују на површини фолије (апсорбера). Слично њему, DRPS садржи апсорбер дебљине 37 μm за откривање трагова алфа-честица које емитују атоми ^{214}Po (7.69 MeV) формирани из евентуалних распада атома ^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi депонованих на њему. Доња граница детекције за DTPS је 0.1 Bq m^{-3} (од EETC) и за DRPS је 1 Bq m^{-3} (од EERC). Дизајнирани су да дају просечну равнотежну еквивалентну концентрацију торона и равнотежну еквивалентну концентрацију радона у току времена, а не концентрације гаса.

DTPS/DRPS детектори су постављани сукцесивно у два шестомесечна периода у 48 спаваћих соба, углавном на лустерима (у средишту собе), на растојању 30 cm од плафона и на висини $> 2 \text{ m}$ од пода (слика 5.5.). Метода мерења потомака заснована је на њиховој брзини депозиције, на које утичу концентрација аеросола и јачина вентилације у просторији.

LR 115 детектори су хемијски обрађени у 2.5 M раствору NaOH у лабораторији Атомског истраживачког центра за радиолошку физику (Мумбаи, Индија) стандардним протоколима нагризања [Mishra и Маууа, 2008]. Пребројавање трагова је извршено полуаутоматском варничном комором. Густина трагова је конвертована у EETC и EERC

користећи факторе осетљивости 0.94 [(трагова $\text{cm}^{-2} \text{d}^{-1}$)/EETC (Bq m^{-3})] за DTPS и 0.09 [(трагова $\text{cm}^{-2} \text{d}^{-1}$)/EERC (Bq m^{-3})] за DRPS за затворене просторије [Mishra *и др*, 2009]. Модел предвиђања да фактор осетљивости DTPS/DRPS система није поуздан у $\sim 40\%$ случајева за затворене просторије са концентрацијом честица $> 10^4 \text{ cm}^{-3}$ и јачином вентилације $(0.5-1.5) \text{ h}^{-1}$ (ови параметри контролишу брзину таложења потомака ^{222}Rn и ^{220}Rn , што заузврат одређује факторе осетљивости DRPS и DTPS). Перформансе ових пасивних сензора (детектора) су задовољавајуће у поређењу са активним уређајима, што је показано низом експеримената и теоријских разматрања [Mishra *и др*, 2010].



Слика 5.5. Изглед и место постављања DTPS/DRPS детектора

Фактор осетљивости DTPS/DRPS система одређују два главна параметра: ефикасност регистрације трагова и брзина таложења атома потомака на површини апсорбера. Ефикасност регистрације трагова повезује број наталожених атома потомака са регистрованим алфа траговима на LR115 детектору и својствена је систему апсорбер-детектор. Други параметар, брзина таложења је зависна од особина спољашње средине и одређује брзину таложења атома потомака за дате концентрације у ваздуху. Изведене су серије контролних експеримената у коморама и у око 100 реалних услова у затвореним просторијама; такође су брзине таложења атома потомака моделоване и упоређене са контролним експериментима.

Експерименти су изведени у калибрационој комори запремине 0.5 m^3 са вентилатором да би се постигла униформна концентрација торијум нитрата. Изведена су два експеримента:

- а) експерименти са 6 различитих концентрација аеросола без вентилације,
- б) експерименти са константном концентрацијом аеросола ($5000 \text{ честица m}^{-3}$) и различитом јачином вентилације.

У првом случају како концентрација аеросола расте, опада вредност мерене слободне фракције и такође ефективна брзина таложења потомака. Са порастом концентрације аеросола (од 90 до око 8554 честице m^{-3}) фактор осетљивости ЕЕТС детектора нагло опада; даљим повећањем концентрације остаје углавном константан. (Крива за фактор осетљивости опада са порастом концентрације аеросола). И експерименталне и теоријске вредности фактора осетљивости остају константне при високим концентрацијама аеросола.

У другом случају брзина таложења потомака, као и слободна фракција расте са порастом јачине вентилације у комори. Пораст јачине вентилације од приближно 7.5 пута условљава пораст фактора осетљивости за 3.5 пута. И експерименталне и теоријске вредности фактора осетљивости показују пораст са порастом јачине вентилације.

Варијације фактора осетљивости јављају се ако се концентрације аеросола или јачине вентилације драстично разликују од типичних вредности. Фактор осетљивости је углавном независан од јачине вентилације за веће концентрације аеросола, а изузетно расте са јачином вентилације при малим концентрацијама аеросола. Мерења потомака не зависе много од брзине депозиције, чак ни од начина постављања детектора (вертикална или хоризонтална позиција).

Излагање детектора радону пре и после њиховог постављања у стамбеним објектима може значајно допринети грешци мерења. Да би се то избегло спроводи се детаљна процедура: сви детектори пакују се у двоструке пластичне кесе непропусне за радон у ниско-радонским лабораторијама. Уз њих се пакују и контролни детектори, који се чувају за време излагања осталих.

II) ИСТРАЖИВАЧКИ ДЕО

6. РЕЗУЛТАТИ МЕРЕЊА СПЕЦИФИЧНИХ АКТИВНОСТИ РАДИОНУКЛИДА У ТЛУ

Резултати мерења радионуклида у тлу подељени су према циљевима истраживања:

- утврђивање расподеле радионуклида по дубини узоркованог земљишта и њихове просторне расподеле у тлу према процењеним специфичним активностима (на 15 локација);
- утврђивање просторне расподеле радионуклида у тлу одређивањем њихових специфичних активности (на 59 локација).

Резултати су статистички обрађени и дискутовани. Затим су груписани по регионима Косова и Метохије и статистички обрађени ради процене просторне расподеле радионуклида. Специфичне активности природних радионуклида ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и вештачког радионуклида ^{137}Cs у узорцима тла са укупно 74 локације на Косову и Метохији представљене су табеларно и хистограмима.

6.1 Специфичне активности радионуклида – по дубини земљишта

Специфичне активности ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs у узорцима три различита слоја земљишта (0-5 cm, 10-20 cm и 20-40 cm) сакупљених са 15 локација дате су у табелама од 6.1.- 6.4., респективно.

Најмање вредности специфичних активности ^{226}Ra у слојевима земљишта од 0-5 cm и 10-20 cm забележене су у Извору, а највеће у Сушици (табела 6.1.). У слоју земљишта од 20-40 cm активности ^{226}Ra су варирале од 20.2 Bq kg⁻¹ (Шилово) до 83.8 Bq kg⁻¹ (Сушица). Висока вредност може указивати на локално концентрисање радијума у Сушици, с обзиром да је евидентна и значајна промена у концентрацији на дубини од 20-40 cm. Пораст концентрације ^{226}Ra са дубином земљишта је приметан и у Великом Ропотову, Прековцу и Добротину 3. У осталим узорцима бележи се опадање или неправилна расподела активности ^{226}Ra са дубином.

Табела 6.1. Специфичне активности ^{226}Ra у Bq kg^{-1} по дубини узоркованог земљишта и одговарајуће стандардне девијације са 15 локација Косова и Метохије

Број	Регион	Локација	Специфична активност ^{226}Ra (Bq kg^{-1})		
			0-5cm	10-20cm	20-40cm
1	Косовско поморавски	Велико Ропотово	22.5±0.8	25.9±0.9	31.2±1.0
2		Ранилуг 1, 2	24.0±0.9	26.0±0.8	23.3±0.8
3		Врбовац	39.7±1.1	33.6±1.0	38.7±1.1
4		Извор	23.2±0.9	19.9±0.8	26.4±0.9
5		Прековце	35.4±1.1	50.4±1.3	59.4±1.6
6		Јасеновик	25.3±1.1	30.8±1.0	27.0±1.0
7		Шилово 1	30.4±1.1	24.3±1.0	20.2±0.8
8		Пасјане 1, 2	40.4±1.3	27.2±0.9	30.4±1.0
9	Косовски	Грачаница 1,2,3	38.5±1.2	45.2±1.4	42.5±1.2
10		Грачаница 4	24.6±0.8	37.2±1.1	28.1±1.0
11		Сушица 1, 2, 3	66.9±1.5	64.5±1.3	83.8±1.6
12		Добротин 1, 2	33.7±1.1	30.2±0.9	41.9±1.1
13		Добротин 3	24.7±0.9	33.1±1.0	36.3±1.1
14		Добротин 4	38.1±1.1	34.3±0.9	41.6±1.0
15	Пећки	Осојане 1, 2, 3	38.2±1.2	37.8±1.2	29.6±0.9

Специфичне активности ^{232}Th су врло променљиве и по слојевима узоркованог земљишта и по местима узорковања (табела 6.2.). Опсег вредности за слој од 0-5 cm креће се од 16.8 Bq kg^{-1} (Извор) до 49.5 Bq kg^{-1} (Добротин 4). За слој земљишта 10-20 cm најмање вредности забележене су у Извору, а највеће у Сушици. У слоју земљишта од 20-40 cm, опсег вредности за ^{232}Th креће се од 19.9 Bq kg^{-1} (Ранилуг) до 52.6 Bq kg^{-1} (Прековце). На локацијама Велико Ропотово, Врбовац, Извор, Прековце, Сушица и Добротин 1,2,3 специфична активност расте са дужином узорковања. Опадање активности ^{232}Th са дужином узорковања приметно је само у Шилову.

Табела 6.2. Специфичне активности ^{232}Th по дубини узоркованог земљишта и одговарајуће стандардне девијације са 15 локација Косова и Метохије

Број	Регион	Локација	Специфична активност ^{232}Th (Bq kg^{-1})		
			0-5cm	10-20cm	20-40cm
1	Косовско поморавски	Велико Ропотово	25.1±1.7	29.3±2.0	41.3±2.1
2		Ранилуг 1, 2	20.0±1.8	23.7±1.8	19.9±1.9
3		Врбовац	31.6±2.2	35.1±2.0	36.5±2.2
4		Извор	16.8±1.6	17.6±1.6	20.0±1.7
5		Прековце	27.8±2.1	43.5±2.6	52.6±3.4
6		Јасеновик	27.3±2.3	31.2±2.0	24.2±2.0
7		Шилово 1	33.0±2.4	30.0±2.1	24.4±1.7
8		Пасјане 1,2	39.2±2.6	29.9±2.0	30.6±2.0
9	Косовски	Грачаница 1,2,3	40.3±2.4	44.9±2.8	37.3±2.7
10		Грачаница 4	30.9±1.9	37.5±2.4	36.8±2.3
11		Сушица 1, 2, 3	42.0±2.6	49.2±2.6	51.9±2.7
12		Добротин 1, 2	39.7±2.3	45.3±2.2	48.5±2.7
13		Добротин 3	26.8±2.1	30.5±2.1	34.9±2.2
14		Добротин 4	49.5±2.5	39.9±2.0	40.5±2.3
15	Пећи	Осојане 1, 2, 3	31.1±2.2	28.8±2.4	29.0±1.8

Велики опсег вредности специфичних активности ^{40}K , приказан у Табели 6.3, по слојевима земљишта указује на неравномерну просторну расподелу. Такође, евидентан је пораст опсега вредности по слојевима од око 100 Bq kg^{-1} . Пораст вредности специфичних активности ^{40}K по дубини узорковања нарочито је изражен у Ранилугу, Прековцу, Сушици и Добротину 1,2,3. У Сушици су највеће вредности специфичних активности ^{40}K у сва три слоја. Најмање вредности за слојеве од 0-5 cm и 10-20 cm забележене у Великом Ропотову (449 Bq kg^{-1} и 385 Bq kg^{-1}) и у Осојану (395 Bq kg^{-1}) у слоју од 20-40 cm. Две задње вредности су мање од 420 Bq kg^{-1} , колико износи светски просек [*UNSCEAR, 2008*].

Табела 6.3. Специфичне активности ^{40}K у Bq kg^{-1} по дубини узоркованог земљишта и одговарајуће стандардне девијације са 15 локација Косова и Метохије

Број	Регион	Локација	Специфична активност ^{40}K (Bq kg^{-1})		
			0-5cm	10-20cm	20-40cm
1	Косовско поморавски	Велико Ропотово	449±10	385±13	439±10
2		Ранилуг 1, 2	923±16	987±14	1158±14
3		Врбовац	786±14	732±12	738±13
4		Извор	574±13	521±10	580±11
5		Прековце	552±13	752±15	880±17
6		Јасеновик	686±14	667±13	673±12
7		Шилово 1	751±16	633±14	568±11
8		Пасјане 1,2	859±16	733±13	774±13
9	Косовски	Грачаница 1,2,3	654±14	827±16	675±14
10		Грачаница 4	651±12	783±13	772±15
11		Сушица 1, 2, 3	1161±16	1203±15	1310±17
12		Добротин 1, 2	537±13	595±12	656±13
13		Добротин 3	473±11	560±12	607±12
14		Добротин 4	772±14	651±11	711±12
15	Пећки	Осојане 1, 2, 3	456±12	441±13	395±9

Специфичне активности ^{137}Cs у узоркованим слојевима приказане у табели 6.4. варираше су у опсегу 1.6 Bq kg^{-1} (Добротин 4) до 33.3 Bq kg^{-1} (Грачаница 1). Истраживања показују да је вертикална дифузија цезијума спор процес, а да промена концентрације са дубином није униформна [Krstić, 2006; Krstić и Nikezić, 2006], што је очекивано за вештачке радионуклиде. Неправилно опадање активности по дубини у неким подручјима може бити последица састава земљишта и локалне сорпције. У испитиваним узорцима једино је приметан нагли пад вредности ^{137}Cs са дубином у Ранилугу и Сушици (локације са највећим вредностима ^{40}K), што се може објаснити успореном миграцијом цезијума у земљиштима

богатим калијумом [Van der Stricht u Kirchmann, 2001]. Такође, и ефекат спирања (*wash off*) цезијума може да доведе до веома неравномерне расподеле у тлу.

Табела 6.4. Специфичне активности ^{137}Cs по дубини узоркованог земљишта и одговарајуће стандардне девијације са 15 локација Косова и Метохије

Број	Регион	Локација	Специфична активност ^{137}Cs (Bq kg^{-1})		
			0-5cm	10-20cm	20-40cm
1	Косовско поморавски	Велико Ропотово	30.7±0.5	25.8±0.6	4.2±0.3
2		Ранилуг 1, 2	31.7±0.7	9.2±0.4	1.6±0.2
3		Врбовац	30.5±0.7	16.5±0.6	20.4±0.6
4		Извор	17.0±0.6	10.1±0.4	18.1±0.5
5		Прековце	25.5±0.7	6.3±0.4	5.0±0.5
6		Јасеновик	25.9±0.8	14.7±0.5	9.0±0.5
7		Шилово 1	19.7±0.7	13.6±0.6	5.9±0.3
8		Пасјане 1,2	16.4±0.7	13.6±0.5	9.0±0.5
9	Косовски	Грачаница 1,2,3	33.3±0.8	30.1±0.8	22.3±0.7
10		Грачаница 4	16.0±0.5	18.2±0.6	8.7±0.5
11		Сушица 1, 2, 3	27.9±0.8	9.1±0.5	1.6±0.3
12		Добротин 1, 2	16.3±0.6	10.7±0.5	5.5±0.4
13		Добротин 3	18.6±0.6	19.0±0.6	19.9±0.6
14		Добротин 4	9.2±0.4	6.8±0.4	4.7±0.4
15	Пећи	Осојане 1, 2, 3	13.2±0.6	10.2±0.5	10.2±0.4

Дескриптивне статистике за вредности специфичних активности радионуклида приказане су у табели 6.5. Евидентан је спор пораст средњих вредности специфичних активности природних радионуклида са дубином земљишта, док је супротно код вештачког радионуклида ^{137}Cs где се запажа тенденција бржег опадања.

На основу представљених резултата уочава се изразита варијабилност специфичних активности ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs у 45 испитиваних узорака. То може бити последица различитих педогених типова насталих у различитим фазама деградације стенске масе. Такође, локална конфигурација терена, покретљивост и трансфер радионуклида кроз тле уз њихове физичкохемијске карактеристике значајно утичу на варијабилност специфичних активности.

Резултати измерених активности природних радионуклида публиковане су у раду [Gulan и др, 2013a].

Табела 6.5. *Дескриптивне статистике за вредности специфичних активности радионуклида у профилним узорцима земљишта са 15 локација на Косову и Метохији*

Радионуклид/ слој земљишта		Минимум (Bq kg ⁻¹)	Максимум (Bq kg ⁻¹)	Медијана (Bq kg ⁻¹)	Средња вредност (Bq kg ⁻¹)	Стандардна девијација (Bq kg ⁻¹)
^{226}Ra	0-5cm	22.5	69.9	33.7	33.7	11.4
	10-20cm	19.9	64.5	33.1	34.7	11.4
	20-40cm	20.2	83.8	31.2	37.4	16.2
^{232}Th	0-5cm	16.8	49.6	31.1	32.1	8.8
	10-20cm	17.6	49.2	31.2	34.4	8.8
	20-40cm	19.9	52.6	36.5	35.2	10.7
^{40}K	0-5cm	449	1161	654	686	197
	10-20cm	385	1203	668	698	207
	20-40cm	395	1310	675	729	242
^{137}Cs	0-5cm	9.2	33.3	19.7	22.1	7.6
	10-20cm	6.3	30.1	13.6	14.2	6.8
	20-40cm	1.6	22.3	7.2	9.6	7

6.2 Специфичне активности радионуклида – површински слој земљишта

Резултати измерених специфичних активности ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs у 59 испитиваних узорака тла из површинског слоја (0-5 cm) представљени су у табели 6.6. Дескриптивна статистика специфичних активности радионуклида за дати сет вредности приказана је у табели 6.7.

Уочава се изразита варијабилност у вредностима специфичних активности радионуклида. Специфичне активности ^{226}Ra и ^{232}Th варирале су од најнижих вредности у Јарињу (9.3 и 7.2 Bq kg⁻¹, респективно) до ≈ 10 пута већих вредности у Грабовцу 1 (91.1 Bq kg⁻¹ за ^{226}Ra и 103.8 Bq kg⁻¹ за ^{232}Th). Вредности специфичних активности ^{40}K у анализираним узорцима крећу се од 241 Bq kg⁻¹ (Јошевик 2) до 1149 Bq kg⁻¹ (Рударе 1). У анализираним узорцима најмања вредност ^{137}Cs је на локацији Јошевик 3 (6.2 Bq kg⁻¹), док је највећа забележена у Косовској Митровици 1 (385 Bq kg⁻¹). На извесним локацијама постоји локално концентрисање ^{137}Cs , док на другом, не тако удаљеним постоје разлике у вредностима за два реда величине. Важно је истаћи да поменуте локације припадају Косовскомитровачком региону.

Велики опсег вредности говори о неравномерној расподели, која је евидентно локалног карактера. Јасно се издвајају локације у околини Косовске Митровице са већим вредностима специфичних активности радионуклида (Грабовац 1 и 2, Рударе 1 и 2, Гојбуља и Брђани 1) у односу на северније делове овог региона (Јариње и Јошевик 2).

Веће вредности природних радионуклида у тлу у околини Косовске Митровице једним делом су последица постојања зоне орудњавања (неколико основних металних минерализација). Подручје комплекса „Трепча“ у чијем саставу је рудник олова и цинка, било је некада најважније рударско подручје у Европи. Обимне рударске активности (дугогодишња експлоатација и прерада руде у периоду од 1939-1999. године), производња минералних ђубрива и друге индустријске активности довеле су до стварања неколико одлагалишта флотацијске јаловине, металуршке шљаке и интермедијарних производа. Публиковани подаци последњих година говоре о нивоима дифузне контаминације животне средине тешким металима у Косовској Митровици и околини [*Di Lella u др, 2004; Borgna u др, 2009; Nannoni u др, 2011; Gulan u др, 2013b*].

Табела 6.6. Специфичне активности ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs са стандардним девијацијама у површинским узорцима тла (0-5 cm) са 59 локација на Косову и Метохији

Број	Регион	Локација	Специфична активност (Bq kg^{-1})			
			^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{137}Cs
1	К О С О В С К И	Грачаница 5	34.8±0.9	44.6±2.0	618±11	8.2±0.4
2		Грачаница 6	32.0±0.9	41.8±1.9	477±10	14.8±0.5
3		Грачаница 7,8	32.1±1.1	43.5±2.5	550±13	40.2±0.9
4		Доња Брњица	18.5±0.9	21.6±1.6	388±10	81.2±1.1
5		Бадовац	36.9±1.0	36.8±2.1	457±10	7.7±0.5
6		Лапље Село 1	28.3±0.8	29.0±1.6	595±11	25.1±0.6
7		Лапље Село 2	28.2±0.8	26.8±1.9	606 ±12	20.1±0.6
8		Преоце	27.4±1.0	33.1±2.5	614±13	7.8±0.5
9		Племетина 1, 2	22.4±0.9	31.1±2.0	462±11	98.7±1.3
10		Бабин Мост 1	30.3±1.0	36.2±2.4	622±12	15.9±0.6
11		Бабин Мост 2	22.9±0.9	24.7±1.8	408±11	47.9±0.9
12		Бабин Мост 3	35.7±1.0	39.2±2.4	708±13	98.4±1.2
13		Милошево	19.3±0.9	21.4±1.7	447±11	65.1±1.0
14		Липљан	35.9±1.0	29.9±1.9	606±12	30.4±0.7
15		Суви До	28.4±0.9	34.3±2.1	508±11	17.6±0.6
16		Доња Гуштерица	37.0±1.0	42.6±2.2	701±12	8.7±0.4
17		Добротин 5	40.5±0.9	40.3±2.0	664±11	13.8±0.5
18		Радево	25.9±1.0	25.3±2.1	468±13	23.4±0.7
19		Рабовце	48.2±1.2	43.8±2.3	543±11	40.2±0.9
20		Доње Битиње 1, 2	29.9±1.2	32.3±2.4	573±13	119.4±1.4
21		Севце	12.8±0.7	11.8±1.6	345±9	34.8±0.7
22		Штрпце	25.0±1.0	26.9±2.2	628±13	73.2±1.1

Број	Регион	Локација	Специфична активност (Bq kg ⁻¹)			
			²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs
23	П Е Ћ К И	Гораждевац 1	36.8±1.1	37.2±2.2	460±11	27.5±0.8
24		Гораждевац 2	24.8±0.9	23.7±1.7	508±11	42.5±0.8
25		Гораждевац 3	28.4±0.9	26.0±1.7	495±11	30.5±0.7
26		Гораждевац 4	32.7±1.0	33.4±2.0	447±11	33.5±0.8
27		Гораждевац 5	26.4±0.9	26.6±1.9	544±12	31.2±0.8
28	К О С О В С К О М И Т Р О В А Ч К И	Јариње	9.3±0.5	7.2±1.0	305±8	23.5±0.6
29		Лешак 1	20.8±0.7	23.2±1.7	433±10	13.8±0.5
30		Лешак 2	38.8±1.2	40.1±2.6	635±12	41.2±0.8
31		Лепосавић 1	28.3±1.0	28.8±2.2	601±13	11.5±0.6
32		Лепосавић 2	22.8±0.9	26.5±1.9	633±12	82.0±1.0
33		Кутње 1, 3	32.4±1.1	31.8±2.1	496±11	57.0±1.0
34		Кутње 2	19.0±0.7	27.9±1.7	517±10	30.9±1.7
35		Сочаница 1	31.2±1.0	31.5±2.2	658±12	16.3±0.6
36		Сочаница 2	35.6±1.1	39.1±2.2	516±12	33.6±0.8
37		Житковац 1	21.2±1.0	24.8±2.0	550±13	377.6±2.5
38		Житковац 2	32.1±1.0	36.6±2.3	779±13	86.9±1.2
39		Јошевик 1	14.7±0.8	13.8±1.7	305±10	57.7±1.1
40		Јошевик 2	11.0±0.9	8.0±1.3	241±11	315.7±2.3
41		Јошевик 3	30.0±1.0	29.1±2.5	540±12	6.2±0.6
42		Жеровница	27.0±0.9	34.4±2.2	695±13	31.6±0.7
43		Грабовац 1	91.1±1.6	103.8±3.4	1061±16	46.5±0.9
44		Грабовац 2	57.1±1.2	59.7±2.6	741±13	57.3±1.0
45		Рударе 1	73.0±1.8	102.8±3.9	1149±18	33.6±0.9
46	Рударе 2	50.5±1.4	69.8±3.4	789±16	34.0±0.9	

Број	Регион	Локација	Специфична активност (Bq kg ⁻¹)				
			²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	
47	КОСОВО ВАС ТАЧИ КИ	Звечан 1	32.6±1.0	52.1±2.4	834±13	55.2±0.9	
48		Звечан 2	43.2±1.1	44.4±2.3	820±13	23.3±0.6	
49		Прилужје	16.9±1.0	29.4±2.2	434±12	66.2±1.2	
50		Гојбуља	50.9±1.1	48.1±2.2	739±13	17.1±0.7	
51		Брђани 1	57.0±1.4	67.2±3.2	987±16	60.4±1.1	
52		Брђани 2	31.0±0.9	43.0±2.2	579±11	24.8±0.7	
53		Косовска Митровица 1	24.7±1.2	20.3±1.7	365±11	385.0±2.7	
54		Косовска Митровица 2	29.3±1.0	33.9±2.1	723±13	6.8±0.4	
55		Косовска Митровица 3	41.7±1.2	35.0±2.5	674±13	49.7±0.9	
56		Косовска Митровица 4	31.4±1.1	31.9±2.2	688±12	46.8±0.9	
57		Косовска Митровица 5	29.4±0.9	29.4±1.9	622±12	24.9±0.6	
58		Косовска Митровица 6	35.1±1.0	38.2±2.2	574±12	8.8±0.4	
59		*	Шилово 2	34.8±1.1	21.9±1.8	608±13	34.9±0.8

*- КОСОВСКОПОМОРАВСКИ

Табела 6.7. Дескриптивна статистика специфичних активности ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K и ¹³⁷Cs у узорцима тла (0-5 cm) са 59 локација на Косову и Метохији (Bq kg⁻¹)

Радионуклид	Минимум (Bq kg ⁻¹)	Максимум (Bq kg ⁻¹)	Медијана (Bq kg ⁻¹)	Средња вредност (Bq kg ⁻¹)	Стандардна девијација (Bq kg ⁻¹)
²²⁶ Ra	9.3	91.1	30.3	32.3	13.8
²³² Th	7.2	103.8	32.3	35.5	17.5
⁴⁰ K	241	1149	579	589	171
¹³⁷ Cs	6.2	385.0	33.6	54.6	75.9

Овакве технолошке активности могле су изменити и ниво природног зрачења овог простора [Murty u Karunakara, 2008]. Међутим, како ранијих системских истраживања радиоактивности на овом простору није било, ова претпоставка се мора узети у обзир са релативном резервом. Наиме, овај регион је карактеристичан и у геолошком смислу. Високе концентрације радионуклида у земљишту се могу довести у везу и са постојањем зоне дубоког раседа и зоне сеизмогеног раседа у близини [Геолошки атлас Србије, 2002]. Вулканска активност (која је поменута за овај регион у 3. поглављу) узрокује раседе, који се састоје од распуклих и разломљених метаморфних стена, насталих на високим притисцима и температурама. Из тог разлога раседи су изузетно пермеабилна средина погодна за пренос радионуклида подземним водама на површину [Singh u др, 2005; Baykara u Dogru, 2006]. Поред тога, релативна мобилност радионуклида и њихових продуката распада у току метасоматске активности (процес метаморфисања примарне стене променом хемијског састава услед дејства водених раствора) утичу на покретљивост ка површини раседа, повећавајући концентрације урана, торијума и калијума.

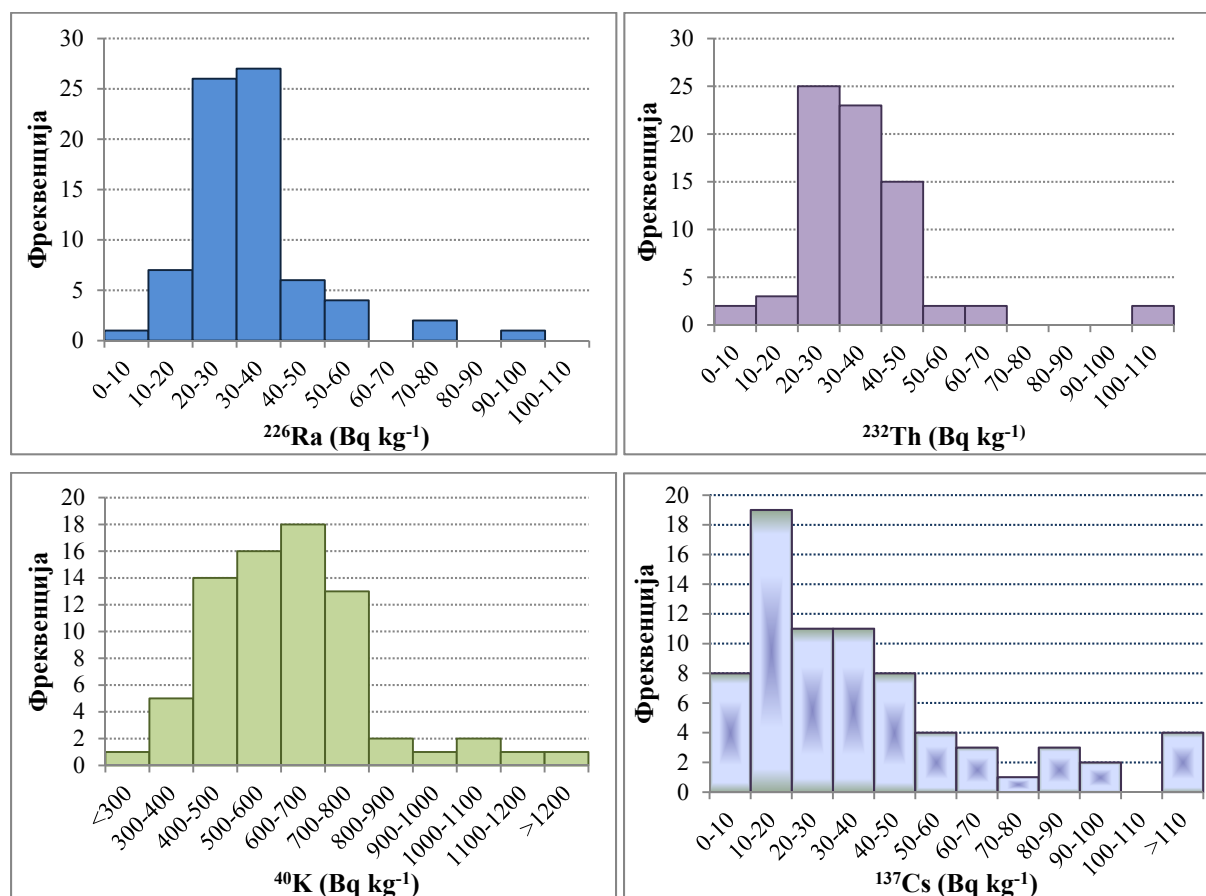
Интересантно је напоменути да према свакодневном мониторингу који спроводи Агенција за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије, Косовска Митровица има просечно виши ниво основног зрачења у односу на већину локација у Републици Србији. Средња вредност јачине амбијенталног дозног еквивалента гама зрачења у ваздуху Косовске Митровице током 2011. године била је 130.2 nSv h^{-1} [Агенција за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије, 2012]. (Основно зрачење, које се региструје у нормалним условима, потиче од космичког зрачења и природних радионуклида, а зависи од геологије терена и надморске висине мерног места, те је карактеристично за одређен простор). Све то само поткрепљује постојање поменутих узрока повишених вредности радионуклида у тлу: антропогене активности и карактеристичног геотектонског склопа посматраног подручја.

Неравномерну просторну расподелу ^{137}Cs у испитиваним узорцима условили су сложени начини дисперзије и депозиције након чернобиљског акцидента и нуклеарних проба, уз глобалне радиоактивне падавине и миграцију цезијума од једног места до другог кишом [Celik u др, 2008]. Ови процеси су праћени спором миграцијом цезијума у дубље слојеве земљишта и незнатним ефектима спирања (иако трају дужи низ година), па се већина радиоактивних честица (85%) задржава у површинском слоју до 5 cm дубине

[Janković-Mandić u Dragović, 2007]. Задржавање ^{137}Cs у површинским слојевима зависи и од локалног капацитета сорпције тла (углавном се везује за fine фракције глине). Равничарски рељефи (равница, долина, котлина) су погодни за концентрисање ^{137}Cs , што може бити разлог високих вредности на локацијама Косовска Митровица 1, Житковац 1 и Јошевик 2.

6.3 Фреквентна расподела радионуклида

Фреквентне расподеле специфичних активности природних радионуклида ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и вештачког радионуклида ^{137}Cs у анализираним узорцима тла са 74 локације на Косову и Метохији представљене су на слици 6.1. На хистограмима су представљене средње вредности радионуклида.



Слика 6.1. Фреквентна расподела ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs у испитиваним узорцима земљишта са 74 локације на Косову и Метохији

Колмогоров-Смирнов тест расподеле примењен на сет вредности специфичних активности ^{226}Ra показује логнормалну расподелу ($P=0.63$ са геометријском средином $GM=30.4$ и геометријском стандардном девијацијом $GSD=1.8$). Расподела је логнормална и за ^{40}K у анализираним узорцима земљишта ($P=0.43$, $GM=582.8$ и $GSD=1.4$). Специфичне активности ^{232}Th и ^{137}Cs за дати сет вредности, по Колмогоров-Смирнов тесту не подлежу ни нормалној, ни логнормалној расподели.

6.4 Расподела радионуклида по регионима

Вредности специфичних активности анализираних узорака земљишта на Косову и Метохији у овом истраживању налазе се у широком опсегу, што је последица већег броја различитих геолошких структура испитиваног простора. У табели су 6.8. је представљена дескриптивна статистика средњих вредности специфичних активности радионуклида по регионима и на територији Косова и Метохије на 74 локације.

Измерене вредности упоређене су са просечним вредностима специфичних активности природних радионуклида у свету [*UNSCEAR, 2008*]: 32, 45 и 420 Bq kg^{-1} за ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K , респективно. Евидентне су сличне вредности специфичних активности ^{226}Ra у свим регионима, које су око светског просека. Вредности специфичних активности ^{232}Th су највеће у Косовскомитровачком региону, али су испод вредности светског просека. У случају ^{40}K вредности су изнад светског просека у свим регионима, нарочито у Косовскопоморавском региону. ^{137}Cs у просеку има најмање у Косовскопоморавском региону, приближно 4 пута мање него у Косовскомитровачком региону, где се мерења разликују за два реда величине.

С обзиром да до сада нису спроведене студије о нивоима радиоактивности, тј. расподели радионуклида у тлу на територији Косова и Метохије резултати проистекли из овог рада су од посебног значаја за заштиту животне средине испитиваних подручја.

6.5 Поређење вредности специфичних активности радионуклида у тлу са вредностима земаља у свету

Средње вредности специфичних активности (и опсег) ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs су: 33 (9.3-91.1), 35 (7.2-103.8), 608 (242-1161) и 48 (6.2-385.0) Bq kg^{-1} , респективно за 74 локације на Косову и Метохији. Вредности су упоређене са вредностима специфичних активности радионуклида измерених у земљама света, а посебно у окружењу (табела 6.9.).

Према подацима из табеле 6.9. просечне вредности специфичних активности ^{226}Ra у свету варирају од 17 Bq kg^{-1} (Костарика, Египат, Данска) до 60 Bq kg^{-1} (Ирска). У окружењу најниже вредности специфичних активности ^{226}Ra измерене су у Албанији и БЈР Македонији (23 Bq kg^{-1}), а највише у Хрватској (54 Bq kg^{-1}). Специфичне активности ^{226}Ra у земљишту на Косову и Метохији (33 Bq kg^{-1}) према овом истраживању готово су исте као у Србији, Румунији и Мађарској.

Најнижу просечну вредност специфичне активности ^{232}Th у свету има Костарика (11 Bq kg^{-1}), а највишу Индија (60 Bq kg^{-1}). Концентрације ^{232}Th у тлу на Балканском полуострву варирају од 21 Bq kg^{-1} у Грчкој до 53 Bq kg^{-1} у северној српској покрајини Војводини. Специфичне активности ^{232}Th у земљишту на Косову и Метохији (35 Bq kg^{-1}) према овом истраживању исте су као у Словенији, веће су од вредности у Мађарској и Бугарској, а мало мање од истих измерених у Србији и Румунији.

Измерене средње вредности специфичних активности ^{40}K у земљишту у свету варирају од 140 Bq kg^{-1} на Кипру до 850 Bq kg^{-1} у Норвешкој. У земљама Балкана вредности су у опсегу од 360 Bq kg^{-1} (Грчка, Албанија) до већих од 530 Bq kg^{-1} (Република Српска, Србија, покрајина Војводина). Вредност средње специфичне активности ^{40}K у земљишту на Косову и Метохији (608 Bq kg^{-1}) према овом истраживању већа је од свих у региону и најсличнија је вредности у Луксембургу (620 Bq kg^{-1}).

Средња вредност специфичне активности ^{137}Cs у тлу на Косову и Метохији према овом истраживању (48 Bq kg^{-1}) је четири пута већа него у Војводини (12 Bq kg^{-1}) [Bikit и др, 2005], а скоро два пута већа него у Републици Српској (26 Bq kg^{-1}) [Janković и др, 2008]. Разлог нижих вредности у Војводини је алувијално земљиште [Dimovska и др, 2010]. Уз то, на пораст концентрације ^{137}Cs значајно утиче и надморска висина која је за анализиране узорке на Косову и Метохији >500 m [Mitrović и др, 2009]. Средња специфична активност

^{137}Cs у тлу Београда према последњој студији [*Petrović и др, 2013*] износи 29.9 Bq kg^{-1} . То говори да је ^{137}Cs и даље присутан у земљиштима у региону у већој концентрацији захваљујући нехомогеној контаминацији и депозицији након акцидента у Чернобиљу. Значајно мање вредности забележене су у другим земљама света: Пакистану [*Kumar и др, 2007*] и Индији [*Tahir и др, 2006*], и оне су вероватно последица проба нуклеарног наоружања.

Табела 6.8. Дескриптивна статистика специфичних активности радионуклида по регионима

Регион (Број локација)	Радионуклид	Минимум (Bq kg ⁻¹)	Максимум (Bq kg ⁻¹)	Медијана (Bq kg ⁻¹)	Средња вредност (Bq kg ⁻¹)	Стандардна девијација (Bq kg ⁻¹)
Косовско поморавски (9)	²²⁶ Ra	23.2	48.4	27.7	31.1	8.2
	²³² Th	18.1	41.3	29.1	28.8	7.4
	⁴⁰ K	424.2	1022.9	675.6	689.9	166.7
	¹³⁷ Cs	12.3	35.0	15.0	17.9	7.3
Косовски (28)	²²⁶ Ra	12.8	71.7	30.8	32.2	10.9
	²³² Th	11.8	47.7	34.7	34.2	8.8
	⁴⁰ K	344.9	1224.9	595.4	590.0	163.4
	¹³⁷ Cs	6.9	119.5	21.7	35.2	31.9
Косовско митровачки (31)	²²⁶ Ra	9.3	91.1	31.2	34.5	17.6
	²³² Th	7.2	103.8	34.0	39.1	22.4
	⁴⁰ K	241.5	1148.7	633.1	635.0	210.1
	¹³⁷ Cs	6.2	385.0	34.0	68.6	99.5
Пећки (6)	²²⁶ Ra	24.8	36.8	30.5	30.7	4.9
	²³² Th	23.7	37.2	28.1	29.4	5.1
	⁴⁰ K	430.5	544.0	477.2	480.6	42.7
	¹³⁷ Cs	11.2	42.5	30.8	29.4	10.3
Косово и Метохија (74)	²²⁶ Ra	9.3	91.1	30.7	32.6	13.3
	²³² Th	7.2	103.8	31.8	34.8	16.1
	⁴⁰ K	241.4	1161.4	598.1	608.4	179.8
	¹³⁷ Cs	6.2	385.0	30.6	48.0	69.0

Табела 6.9. Средње вредности специфичних активности природних радионуклида у неким земљама света [UNSCEAR, 2000]

Држава	Концентрација у тлу (Bq kg ⁻¹)			Држава	Концентрација у тлу (Bq kg ⁻¹)		
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K		²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
Алжир	50	25	370	Португал	44	51	840
Египат	17	18	320	Шпанија	32	33	470
Костарика	46	11	140	Кипар	17		140
САД	40	35	370	Грчка	25	21	360
Кина	32	41	440	Албанија	23 (²³⁸ U)	24	360
Индија	29	64	400	Бугарска	45	30	400
Јапан	33	28	310	Румунија	32	38	490
Иран	28	22	640	Мађарска	33	28	370
Данска	17	19	460	Хрватска	54	45	423
Норвешка	50	45	850	Словенија	41	35	370
Ирска	60	26	350	Република Српска ⁽¹⁾	47	41	536
Луксембург	35	50	620	Покрајина Војводина ⁽²⁾	39	53	554
Пољска	26	21	410	Србија ⁽³⁾	32.8 (²³⁸ U)	37.8	550
Русија	27	30	520	БЈР Македонија ⁽⁴⁾	23 (²³⁸ U)	25	438

⁽¹⁾ [Janković u др, 2008]; ⁽²⁾ [Bikit u др, 2005]; ⁽³⁾ [Dragović u др, 2013]; ⁽⁴⁾ [UNSCEAR, 2008].

7. РЕЗУЛТАТИ МЕРЕЊА КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНА У ЗАТВОРЕНИМ ПРОСТОРИЈАМА

У овом поглављу приказани су резултати мерења концентрације радона, торона и њихових равнотежних еквивалентних концентрација у затвореним просторијама. Резултати су статистички обрађени према серијама мерења радона и врстама коришћених детектора. Резултати су приказани у табелама и хистограмима, затим су груписани по регионима Косова и Метохије ради дискусије и поређења.

7.1 Прва серија мерења радона

Прва серија мерења концентрације радона спроведена је у руралним деловима Косовскопоморавског, Косовског и Пећког региона у једногодишњем периоду. Мерење је обухватило два периода: I период од децембра 2009. године до јуна 2010. године и II период од јуна до децембра 2010. године, са полугодишњом заменом детектора. Детектори CR-39 (RSKS) постављани су у две просторије (дневна и спаваћа соба) 25 приземних стамбених објеката. Комплетна мерења спроведена су у 19 објеката. У осталим објектима мерења су извршена или у једном периоду и/или у једној просторији.

Резултати мерења представљени су у табели 7.1. Просечна концентрација радона у објекту по периодима добијена је као средња вредност концентрације у обе просторије. Годишње концентрације радона у објектима представљају средње вредности концентрација радона по периодима. За некомплетна мерења годишње концентрације радона у објектима су израчунате према доступним (оствареним) мерењима. Однос концентрација радона у просторијама објеката у I периоду (зима-пролеће) је приближно једнак јединици, тј. генерално концентрација радона у објектима је уједначена. То може бити услед загревања у хладнијем периоду и истовременог уједначавања температуре унутар објеката. У II периоду (лето-јесен) тај однос је нешто већи за просторију 2 (спаваћа соба), што се може објаснити чешћим проветравањем боравишних просторија (дневна соба) у топлијем

периоду године. Интересантно је да су у концентрације радона у II периоду генерално ниже него у I периоду, осим на локацији Сушица 1,2,3 и Добротин 4.

Дескриптивна статистика за дате вредности концентрације радона приказана је у табели 7.2. Израчуната средња годишња вредност концентрације радона од 166.2 Bq m^{-3} је приближно 4 пута већа од средње вредности концентрације радона у затвореним просторијама у свету од 40 Bq m^{-3} [UNSCLEAR, 1993]. Ова вредност радона је нешто већа у поређењу са границом од 148 Bq m^{-3} коју је препоручила Америчка агенција за заштиту животне средине (US Environmental Protection Agency), [EPA, 2004]. Такође, премашене су вредности препорученог акционог нивоа од 200 Bq m^{-3} [ICRP 65, 1993] на 9 локација.

Највеће вредности радона су измерене у Косовском региону на локацији Сушица. На овој локацији у истраживање су укључена три објекта у непосредној близини која се разликују по години и начину изградње. По правилу, најстарији објекат (без бетонске плоче) има највећу просечну годишњу концентрацију радона (380 Bq m^{-3}), док је у објекту скоријег датума, за чију градњу није коришћен грађевински материјал (камен) из локалне средине она два пута мања (179 Bq m^{-3}). У трећем објекту (старијег датума) просечне годишње концентрације радона су нешто ниже (286 Bq m^{-3}) него у првом, јер бетонска плоча представља солидну баријеру за продор радона из земље. Чини се, ипак недовољну, имајући у виду и друге факторе који утичу на концентрацију радона у затвореним просторијама (нпр. навике укућана). Веће концентрације радона измерене у објектима у сезонама лето-јесен него зима-пролеће могу указати на перманентан, јак извор радона. Наиме, локација Сушица је карактеристична по вишим вредностима специфичних активности радионуклида, нарочито ^{226}Ra које расту са дубином, (табела 6.1.). Под претпоставком да је већа вредност ^{226}Ra локалног карактера, према анализи горе поменутих мерења, она потврђује непосредну генетску везу и упућује на јаку корелацију ова два радионуклида у низу урана ^{238}U .

Веће годишње концентрације радона измерене су на локацијама у Добротину ($>200 \text{ Bq m}^{-3}$); када се упореде са садржајем ^{226}Ra и ^{232}Th у тлу у непосредној близини, може се закључити да је и овде земљиште примарни извор радона у затвореним просторијама. Концентрације активности радона прве серије мерења (табела 7.1.) и одговарајуће специфичне активности радионуклида у тлу (табела 6.1.) биле су теме публикованог рада [Gulan и др, 2013a].

Табела 7.1. Концентрација радона у 25 објеката – прва серија мерења

Број	Локација	Концентрација радона у затвореним просторијама($Bq\ m^{-3}$)						
		I период			II период			Просечна годишња концентрација у објекту
		Просторија		Просечна концентрација	Просторија		Просечна концентрација	
		1	2		1	2		
1	В.Ропотово	49±5	27±3	38	44±5	235±22	140	89
2	Ранилуг 1	113±11	137±13	125	87±8	126±12	106	116
3	Ранилуг 2	191±18	136±13	163	131±12	100±10	116	139
4	Врбовац	217±20	217±20	217	201±19	174±16	188	202
5	Извор	96±9	83±8	90	81±8	83±8	82	86
6	Прековце	136±13	134±13	135	91±9	87±8	89	112
7	Јасеновик	58±6	102±10	80	103±10	79±8	91	85
8	Шилово	94±9	112±11	103	74±7	97±9	85	94
9	Пасјане 1	99±10	174±16	137	134±13	150±14	142	139
10	Пасјане 2	108±10	139±13	124		99±10	99	111
11	Грачаница 1	423±38	113±11	268	337±31	82±8	210	239
12	Грачаница 2	197±18	205±19	201	126±12	123±12	125	163
13	Грачаница 3	94±9	57±6	75	60±6	32±4	46	61

Број	Локација	Концентрација радона у затвореним просторијама($Bq\ m^{-3}$)						
		I период			II период			Просечна годишња концентрација у објекту
		Просторија		Просечна концентрација	Просторија		Просечна концентрација	
		1	2		1	2		
14	Грачаница 4	68±7	79±8	74	68±7	63±6	66	70
15	Сушица 1	292±27	380±35	336	359±33	489±44	424	380
16	Сушица 2	292±27	80±8	186	238±22	104±10	171	179
17	Сушица 3	247±23	252±23	250	321±29	322±29	322	286
18	Добротин 1	264±24	226±21	245	254±23	220±20	237	241
19	Добротин 2	226±21	371±34	299	204±19	321±29	263	281
20	Добротин 3	271±25	222±21	246	243±22	205±19	224	235
21	Добротин 4	182±17		182	249±23	344±31	296	239
22	Д.Гуштерица1	138±13		138				138
23	Осојане 1		269±25	269				269
24	Осојане 2	98±10	74±7	86				86
25	Осојане 3	119±11	111±11	115				115

Табела 7.2. *Дескриптивна статистика концентрације радона у 25 објеката мерене CR-39 детекторима (RSKS)*

^{222}Rn	I период	II период	Годишња концентрација
Број објеката	25	21	25
Минимум (Bq m^{-3})	38	46	61
Максимум (Bq m^{-3})	336	424	380
Медијана (Bq m^{-3})	138	139.5	139.3
Средња вредност (Bq m^{-3})	167.2	167.6	166.2
Стандардна девијација (Bq m^{-3})	80.9	97.7	84.3
Геометријска средина (Bq m^{-3})	147.2	143.4	148.3
Геометријска стандардна девијација	1.7	1.8	1.7

7.2 Друга серија мерења радона, торона и њихових равнотежних еквивалентних концентрација

Друга серија мерења концентрације радона изведена је у руралним и урбаним деловима Косовскомитровачког, Косовског и Пећког региона у једногодишњем периоду почев од октобра 2010. године. Концентрације радона и торона мерене су CR-39 детекторима, а њихове равнотежне еквивалентне концентрације LR115 детекторима.

7.2.1 Концентрације радона измерене CR-39 (RSKS) детекторима

Шестомесечна мерења радона су започета CR-39 (RSKS) детекторима од средине октобра 2010. године на 14 локација у Косовскомитровачком региону и заменом детектора на 10 локација настављена још 6 месеци. Једногодишња мерења без замене детектора извршена су у 4 објекта у Косовској Митровици (од октобра 2010 - октобра 2011). У

периоду: децембар 2010 - мај 2011 детектори су постављени у још 49 објеката и заменом, мерења су настављена у периоду мај 2011 - децембар 2011. Мерења радона су извршена у две просторије (дневне и спаваће собе) у укупно 63 стамбена објеката. Комплетна мерења спроведена су у 54 објеката уз полугодишњу замену детектора. У осталих 5 објеката мерења су извршена или у једном периоду и/или у једној просторији.

Локације, спратност и просечне годишње концентрације радона у просторијама 63 објекта представљене су у табели 7.3. Концентрације радона су приближно једнаке у обе просторије у већини објеката. Међутим, на неким локацијама у једној просторији су измерене релативно веће концентрације радона ($>100 \text{ Bq m}^{-3}$) у односу на другу (за оба периода). То упућује на закључак да постоји појачан извор радона у објекту.

Фреквентне расподеле концентрације радона у просторијама по периодима представљене су на сликама 7.1. и 7.2., респективно. Уочава се померање расподеле улево за вредности до 150 Bq m^{-3} за II период, тј. генерално у овом периоду су измерене мање концентрације радона. Другим речима, просечно су смањене концентрације радона у обе просторије у II периоду. Из табеле 7.4. разлика у средњим вредностима по периодима је евидентна и мање-више очекивана, с обзиром да је I период хладнији и тада већина становника користи чврсто гориво за загревање просторија, уз слабо проветравање.

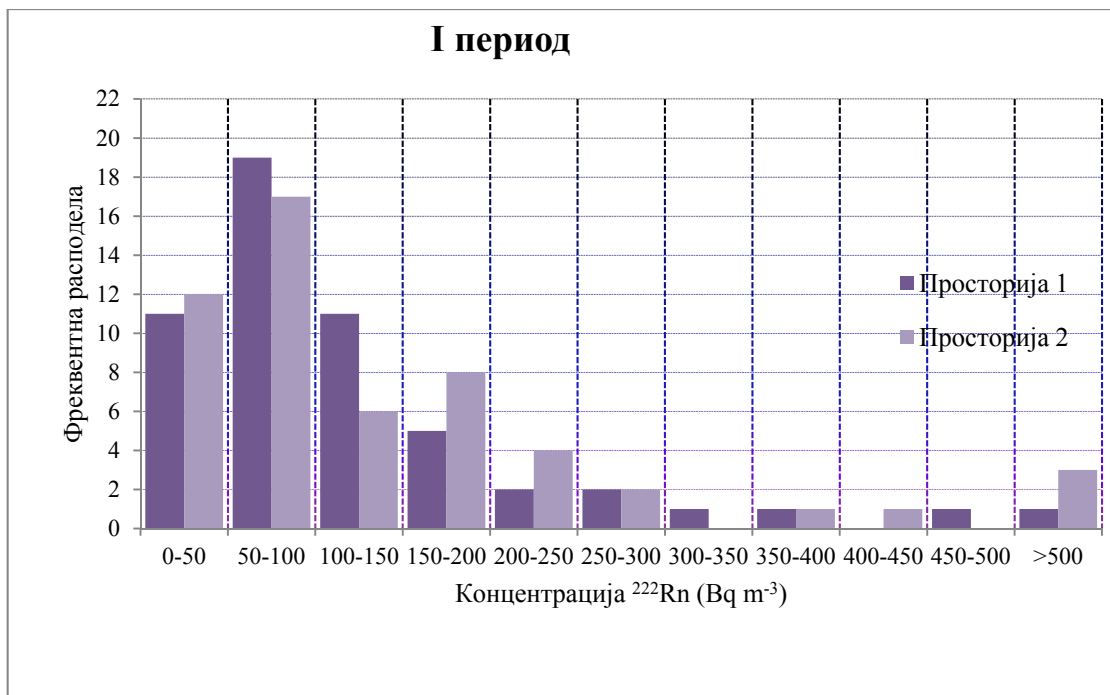
Средња вредност годишње концентрације од 127.5 Bq m^{-3} за 63 објекта је нижа од исте у претходној серији измерене истим детекторима. Средња вредност грешке мерења износи 10.5% (9-17%) од вредности измерене концентрације. Најмање вредности просечних годишњих концентрација радона су на локацијама Лешак 1 (30 Bq m^{-3}) на првом спрату објекта и Лапље Село 2 (33 Bq m^{-3}) у приземљу објекта. Највећа просечна годишња концентрација радона је у сутерену објекта на локацији Грабовац 2 (810 Bq m^{-3}). Локација Грабовац 1 је у непосредној близини. Релативно велика концентрација радона (271 Bq m^{-3}) за мерно место на првом спрату објекта говори о „аномалији“ радона на овим локацијама. Високе вредности радона одговарају локацијама у близини активних раседа [Catalano *и др*, 2012]. Анализом резултата мерења средње годишње концентрације радона су $>200 \text{ Bq m}^{-3}$ на још 7 локација (Липљан, Радево, Гораждевац 4, Јошевик 1, Рударе 2, Гојбуља и Брђани 1). То чини 14.3% мерења које превазилазе прописани акциони ниво за радон. Упоређења са специфичним активностима радионуклида (табела 6.6.) указују да је на овим локацијама земља доминантан извор радона у затвореним просторијама.

Табела 7.3. Локације, спратност и просечне годишње концентрације радона у просторијама 63 објекта

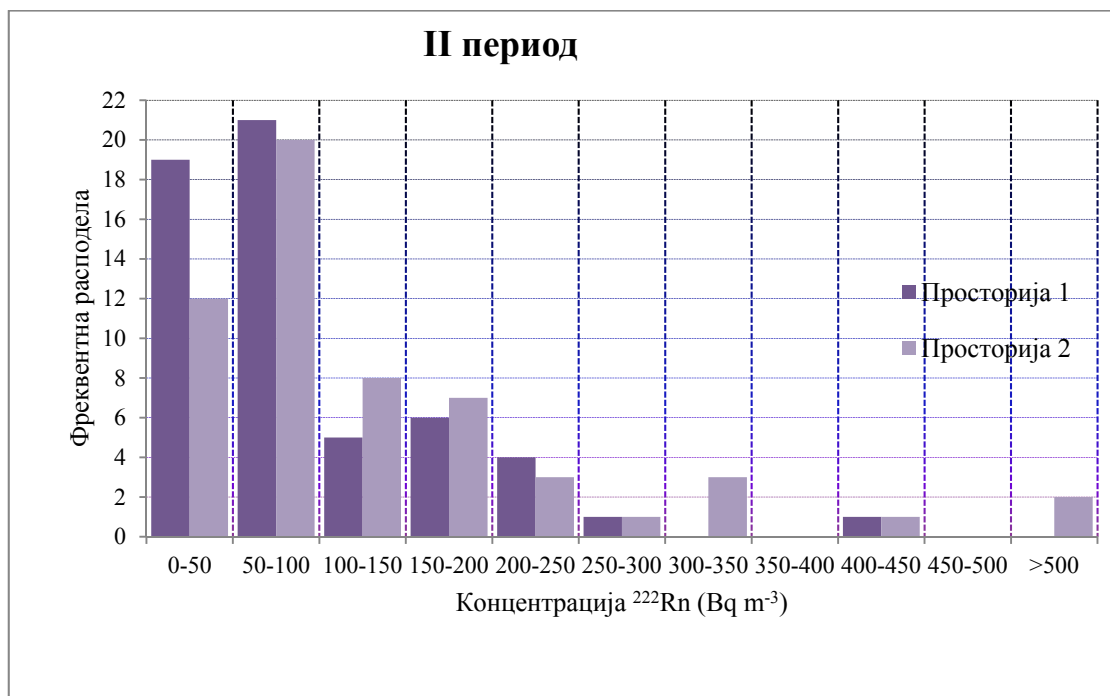
Број	Место	Спратност (локација детектора)	Просечна годишња концентрација радона (Bq m ⁻³)		
			Просторија 1	Просторија 2	Објекат
1	Лапље Село 1	Приземље	42	188	115
2	Лапље Село 2	Приземље	36	30	33
3	Преоце	Приземље	56	52	54
4	Доња Брњица	Приземље	79	75	77
5	Грачаница 5	Приземље	172	194	183
6	Грачаница 6	I спрат	35	53	44
7	Грачаница 7	Приземље	74	60	67
8	Грачаница 8	Приземље	60	54	57
9	Бадовац	Приземље	96		96
10	Племетина 1	Приземље	151	161	156
11	Племетина 2	Приземље	150	168	159
12	Бабин Мост 1	I спрат	67	61	64
13	Бабин Мост 2	Приземље	68	76	72
14	Бабин Мост 3	I спрат	33	39	36
15	Милошево	Приземље	93	145	119
16	Липљан	Приземље	152	278	215
17	Суви До	Приземље	59	55	57
18	Д. Гуштерица 2	I спрат	64	40	52
19	Добротин 5	Приземље	193	189	191
20	Радево	Приземље	254	386	320
21	Рабовце	Приземље	114	108	111
22	Доње Битиње 1	Приземље	39	45	42

Број	Место	Спратност (локација детектора)	Просечна годишња концентрација радона (Bq m ⁻³)		
			Просторија 1	Просторија 2	Објекат
23	Доње Битиње2	Приземље	36	32	34
24	Севце	Приземље	146	104	125
25	Штрпце	Приземље	65	56	61
26	Шилово 2	I спрат	83	61	72
27	Гораждевац 1	Приземље	103	77	90
28	Гораждевац 2	Приземље	153	163	158
29	Гораждевац 3	Приземље	190	140	165
30	Гораждевац 4	Приземље	239	349	294
31	Гораждевац 5	Приземље	57	53	55
32	Јариње	Приземље	34	36	35
33	Лешак 1	I спрат	32	28	30
34	Лешак 2	I спрат	54	59	57
35	Лепосавић 1	I спрат	50	32	41
36	Лепосавић 2	Приземље	79	81	80
37	Кутње 1	Приземље	64	66	65
38	Кутње 2	Приземље	72	152	112
39	Кутње 3	Приземље	45	175	110
40	Сочаница 1	I спрат	36	58	47
41	Сочаница 2	Приземље	133	123	128
42	Житковац 1	Приземље	169	147	158
43	Житковац 2	I спрат	42	48	45
44	Јошевик 1	Приземље	82	424	253
45	Јошевик 2	Приземље	61	57	59
46	Јошевик 3	I спрат	83	61	72

Број	Место	Спратност (локација детектора)	Просечна годишња концентрација радона (Bq m ⁻³)		
			Просторија 1	Просторија 2	Објект
47	Жеровница	I спрат	44	50	47
48	Грабовац 1	I спрат	192	350	271
49	Грабовац 2	Приземље	495	1125	810
50	Рударе 1	Приземље	71	73	72
51	Рударе 2	Приземље	126	258	224
52	Звечан 1	Приземље	145	71	108
53	Звечан 2	Приземље		177	177
54	Прилужје	Приземље	97	85	91
55	Гојбуља	Приземље	312	488	400
56	Брђани 1	Приземље	333	217	275
57	Брђани 2	Приземље	72	158	115
58	К. Митровица 1	Приземље	153	125	139
59	К. Митровица 2	Приземље	91	301	196
60	К. Митровица 3	Приземље	39	35	37
61	К. Митровица 4	Приземље	119	149	134
62	К. Митровица 5	Приземље	108	112	110
63	К. Митровица 6	Приземље	152	166	159



Слика 7.1. Фреквентна расподела концентрације радона у просторијама у I периоду



Слика 7.2. Фреквентна расподела концентрације радона у просторијама у II периоду

Табела 7.4. *Дескриптивна статистика концентрације радона у 63 објекта мерене CR-39 детекторима (RSKS)*

^{222}Rn	I период	II период	Годишња концентрација
Број објеката	59	58	63
Минимум(Bq m^{-3})	28	21	30
Максимум(Bq m^{-3})	881	740	810
Медијана(Bq m^{-3})	102	71	96
Средња вредност(Bq m^{-3})	141.3	115.5	127.5
Стандардна девијација(Bq m^{-3})	139.7	113.5	118.4
Геометријска средина(Bq m^{-3})	104.9	85.3	97.3
Геометријска стандардна девијација	2.1	2.1	2.0

7.2.2 Концентрације радона и торона измерене CR-39 (RADUET) детекторима

CR-39 (RADUET) детектори постављени су истовремено и упоредо са CR-39 (RSKS) детекторима у 49 просторија 63 поменута стамбена објекта (табела 7.3.). Комплетна мерења концентрације радона и торона спроведена су у 48 просторија уз замену детектора (I период: децембар 2010 - мај 2011 и II период: мај 2011 - децембар 2011). У једном објекту концентрације радона и торона мерене су само у I периоду.

Резултати мерења представљени су у табели 7.5. Дескриптивна статистика за вредности концентрације радона дата је у табели 7.6. Најмања вредност радона забележена је на локацији Грачаница 6 (14 Bq m^{-3}), а највећа у сутерену објекта на локацији Грабовац 2 (1182 Bq m^{-3}). Измерена концентрација радона на првом спрату објекта на локацији Грабовац 1 од 358 Bq m^{-3} је потврда незнатне разлике у мереним концентрацијама различитим врстама детектора (CR-39 RSKS детектори) и још један доказ постојања „аномалије“ радона на том месту.

Табела 7.5. Концентрације радона и торона у 49 објеката мерене CR-39 (RADUET) детекторима

Број	Место	Концентрације радона и торона ($Bq\ m^{-3}$)					
		I период		II период		Годишње концентрације	
		^{222}Rn	^{220}Rn	^{222}Rn	^{220}Rn	^{222}Rn	^{220}Rn
1	Лапље Село 1	130±14	124±26	106±7	118±15	118	121
2	Лапље Село 2	39±2	32±6	34±4	10±7	36.5	21
3	Преоце	65±5	194±11	61±4	214±14	63	204
4	Доња Брњица	42±2	199±8	48±5	140±10	45	169.5
5	Грачаница 5	213±13	78±24	145±6	66±15	179	72
6	Грачаница 6	14±3	256±13	38±2	198±10	26	227
7	Грачаница 7	44±7	279±15	55±3	303±12	49.5	291
8	Грачаница 8	55±3	237±12	43±4	232±12	49	234.5
9	Племетина 1	100±9	75±22	135±6	63±14	117.5	69
10	Племетина 2	78±5	131±12	180±9	142±21	129	136.5
11	Бабин Мост 1	90±5	194±12	78±5	128±11	84	161
12	Бабин Мост 2	90±10	50±24	73±3	10±8	81.5	30
13	Бабин Мост 3	60±4	55±8	46±2	53±6	53	54
14	Милошево	207±12	541±32	162±13	351±31	184.5	446
15	Липљан	303±20	1505±62	148±16	1472±59	225.5	1488.5
16	Суви До	49±6	84±11	60±3	89±8	54.5	86.5
17	Д. Гуштерица2	160±7	212±22	36±3	176±8	98	194
18	Добротин 5	247±11	59±36	185±13	250±33	216	154.5
19	Радево	203±12	246±32	198±13	268±29	200.5	257
20	Рабовце	104±6	349±17	173±13	368±34	138.5	358.5
21	Д.Битиње 1	16±3	99±6	50±4	26±12	33	62.5

Број	Место	Концентрације радона и торона (Bq m^{-3})					
		I период		II период		Годишње концентрације	
		^{222}Rn	^{220}Rn	^{222}Rn	^{220}Rn	^{222}Rn	^{220}Rn
22	Д. Битиње 2	43±2	43±7	29±2	113±8	36	78
23	Севце	56±3	168±11	44±3	200±19	50	184
24	Штрпце	30±3	38±6	23±1	13±3	26.5	25.5
25	Шилово 2	44±3	85±9	37±3	61±6	40.5	73
26	Гораждевац 1	70±6	22±10	77±7	19±14	73.5	20.5
27	Гораждевац 2	280±12	22±28	156±16	24±26	218	23
28	Гораждевац 3	112±7	51±15	67±8	111±14	89.5	81
29	Гораждевац 4	163±7	67±18	206±8	10±19	184.5	38.5
30	Гораждевац 5	35±2	57±5	46±5	56±12	40.5	56.5
31	Јариње	21±4	122±9	24±2	112±7	22.5	117
32	Лешак 1	21±3	137±7	17±2	147±6	19	142
33	Лешак 2	52±2	23±7	29±3	33±10	40.5	28
34	Лепосавић 1	19±1	52±3	24±1	34±4	21.5	43
35	Кутње 1	48±4	108±12	45±4	88±10	46.5	98
36	Кутње 2	37±3	185±11	146±9	195±22	91.5	190
37	Кутње 3	213±9	120±25			213	120
38	Сочаница 1	45±3	126±9	42±4	78±8	43.5	102
39	Житковац 1	215±13	66±25	136±6	37±14	175.5	51.5
40	Житковац 2	73±4	36±12	39±4	60±7	56	48
41	Јошевик 1	623±32	66±64	321±17	47±34	472	56.5
42	Јошевик 3	71±6	75±11	34±2	64±6	52.5	69.5
43	Жеровница	34±3	144±13	42±4	35±7	38	89.5
44	Грабовац 1	358±17	102±37	279±14	34±28	318.5	68

Број	Место	Концентрације радона и торона ($Bq\ m^{-3}$)					
		I период		II период		Годишње концентрације	
		^{222}Rn	^{220}Rn	^{222}Rn	^{220}Rn	^{222}Rn	^{220}Rn
45	Грабовац 2	1182±56	262±125	856±36	184±82	1019	223
46	Прилужје	215±12	154±27	61±4	13±10	138	83.5
47	Гојбуља	490±30	303±59	283±16	285±50	386.5	294
48	Брђани 1	439±19	327±48	313±35	220±62	376	273.5
49	Брђани 2	119±5	85±14	125±6	100±15	122	92.5

Табела 7.6. Дескриптивна статистика концентрације радона у 49 објеката

^{222}Rn	I период	II период	Годишња концентрација
Број просторија	49	48	49
Минимум ($Bq\ m^{-3}$)	14	17	19
Максимум ($Bq\ m^{-3}$)	1182	856	1019
Медијана ($Bq\ m^{-3}$)	73	61	81.5
Средња вредност ($Bq\ m^{-3}$)	151.4	115.7	134.5
Стандардна девијација ($Bq\ m^{-3}$)	199.7	136.2	165.3
Геометријска средина ($Bq\ m^{-3}$)	88.5	77.0	86.3
Геометријска стандардна девијација	2.9	2.4	2.5

Упоредивањем концентрација на осталим локацијама утврђена је проста законитост: било да су измерене ниске или високе вредности концентрације радона, оба детектора дају приближно исте вредности. Поређење резултата мерења различитим врстама детектора, њихових средњих вредности и медијана по периодима указују да се вредности концентрација нарочито добро слажу у II периоду. У I периоду просечно су веће

концентрације мерене CR-39 (RSKS) детекторима од оних мерених CR-39 (RADUET) детекторима. При истим условима мерења разлог неслагања може бити у различитој осетљивости или калибрацији детектора.

Дескриптивна статистика за торон је дата у табели 7.7. Највећа годишња концентрација торона измерена је у Липљану (1489 Bq m^{-3}). Високу вредност концентрације торона на овој локацији можемо сматрати аномалном, јер се она појављује у оба периода са приближно једнаком вредношћу. Међутим, на овој локацији није забележена висока концентрација ^{232}Th у земљишту (29.9 Bq kg^{-1}), тако да је извор торона у просторији вероватно грађевински материјал.

Према табели 6.6. (у претходном поглављу) на локацијама где су концентрације ^{232}Th у тлу веће од 40 Bq kg^{-1} , измерене су концентрације торона веће од 200 Bq m^{-3} (Грачаница, Рабовце, Гојбуља, Грабовац 2, Брђани 1). На локацији Грабовац 1, са највећом концентрацијом ^{232}Th у тлу (103.8 Bq kg^{-1}) није измерена висока концентрација торона, јер је место мерења било на спрату објекта. Поменуте локације имају и већи садржај ^{226}Ra у тлу и налазе се у близини активних раседа [*Геолошки Атлас Србије, 2002*], који представљају изузетно пермеабилне средине за радон и торон (то је дискутовано у секцији 6.2.). И поред извесног геогеног каузалитета између торона ^{220}Rn и торијума ^{232}Th , може се извести закључак да је утицај геологије слабији у поређењу са истим између радона ^{222}Rn и радијума ^{226}Ra , због краћег времена живота торона. Имајући у виду и место постављања детектора, изгледа да постоји већи утицај грађевинских материјала на измерене концентрације торона у затвореним просторијама.

Високе концентрације торона пријављене су и у неким регионима Европе и Азије [*UNSCEAR, 2006*]. У кинеској провинцији Гансу спроведено је низ истраживања радона и торона у традиционалним кућама изграђеним од локалног материјала, где је просечан садржај ^{232}Th у тлу 55 Bq kg^{-1} . Средња вредност мерења торона у 164 куће на растојању 5-10 cm од зидова била је око 4 пута већа од концентрације радона и износила је 318 Bq m^{-3} [*Shang и др, 2005*]. Поновљено мерење у 49 кућа на растојању 2.5 cm од зидова дало је средњу вредност торона 430 Bq m^{-3} [*Shang и др, 2008*]. Показано је да концентрација торона бива слична концентрацији радона на 15-20 cm растојања од зидова и/или подова, а да је зид доминантан извор торона.

Табела 7.7. *Дескриптивна статистика концентрације торона у 49 објеката*

^{220}Rn	I период	II период	Годишња концентрација
Број просторија	49	48	49
Минимум (Bq m^{-3})	22	10	20.5
Максимум (Bq m^{-3})	1505	1472	1489
Медијана (Bq m^{-3})	108	94.5	92.5
Средња вредност (Bq m^{-3})	164.2	146.9	155.3
Стандардна девијација (Bq m^{-3})	221.6	217.6	216.7
Геометријска средина (Bq m^{-3})	108.7	83.3	101.4
Геометријска стандардна девијација	2.9	3.3	2.6

У једногодишњем истраживању [Zhuo и Tokonami, 2005] у 100 просторија на растојању 10 cm од зидова (на истом растојању су детектори постављани и у овом раду) измерена просечна вредност торона износила је 184 Bq m^{-3} . Стога су измерене високе концентрације торона у овом истраживању, вероватно последица избора места постављања детектора, ако се прихвати да су у појединим просторијама детектори постављани и на мањем растојању од 10 cm. На основу резултата мерења торона на растојању од 15-20 cm од зида показано је да је ниво концентрације нижи за ред величине у поређењу са мерењима спроведеним поред зида [Kovacs, 2010]. С друге стране, молекуларна дифузија није једини механизам транспорта торона у просторији; то је показано одређивањем дифузионог коефицијента торона у ваздуху традиционалних јапанских кућа [Doi и др, 1994]. Добијена вредност даје дифузиону дужину од око 20 cm за торон (под условом да у просторији нема струјања ваздуха). То значи је концентрација торона на растојању 1 m од зида у таквој кући мања од 1% вредности на површини зида (где се претпоставља да је концентрација торона максимална) [McLaughlin, 2010]. Међутим, у нормалним условима због струјања ваздуха у просторијама не мора бити експоненцијалног опадања концентрације торона са растојањем од зида.

Средње концентрације торона веће су од средњих концентрација радона у оба периода, па су и годишње вредности торона (155.3 Bq m^{-3}) веће од вредности радона (134.5 Bq m^{-3}). Разлике у медијанама и средњим вредностима по периодима (табела 7.7.) говоре да сезонске промене не утичу значајно на варијације у концентрацијама торона, ако се упореде са истим код радона (табела 7.6.). Просечно су веће концентрације торона у периоду зима-пролеће (I период) него лето-јесен, што су такође показала истраживања у БЈР Македонији [Stojanovska *и др*, 2013] изведена CR-39 (RADUET) детекторима.

На појединим локацијама где су измерене веће концентрације радона, јавља се велика грешка у мерењима торона у оба периода (концентрација торона је испод доње границе детекције). Претпоставка је да велика концентрација радона ремети мерења торона, тј. уноси грешку у мерењима торона. Поред тога, граница детекције RADUET детектора за торон зависи од концентрације радона и јако расте са порастом концентрације радона [Tokonami, 2005; Stojanovska *и др*, 2013]. Доказ да концентрације торона у објектима не зависе од спратности објеката су на локацијама у којима су на спрату измерене концентрације $>100 \text{ Bq m}^{-3}$: Грачаница 6, Лешак 1 и Сочаница 1. Претпоставка је да је овде главни извор торона ^{232}Th у грађевинском материјалу.

На крају, велике потешкоће у калибрацији и мерењима торона повезане су са хетерогеном расподелом торона која зависи од влажности и температуре у дифузионој комори [Akiba *и др*, 2010]. Због кратког времена живота, мерења торона су осетљивија на варијације у струјању ваздуха око детектора, што може утицати на већу стандардну девијацију при читавању трагова [Chen *и др*, 2011].

7.2.3 Равнотежне еквивалентне концентрације радона и торона измерене LR115 (DTPS/DRPS) детекторима

Процена концентрације потомака радона може да се изврши преко равнотежног фактора, из разлога што радон има релативно дуго време живота у коме се претпоставља да достиже равнотежу с потомцима и притом је хомогено распоређен у просторији. С друге стране, процена концентрације потомака торона није релевантна преко одговарајућег равнотежног фактора и требало би да се директно одређује [Tokonami, 2005].

LR115 (DTPS/DRPS) детектори за мерење концентрације активности потомака радона и торона постављани су истовремено са CR-39 (RSKS) и CR-39 (RADUET) детекторима у спаваћим собама (просторији 2) у 48 стамбених објеката. Комплетна мерења спроведена су у 41 објекту уз полугодишњу замену детектора (I период: децембар 2010 - мај 2011 и II период: мај 2011 - децембар 2011). У осталих 7 објеката мерење је спроведено само у I периоду.

Равнотежне еквивалентне концентрације радона (EERC) и равнотежне еквивалентне концентрације торона (EETC) у оба периода мерења представљене су у табели 7.8. Дескриптивне статистике равнотежних еквивалентних концентрација радона (EERC) и торона (EETC) дате су у табелама 7.9. и табели 7.10., респективно. Средња вредност за EETC је 1.6 Bq m^{-3} , а опсег $0.7 - 3.4 \text{ Bq m}^{-3}$ је у оквиру светског од $0.2-12 \text{ Bq m}^{-3}$ [UNSC EAR 2000]. Средња вредност за 60 мерења EETC у Кинеској провинцији Фуџијан измерена CR-39 детекторима је 0.89 (опсег $0.39-2.17$) Bq m^{-3} [Zhuo и др, 2010].

Однос EETC/EERC износи 0.045 (опсег $0.021-0.141$) и најприближнији је односу 0.04 у Румунији, САД, Норвешкој и 0.05 у Молдавији [UNSC EAR 2000]. Према физичким карактеристикама уласка радона и торона у грађевинске објекте и јачине вентилације од 0.7 h^{-1} , ICRP модел предлаже однос $EETC/EERC = 0.03$ [UNSC EAR, 2006].

Значајне варијације у концентрацијама радона, торона и потомака потичу од различитих амбијенталних услова у појединачним случајевима (вентилација, концентрација аеросола у просторији, загревање просторија, итд). Приближно два пута веће вредности за EERC и EETC у I периоду него у II периоду могу се довести у везу са загревањем просторија. Употребом чврстог горива за грејање концентрација аеросола у просторији се повећава. Повећање концентрације аеросола смањује таложеење. (Слободни потомци се више таложее, јер имају већу покретљивост). Такође, слабија вентилација у већини објеката у зимском периоду онемогућава интензивнију депозицију потомака.

Мерења концентрација активности потомака из распада радона и торона први пут су спроведена на Косову и Метохији. Пошто се заснивају на интегралној методи у полугодишњем трајању, поред потешкоћа везаних за калибрацију, мерења имају велики значај. Наиме, на основу резултата мерења прелиминарно су одређени равнотежни фактори за радон F_{Rn} и торон F_{Tn} и упоређени са резултатима добијеним за атмосфере затворених просторија у неким земљама света.

Табела 7.8. Равнотежне еквивалентне концентрације радона (ЕЕRC) и торона (ЕЕСТ)

Број	Место	I период (Bq m ⁻³)		II период (Bq m ⁻³)	
		ЕЕCR	ЕЕСТ	ЕЕCR	ЕЕСТ
1	Лапље Село 1	142.10	3.87	81.78	0.77
2	Лапље Село 2	46.58	2.21	9.08	0.69
3	Преоце	25.48	1.77	23.02	0.76
4	Доња Брњица	14.03	1.29	12.24	0.59
5	Грачаница 5	39.37	1.50	13.41	0.76
6	Грачаница 6	11.88	1.32	13.88	0.68
7	Грачаница 7	26.71	1.87	10.35	0.76
8	Грачаница 8	35.08	1.43	23.91	0.74
9	Племетина 1	26.46	1.47	8.72	0.81
10	Племетина 2	72.76	2.17	19.50	0.87
11	Бабин Мост 1	34.81	1.23	32.84	0.84
12	Бабин Мост 2	19.56	1.03	34.91	1.02
13	Бабин Мост 3	40.16	2.00	15.30	0.77
14	Милошево	84.46	2.47	22.47	1.63
15	Липљан	27.06	2.34	12.68	1.84
16	Суви До	148.85	4,08	11.84	0.58
17	Доња Гуштерица 2	12.22	0.85	11.11	0.54
18	Добротин 5	39.28	1.34	37.40	0.72
19	Радево	23.00	1.61	12.28	0.63
20	Рабовце	18.14	1.32	18.51	1.15
21	Доње Битиње 1	12.98	1.25	6.39	0.76
22	Доње Битиње 2	5.64	0.79	10.03	0.69
23	Севце	36.73	2.16	9.85	1.39
24	Штрпце	23.48	1.01	7.12	0.76

Број	Место	I период (Bq m ⁻³)		II период (Bq m ⁻³)	
		ЕЕСР	ЕЕСТ	ЕЕСР	ЕЕСТ
25	Шилово	14.26	1.26	9.33	0.75
26	Гораждевац 1	11.47	1.40	17.81	1.22
27	Гораждевац 2	117.85	3.36	38.87	0.76
28	Гораждевац 3	61.95	1.92	14.26	0.91
29	Гораждевац 4	81.23	2.74	46.54	0.75
30	Гораждевац 5	16.21	0.82	10.58	1.52
31	Јариње	25.37	1.32	14.80	1.52
32	Лешак 1	23.75	2.47	23.72	1.23
33	Лешак 2	45.19	1.96		
34	Лепосавић 1	7.00	0.95		
35	Кутње 1	52.52	2.28		
36	Кутње 2	85.01	2.12		
37	Кутње 3	109.09	3.38		
38	Сочаница 1	31.68	1.80		
39	Житковац 1	79.00	1.99	41.21	1.27
40	Житковац 2	27.01	1.62	10.06	1.03
41	Јошевик 1	80.43	3.09	58.71	1.12
42	Јошевик 3	54.59	2.51	20.62	1.44
43	Жеровница	13.43	1.88	7.24	1.71
44	Грабовац 1	40.98	1.42	15.59	0.60
45	Грабовац 2	81.26	2.54	18.34	1.37
46	Прилужје	14.32	1.29		
47	Брђани 1	79.31	3.15	55.78	4.34
48	Брђани 2	35.04	1.82	49.45	3.01

Табела 7.9. *Дескриптивна статистика равнотежних еквивалентних концентрација радона (EERC)*

EERC	I период	II период	Годишња концентрација
Број просторија	48	41	48
Минимум (Bq m ⁻³)	5.6	6.4	7.0
Максимум (Bq m ⁻³)	148.9	81.8	111.9
Медијана (Bq m ⁻³)	34.9	15.3	27.8
Средња вредност (Bq m ⁻³)	44.9	22.2	35.6
Стандардна девијација (Bq m ⁻³)	35.0	16.9	24.6
Геометријска средина (Bq m ⁻³)	33.6	17.8	28.8
Геометријска стандардна девијација	2.2	1.9	1.9

Типичне вредности равнотежних фактора у свету за радон и торон су 0.4 (опсег 0.1 - 0.9) и 0.03, респективно [UNSCLEAR 1993; UNSCLEAR 2000]. Из формула (17) и (18) (друго поглавље) узимајући у обзир годишње вредности за EERC и EETC, и годишње концентрације радона и торона измерених CR-39 (RADUET) детекторима за све локације израчунате су вредности равнотежних фактора за радон F_{Rn} и торон F_{Tn} . Њихове средње вредности износе 0.47 и 0.021, респективно. Слична вредност равнотежног фактора за радон добијена је у Грчкој (0.49) [Clouvas *u др*, 2006]. Мерењем равнотежног фактора за радон F_{Rn} у 30 руралних објеката у Чешкој добијена је средња вредност 0.32 [Jilek *u др*, 2010]. У Кореји је директним мерењем добијена слична вредност (0.022) равнотежног фактора за торон F_{Tn} [Kim *u др*, 2005]. У истраживању спроведеном у Кини равнотежни фактор за торон у кућама од бетона и опеке варирао је од 0.02-0.038; у земљаним кућама је био знатно мањи 0.004-0.007, што указује на веће концентрације торона у односу на потомке [Shang *u др*, 2005]. У гранитном региону државе Карнатака (Индија) у 74 мерења спроведена LR115 детекторима [Sannappa *u Ningappa*, 2014] добијена је средња вредност равнотежног фактора за торон 0.06, док је измерена средња вредност равнотежног фактора за радон износила 0.148.

Табела 7.10. *Дескриптивна статистика равнотежних еквивалентних концентрација торона (ЕЕСТ)*

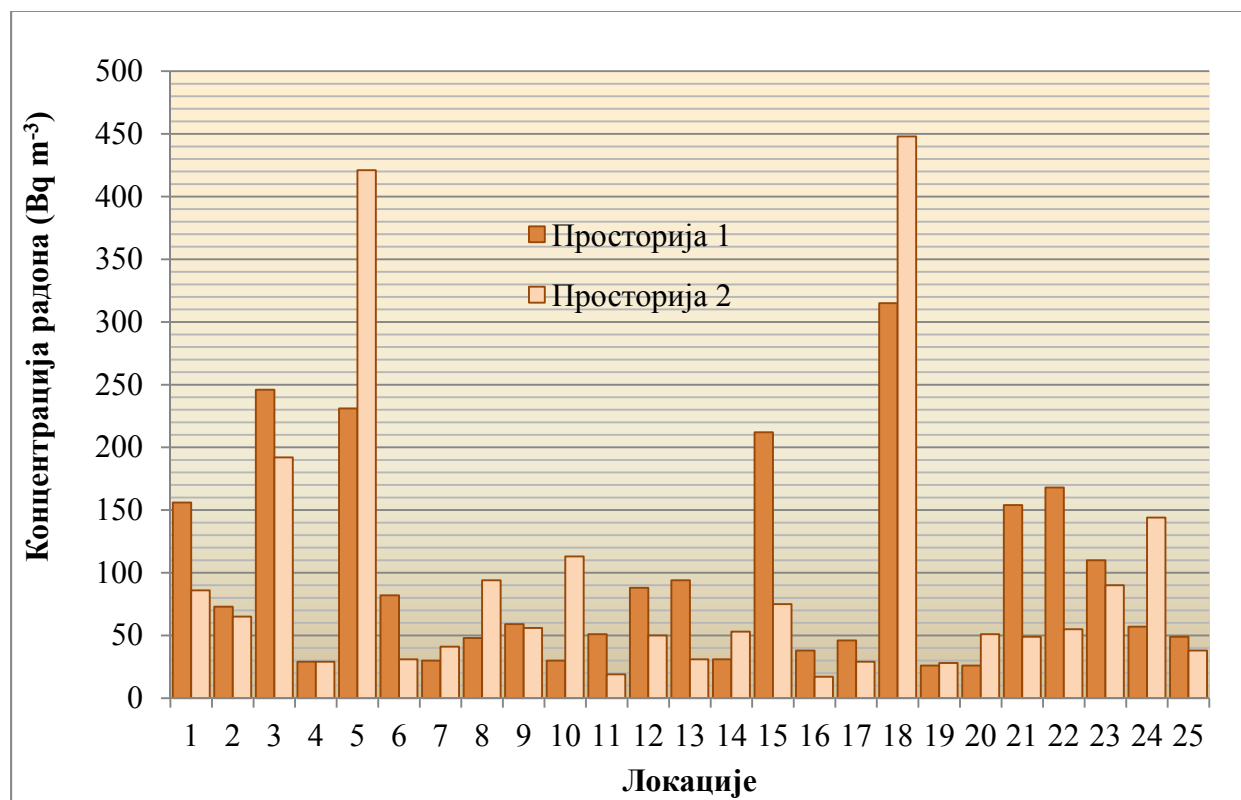
ЕЕСТ	I период	II период	Годишња концентрација
Број просторија	48	41	48
Минимум (Bq m ⁻³)	0.8	0.5	0.7
Максимум (Bq m ⁻³)	4.1	4.3	3.4
Медијана (Bq m ⁻³)	1.8	0.8	1.4
Средња вредност (Bq m ⁻³)	1.9	1.1	1.6
Стандардна девијација (Bq m ⁻³)	0.8	0.7	0.7
Геометријска средина (Bq m ⁻³)	1.8	1.0	1.5
Геометријска стандардна девијација	1.5	1.6	1.5

7.3 Трећа серија мерења радона

Једногодишња мерења концентрације радона спроведена су у по две просторије 25 објеката Косовскомитровачког (општина Зубин Поток) и Призренског региона (општина Драгаш) у периоду април 2011 - април 2012, коришћењем CR-39 (Gammadata) детектора. Резултати мерења представљени су на слици 7.3. Дескриптивна статистика за вредности концентрације радона дата је у табели 7.11. Средња годишња концентрација је 95.1 Bq m⁻³ и најмања је у поређењу са претходне две серије радона. Колмогоров-Смирнов тест даје лог-нормалну расподелу за сет вредности концентрације радона у објекту са параметрима: P = 0.30, GM = 79.2 Bq m⁻³ и GSD = 2.2.

Највеће просечне годишње вредности концентрације радона које превазилазе прописани акциони ниво од 200 Bq m⁻³ забележене су у општини Зубин Поток на локацији под бројевим 3 (219 Bq m⁻³) и 5 (326 Bq m⁻³) и општини Драгаш на локацији број 18 (382 Bq m⁻³). У првом случају ради се о новоизграђеном спратном објекту где су концентрације радона мерене на обе етаже. Не само геолошка подлога, већ и грађевински материјал

(бетонски блок) и недовољна вентилација јесу разлози високе концентрације радона. У другом случају, радон је мерен у приземном објекту старом више десетина година, са дрвеним подовима без бетонске плоче и зидовима од камена и блата. Објект на локацији 18 грађен је од камена и бетона.



Слика 7.3. Концентрације радона у просторијама 25 објеката мерене CR-39 (Gammadata) детекторима

Интересантно запажање: на локацији под бројем 2 детектори постављени у приземној монтажној кући забележили су просечну концентрацију радона 69 Bq m⁻³. Све то упућује на закључак да и грађевински материјал може бити доминантан извор радона у затвореним просторијама. Карактеристике тла у околини основе објекта су главни извор радона у приземљима, док грађевински материјал вероватно даје већи допринос на вишим спратовима објекта [Catalano *и др*, 2012].

Табела 7.11. *Дескриптивна статистика концентрације радона мерене Gammadata детекторима*

^{222}Rn (Gammadata)	Годишња концентрација		
	Просторија 1	Просторија 2	Објект
Број мерења	25	25	25
Минимум (Bq m^{-3})	26	17	27
Максимум (Bq m^{-3})	315	448	382
Медијана (Bq m^{-3})	59	53	69
Средња вредност (Bq m^{-3})	98.0	92.2	95.1
Стандардна девијација (Bq m^{-3})	81.1	110.8	89.7
Геометријска средина (Bq m^{-3})	77.3	69.1	79.2
Геометријска стандардна девијација	2.2	2.5	2.2

7.4 Расподела радона по регионима

Дескриптивна статистика за вредности концентрације радона по регионима Косова и Метохије дата је у табели 7.12. Колмогоров-Смирнов тест даје логнормалну расподелу резултата по регионима. Средња вредност за сет од 113 годишњих мерења је 128.9 Bq m^{-3} .

Упоређивањем средњих вредности концентрације радона може се приметити да је највећа вредност у Пећком региону (мада постоји најмањи број мерења), а најмања средња вредност добијена је у Призренском региону 81 Bq m^{-3} . Према ранијим истраживањима (у периоду 1995-2007) ниске вредности (просечно 54 Bq m^{-3}) за Призренски регион су очекиване [Milić *и др*, 2011]. Нема упоредних података за Пећки регион. Такође, за Косовскопоморавски регион средња вредност мерења (113 Bq m^{-3}) је приближна раније добијеној вредности мерења од 120 Bq m^{-3} . Међутим, за Косовски и Косовскомитровачки регион одговарајуће вредности се не слажу. Раније измерене концентрације у Косовском региону су далеко веће и укључују већи број мерења. У овом циклусу мерења добијене су

ниже вредности у северном делу Косовскомитровачког региона. Мерења раније нису спроведена у подручју Косовске Митровице и Зубиног Потока, где су иначе измерене веће концентрације радона, што може бити разлог неслагања са претходним циклусом мерења [Milić *и др*, 2011]. Уз то, у претходном циклусу мерења није потпуно избегнут утицај сезонских варијација на концентрацију радона, јер је већина мерења трајала 3 месеца. Ако се упореде резултати у 12 објеката у којима су мерења поновљена долази се до закључка да нема значајне разлике у концентрацији радона у два циклуса мерења. То су објекти на локацијама у Сушици, Добротину, Грачаници и Бадовцу [Milić, 2003]. Раније идентификована већа концентрацијарадона у Сушици и Добротину, потврђена је и овим мерењима.

Анализа је показала да 81.4% објеката има вредности концентрација ^{222}Rn ниже од 200 Bq m^{-3} (што је препорука за новије објекте) [ICRP 65, 1993], док је 1.8 % вредности концентрација $^{222}\text{Rn} > 400 \text{ Bq m}^{-3}$ (где треба укључити одређени степен ремедијације, тј. спровести мере заштите с циљем умањења нивоа радона у објектима). Мање од 16.8% објеката је са концентрацијама радона између 200 и 400 Bq m^{-3} , што захтева преузимање мера санације. Такве локације се сматрају подручјима склоним радону (*radon prone areas*).

Табела 7.12. *Дескриптивна статистика радона по регионима*

Регион (Број објеката)	Косовско поморавски (11)	Косовски (37)	Косовско митровачки (37)	Пећки (8)	Призренски (20)	Косово и Метохија (113)
Минимум (Bq m ⁻³)	72	33	29	55	27	27
Максимум (Bq m ⁻³)	202	380	810	294	382	810
Медијана (Bq m ⁻³)	111.0	115.0	110.0	136.5	60.5	101
Средња вредност (Bq m ⁻³)	113.0	136.0	146.5	154.0	81.0	128.9
Стандардна девијација (Bq m ⁻³)	36.6	91.9	143.6	87.0	77.7	107.6
Геометријска средина (Bq m ⁻³)	108.6	108.0	114.5	133.5	71.0	99.5
Геометријска стандардна девијација	1.4	2.0	2.3	1.8	2.1	2.0

7.5 Поређење са резултатима мерења радона у другим земљама света

Средња годишња вредност концентрације радона у затвореним просторијама на Косову и Метохији износи 128.9 Bq m^{-3} и варира у опсегу од $27\text{-}810 \text{ Bq m}^{-3}$, док је вредност геометријске стандардне девијације 2.0 (табела 7.12). У табели 7.13. дате су просечне концентрације активности радона у затвореним просторијама у неким земљама света [UNSCLEAR, 2006].

Табела 7.13. Просечне концентрације радона у затвореним просторијама у свету

Држава	Концентрација ^{222}Rn (Bq m^{-3})	Држава	Концентрација ^{222}Rn (Bq m^{-3})
Данска	59	Хрватска	35
Финска	120	Словенија	87
Исланд	10	Швајцарска	75
Литванија	55	Италија	70
Шведска	108	Шпанија	90.4
Белгија	48	САД	46
Немачка	50	Аргентина	35
Ирска	89	Куба	7.7
Чешка	118	Иран	82
Пољска	49	Кувајт	14
Румунија	25	Кина	43.8
Грчка	55	Тајван	10
Мађарска	107	Индонезија	35.1
Црна Гора	184	Кореја	53.4
Албанија	120	Филипини	23

Земље у окружењу: Румунија, Хрватска, Грчка имају знатно ниже концентрације радона у затвореним просторијама, док Мађарска и Албанија имају нешто веће средње вредности (табела 7.13). У БЈР Македонији добијена средња вредност је 105 Bq m^{-3} за 437 мерења [Stojanovska и др, 2011; Stojanovska и др, 2012]; у четири области у Бугарској средња вредност концентрације радона (373 куће) је 158 Bq m^{-3} [Ivanova и др, 2013]. У Црној Гори средња годишња концентрација радона за 434 куће је 105 Bq m^{-3} (опсег 2-2208 Bq m^{-3}) [Vukotic и др, 2008]. У неким руралним деловима Републике Србије средња вредност концентрације радона за 183 мерења је 191 Bq m^{-3} (укључујући Горњу Стублу и Нишку Бању - подручја са повећаним концентрацијама радона) [Zunic и др, 2010b]; у Војводини истраживање је обухватило 968 објеката у руралним срединама, а добијена средња вредност је 144 Bq m^{-3} [Forkapic и др, 2007].

Националним програмима за истраживање нивоа радона у затвореним просторијама који се у свету интензивно спроводе последње две деценије, допуњује се база података која ће послужити за израду глобалне мапе ризика који потиче од радона.

7.6 Поређење са резултатима мерења торона у другим земљама света

Мерења торона заокупљују пажњу научне јавности последњих година из разлога што доза од торона и његових потомака није занемарљива. Мерења су показала да су концентрације торона изузетно варијабилне и зависе од места постављања детектора у просторији. У поређењу са радоном ограничен је број доступних података о нивоима торона у свету.

У овом истраживању добијена средња вредност торона је 155.3 Bq m^{-3} на растојању око 10 cm од зидова. Средња вредност у претходном циклусу мерења торона на Косову и Метохији RADUET детекторима [Milić и др, 2010] износи 85 (опсег 1-635) Bq m^{-3} . У том истраживању детектори су излагани у трајању од 3 месеца на растојању 20-30 cm од грађевинских површина. Торон није детектован у 38 случајева, углавном на локацијама где су измерене високе концентрације радона; средња вредност концентрације радона за 63 мерења износила је 429 Bq m^{-3} . То је знатно више у поређењу са измереном концентрацијом радона (134.5 Bq m^{-3}) RADUET детекторима у овом раду.

У поређењу са земљама у окружењу, средња вредност добијена у БЈР Македонији за 300 мерења је 37 Bq m^{-3} [Stojanovska и др, 2013]. Разлог разлике у концентрацијама је што су RADUET детектори постављани на растојању 50 cm од грађевинских површина у просторијама. У Мађарској RADUET детектори су постављани на растојању 15-20 cm од зидова на 80 мерних места и добијена средња вредност за концентрацију торона износила је 31 (опсег 1-285) Bq m^{-3} [Szeiler и др, 2012]. У ранијим истраживањима торона у Мађарској на растојању 20 cm од зидова резултат за средњу вредност торона био је знатно већи 108 Bq m^{-3} [Kavasi и др, 2007].

Истраживања торона у неким градовима Канаде RADUET детекторима на растојању 50 cm од зидова дала су средње вредности: 56 Bq m^{-3} у 95 просторија [Chen и др, 2008] и 50 Bq m^{-3} у 64 просторије [Chen и др, 2011]. Истраживања у 450 кућа у Кореји (CR-39 детектори на растојању 30 cm од зида) дају средњу вредност торона 40.4 Bq m^{-3} [Kim и др, 2007]. Средња вредност за мерења торона у кинеској провинцији Фуџијан CR-39 RADOPOT детекторима на растојању 50 cm од зида у 60 просторија износила је 36 (опсег 15-83) Bq m^{-3} [Zhuo и др, 2010]. У кинеској провинцији Гансу средња вредност концентрације торона у 102 куће на растојању 5-30 cm од плафона износила је 351 Bq m^{-3} [Yamada и др, 2006], која је 3-4 пута већа од концентрација радона. У Индији су такође, забележене концентрације торона 3-4 пута веће од концентрација радона у подручју са повећаном природном радиоактивношћу [Ramola и др, 2012]. У гранитном региону државе Карнатака (Индија) у 74 мерења спроведена LR115 детекторима [Sannappa и Ningappa, 2014] добијена је средња вредност торона 70.8 Bq m^{-3} (опсег 16-170 Bq m^{-3}), док је измерена средња вредност радона била 105.6 Bq m^{-3} (опсег 18-300 Bq m^{-3}).

8. ПРОЦЕНА ИЗЛОЖЕНОСТИ СТАНОВНИШТВА КОСОВА И МЕТОХИЈЕ ЈОНИЗУЈУЋИМ ИЗВОРИМА ЗРАЧЕЊА

8.1 Процена спољашњег излагања терестријалним радионуклидима

8.1.1 Јачина апсорбоване дозе гама зрачења у ваздуху и годишње ефективне дозе услед излагања радионуклидима

Према формулама (4) и (5) у поглављу 1, а на основу специфичних активности ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K и према формули (8) на основу специфичних активности ^{137}Cs за 74 узорка земљишта на Косову и Метохији израчунате су вредности јачине апсорбованих доза у ваздуху и годишњих ефективних доза услед спољашњег излагања радионуклидима у тлу, и представљене у табели 8.1.

Табела 8.1. Јачине апсорбоване дозе гама зрачења D и годишње ефективне дозе E_E услед излагања ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K ; годишње ефективне дозе E_{Cs} услед излагања ^{137}Cs на 74 локације на Косову и Метохији

Број	Локација	D (nGy h ⁻¹)	E_E (μSv y ⁻¹)	E_{Cs} (μSv y ⁻¹)
1	В.Ропотово	44.3	54.3	10.4
2	Ранилуг 1,2	61.6	75.6	8.5
3	Врбовац	70.3	86.2	9.2
4	Извор	44.8	54.9	5.2
5	Прековце	56.2	68.9	6.7
6	Јасеновик	56.8	69.6	7.9
7	Шилово 1	65.3	80.1	6.3
8	Шилово 2	54.7	67.1	8.1
9	Пасјане 1,2	78.2	95.8	5.5

Број	Локација	D (nGy h ⁻¹)	E_E (μSv y ⁻¹)	E_{Cs} (μSv y ⁻¹)
10	Грачаница 1,2,3	69.4	85.1	11.4
11	Грачаница 4	57.2	70.2	6.0
12	Грачаница 5	68.8	84.4	1.9
13	Грачаница 6	59.9	73.5	3.4
14	Грачаница 7,8	64.0	78.5	9.4
15	Доња Брњица	37.8	46.4	18.9
16	Сушица 1,2,3	104.7	128.4	7.6
17	Бадовац	58.3	71.5	1.8
18	Лапље Село 1	55.4	67.9	5.8
19	Лапље Село 2	54.6	66.8	4.6
20	Преоце	58.3	71.5	1.8
21	Племетина 1,2	48.4	59.4	22.9
22	Бабин Мост 1	61.8	75.8	3.7
23	Бабин Мост 2	42.5	52.1	11.1
24	Бабин Мост 3	69.7	85.5	22.9
25	Милошево	40.5	49.7	15.1
26	Липљан	59.9	73.5	7.1
27	Суви До	55.0	67.5	4.1
28	Д. Гуштерица 1,2	72.0	88.3	2.0
29	Добротин 1,2	61.9	75.9	5.1
30	Добротин 3	47.3	58.0	6.7
31	Добротин 4	79.7	97.7	3.0
32	Добротин 5	70.7	86.8	3.2
33	Радево	46.7	57.3	5.4

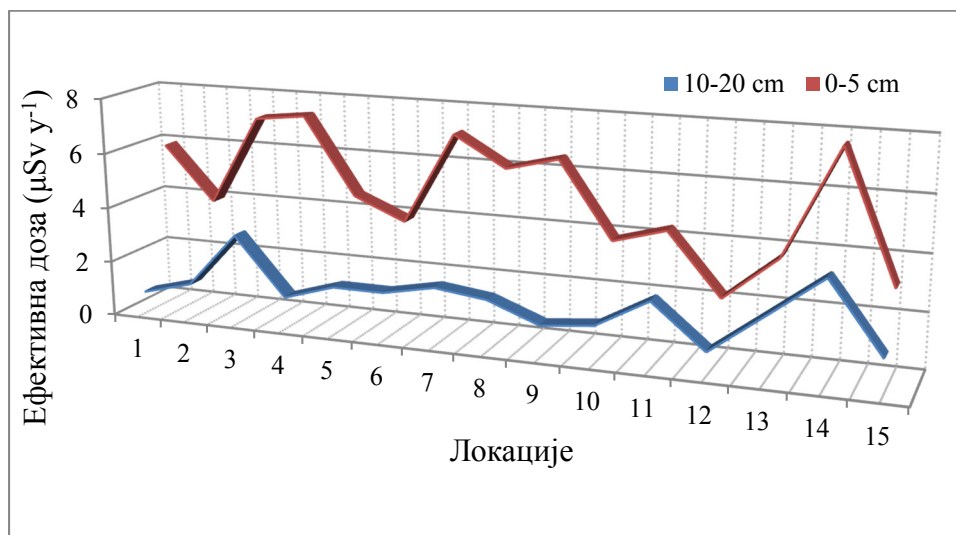
Број	Локација	D (nGy h⁻¹)	E_E (μSv y⁻¹)	E_{Cs} (μSv y⁻¹)
34	Рабовце	71.4	87.5	9.3
35	Доње Битиње ^{1,2}	57.3	70.2	27.8
36	Севце	27.4	33.6	8.1
37	Штрпце	54.0	66.2	17.0
38	Гораждевац 1	58.7	71.9	6.4
39	Гораждевац 2	47.0	57.6	9.9
40	Гораждевац 3	49.4	60.6	7.1
41	Гораждевац 4	53.9	66.1	7.8
42	Гораждевац 5	50.9	62.5	7.2
43	Осојане 1,2,3	55.5	68.0	4.3
44	Јариње	21.4	26.2	5.5
45	Лешак 1	41.4	51.1	3.2
46	Лешак 2	68.6	84.1	9.6
47	Лепосавић 1	55.5	68.1	2.7
48	Лепосавић 2	53.0	64.9	19.1
49	Кутње 1,3	54.9	67.3	13.3
50	Кутње 2	47.2	57.9	7.2
51	Сочаница 1	60.9	74.7	3.8
52	Сочаница 2	61.6	75.5	7.8
53	Житковац 1	47.7	58.5	87.8
54	Житковац 2	69.4	85.1	20.2
55	Јошевик 1	53.9	66.2	1.4
56	Јошевик 2	20.0	24.5	73.4
57	Јошевик 3	27.8	34.1	13.4

Број	Локација	D (nGy h ⁻¹)	E_E (μSv y ⁻¹)	E_{Cs} (μSv y ⁻¹)
58	Жеровница	62.3	76.3	7.3
59	Грабовац 1	149.0	182.7	10.8
60	Грабовац 2	93.4	114.5	13.3
61	Рударе 1	143.7	176.2	7.8
62	Рударе 2	98.4	120.7	7.9
63	Звечан 1	81.3	99.7	12.8
64	Звечан 2	81.0	99.3	5.4
65	Прилужје	43.6	53.5	15.4
66	Гојбуља	83.4	102.3	4.0
67	Брђани 1	64.5	79.1	5.8
68	Брђани 2	108.0	132.5	14.0
69	К. Митровица 1	38.9	47.7	89.5
70	К. Митровица 2	64.2	78.8	1.6
71	К. Митровица 3	68.5	84.0	11.6
72	К. Митровица 4	62.5	76.6	10.9
73	К. Митровица 5	57.3	70.2	5.8
74	К. Митровица 6	63.2	77.5	2.0

У табели 8.2. представљена је дескриптивна статистика за јачину дозе D , ефективне дозе E_E и E_{Cs} услед излагања радионуклидима на 74 локације на Косову и Метохији. Јачина дозе гама зрачења D и ефективне дозе E_E које потичу од природних радионуклида у тлу биће касније дискутоване кроз поређење са резултатима истраживања у свету.

Имајући у виду различите геохемијске процесе који доводе до редистрибуције и локалног концентрисања ^{137}Cs , процењена ефективна доза на појединим локацијама свакако указује на већи радијациони ефекат и ризик по здравље. Иако је ефективна доза услед спољашњег излагања ^{137}Cs на већини локација приближно за ред величине мања од

ефективне дозе од природних радионуклида, на локацијама: Јошевик 2 је три пута већа ($73.4 \mu\text{Sv y}^{-1}$), Косовска Митровица 1 је приближно два пута већа ($89.5 \mu\text{Sv y}^{-1}$) и 1.5 пута је већа на локацији Житковац 1 ($87.8 \mu\text{Sv y}^{-1}$). Средња ефективна доза услед излагања ^{137}Cs износи $11.6 \mu\text{Sv y}^{-1}$ и варира од 1.4 - $89.5 \mu\text{Sv y}^{-1}$. На 15 локација где су узети узорци три слоја земљишта, ефективна доза је рачуната само за слојеве 0-5 cm и 10-20 cm, јер су конверзиони коефицијенти највећи од извора у површинском слоју и постепено опадају са порастом дубине земљишта. Показано је да је конверзиони коефицијент у слоју земљишта од 18-20 cm око 5% конверзионог коефицијента у слоју 0-2 cm [Krstić u Nikezić, 2006]. На дубинама већим од 20 cm, услед атенуације зрачења допринос од цезијума укупној дози од радионуклида из тла практично је занемарљив. Упоређујући добијене резултате на 15 локација за ефективну дозу у слоју од 0-5 cm и укупне израчунате ефективне дозе за два слоја (0-5 и 10-20 cm) види се да допринос дози од цезијума у другом слоју знатно мањи (слика 8.1) и у просеку износи 20.5%.



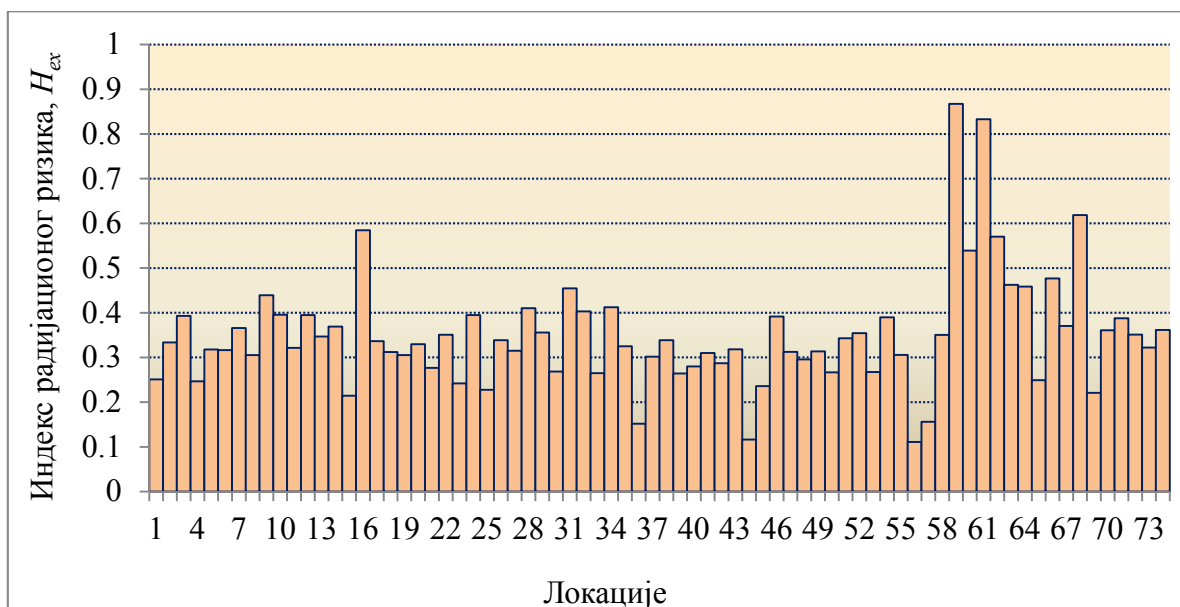
Слика 8.1. Допринос ефективної дози услед излагања ^{137}Cs из два слоја земљишта на 15 локација

8.1.2 Индекс радијационог ризика услед излагања ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K

На основу формуле (6) израчунате су вредности индекса радијационог ризика H_{ex} за 74 локације и представљене на слици 8.2. Средња вредност овог индекса од 0.35 и опсег

вредности од 0.11-0.87 указују да на Косову и Метохији не постоји значајан радијациони ризик услед спољашњег излагања ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K , јер су вредности $H_{ex} < 1$. У табели 8.2. представљена је дескриптивна статистика за индекс радијационог ризика H_{ex} услед излагања радионуклидима на 74 локације на Косову и Метохији.

Слика 8.2. Индекс радијационог ризика H_{ex} услед излагања ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K на 74 локације на Косову и Метохији



Табела 8.2. Дескриптивна статистика за јачину дозе D , ефективне дозе E_E и E_{Cs} и индекс радијационог ризика H_{ex} услед спољашњег излагања радионуклидима на 74 локације на Косову и Метохији

	D (nGy h ⁻¹)	E_E (μSv y ⁻¹)	E_{Cs} (μSv y ⁻¹)	H_{ex}
Минимум	20.0	24.5	1.4	0.11
Максимум	149.0	182.7	89.5	0.87
Медијана	58.3	71.5	7.5	0.33
Средња вредност	61.5	75.4	11.6	0.35
Стандардна девијација	21.7	26.6	16.0	0.13

8.1.3 Поређење са резултатима истраживања у другим земљама у свету

Средња вредност јачине дозе гама зрачења у ваздуху D која потиче од природних радионуклида у тлу на Косову и Метохији (табела 8.2.) је 61.5 nGy h^{-1} , најмања је на локацији Јошевик 2 (20 nGy h^{-1}), а највећа на локацији Грабовац 1 (149 nGy h^{-1}).

У табели 8.3. ради поређења дате су средње вредности јачине дозе и опсег измерених вредности у државама света [UNSC EAR, 2008].

Табела 8.3. Јачина апсорбоване дозе у ваздуху пореклом од терестријалних радионуклида у земљама света [UNSC EAR, 2008]

Држава	$D \text{ (nGy h}^{-1}\text{)}$		Држава	$D \text{ (nGy h}^{-1}\text{)}$	
	Средња вредност	Опсег		Средња вредност	Опсег
Либија	23	18-24	Литванија	62	46-82
Канада	24	11-44	Шведска	64	10-580
Костарика	29.9	5.6-66.6	Белгија	43	13-80
Куба	24	4-162	Ирска	32	2-110
Азербејџан	102	45-160	Италија	74	11-209
Бангладеш	120	44-245	Луксембург	49	14-73
Кина	69.9	12.7-1300	Шпанија	50.4	19-88
Тајван	52	24-68	Швајцарска	42	14-118
Индонезија	40	23.9-40.1	Бугарска	70	48-96
Пакистан	59	1.0-97	Чешка	66	6-245
Иран	71	36-130	Пољска	47.4	18.8-86
Турска	48.8	15-80	Румунија	59	20-125
Данска	35	25-70	Словенија	56	4-147
Финска	71	45-139	Грчка	31	17-88
Исланд	40	4-83	Црна Гора	63	28-185

Средња вредност јачине дозе услед гама зрачења примордијалних радионуклида у свету износи 58 nGy h^{-1} , а вредности варирају у опсегу од $2\text{-}1300 \text{ nGy h}^{-1}$ [UNSCLEAR, 2008]. Ова разлика у вредностима условљена је геолошким и географским специфичностима појединих области. Најмања средња вредност јачине дозе је у Либији (23 nGy h^{-1}), а највећа у Бангладешу (120 nGy h^{-1}). Јачина дозе на Косову и Метохији је најприближнија вредностима измереним у Литванији (62 nGy h^{-1}), и врло слична са вредностима јачине дозе и опсега вредности добијених у окружењу: у Црној Гори ($63 (27.9\text{-}185) \text{ nGy h}^{-1}$) [Antovic *u др*, 2012] и Румунији ($59 (20\text{-}125) \text{ nGy h}^{-1}$). Измерене вредности у Србији варирале су мањем опсегу (од $34.5\text{-}97.6 \text{ nGy h}^{-1}$), али са већом средњом вредношћу 66.8 nGy h^{-1} [Dragović *u др*, 2006].

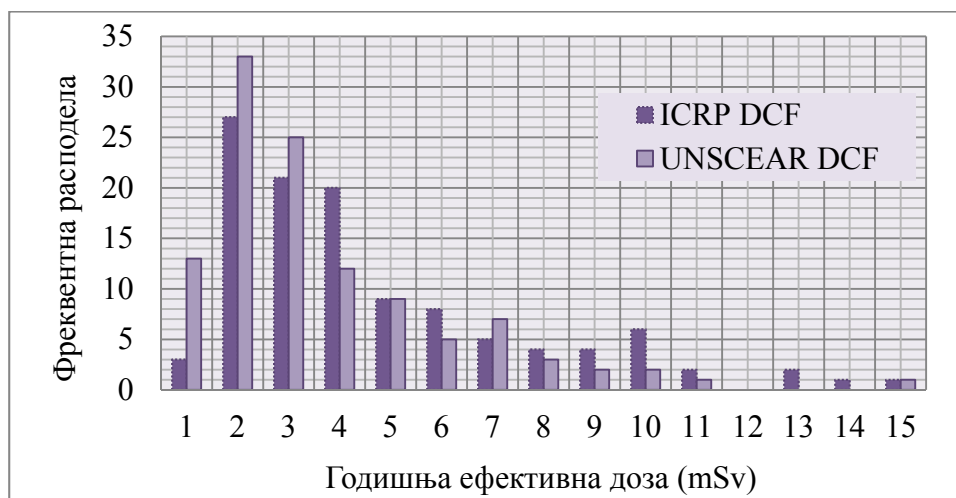
Годишња ефективна доза E_E која потиче од природних радионуклида у тлу на Косову и Метохији варира у опсегу $24.5\text{-}182.7 \text{ } \mu\text{Sv y}^{-1}$ (табела 8.2.) са средњом вредношћу $75.4 \text{ } \mu\text{Sv y}^{-1}$. Ова вредност је мало већа у односу на ефективну дозу од $70 \text{ } \mu\text{Sv y}^{-1}$ (табела 1.3.) коју на годишњем нивоу просечно прима светско становништво спољашњим озрачивањем од природних извора из тла [UNSCLEAR, 2008]. У поређењу са земљама у окружењу сличне вредности имају Мађарска ($74.8 \text{ } \mu\text{Sv y}^{-1}$) [Niki, 1996], Румунија ($72.4 \text{ } \mu\text{Sv y}^{-1}$) [Iacob, 1996] и Црна Гора ($77.25 \text{ } \mu\text{Sv y}^{-1}$) [Antovic *u др*, 2012], док су веће вредности у Србији ($81.9 \text{ } \mu\text{Sv y}^{-1}$) [Dragović *u др*, 2006] и Републици Српској ($84.8 \text{ } \mu\text{Sv y}^{-1}$) [Janković *u др*, 2008].

8.2 Процена унутрашњег излагања радону, торону и њиховим потомцима на Косову и Метохији

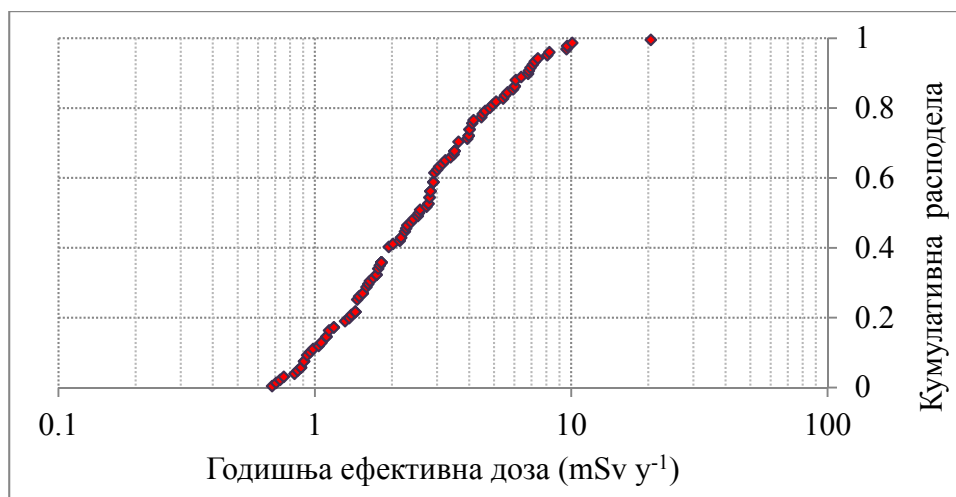
8.2.1 Годишња ефективна доза услед излагања радону

Ефективна доза услед излагања радону и његовим потомцима у 113 објеката на Косову и Метохији рачуната је према формули (22) и на основу просечних годишњих концентрација мерених CR-39 (RSKS) детекторима у 88 објеката (прва и друга серија мерења радона) и CR-39 (Gammadata) детекторима у 25 објеката (трећа серија мерења радона), зато што су концентрације радона мерене у две просторије. Према скоријим препорукама при процени дозе су коришћени дозни конверзиони фактори (DCF): 12 nSv

$(\text{Bq h m}^{-3})^{-1}$ [ICRP 115, 2010] и $9 \text{ nSv } (\text{Bq h m}^{-3})^{-1}$ [UNSCEAR, 2008]. Фреквентна расподела ефективних доза коришћењем оба дозна конверзиона фактора представљена на слици 8.3. Средња вредност ефективне дозе израчуната према средњој годишњој концентрацији радона 128.9 Bq m^{-3} за 113 објеката и ICRP DCF-у износи 4.33 mSv y^{-1} , а према UNSCEAR DCF-у је 3.25 mSv y^{-1} . Кумулативна расподела годишње ефективне дозе услед инхалације радона (рачуната према UNSCEAR DCF-у) у 113 објеката на Косову и Метохији представљена је на слици 8.4.



Слика 8.3. Фреквентна расподела ефективне дозе услед излагања радону у 113 објеката на Косову и Метохији



Слика 8.4. Кумулативна расподела годишње ефективне дозе услед излагања радону у 113 објеката на Косову и Метохији

У поређењу са просечном вредношћу у свету од 1.15 mSv y^{-1} (за ефективну дозу од радона у затвореним просторијама и на отвореном, табела 1.3.) [UNSCEAR, 2008], средња вредност ефективне дозе коју прима становник Косова и Метохије услед инхалације радона и његових потомака је знатно већа, било да је израчуната према једном или другом дозном конверзионом фактору. То је учињено да се нагласи важност при излагању радону у затвореним просторијама, чак и у случају да је прецењена вредност израчунате ефективне дозе. У табели 8.4. дата је дескриптивна статистика за ефективну дозу услед излагања радону у 113 објеката на Косову и Метохији коришћењем оба дозна конверзиона фактора.

За 48 локација у којима су мерени потомци радона, коришћењем равнотежних еквивалентних концентрација радона (EERC) за оба периода и UNSCEAR DCF-а ($9 \text{ nSv (Bq h m}^{-3})^{-1}$) израчуната је средња вредност годишње дозе коју примају укућани услед излагања радону и његовим потомцима и она износи 2.24 mSv . Ако се израчуна годишња доза коришћењем препоручене вредности равнотежног фактора за радон (0.4), истог DCF-а и према измереним годишњим концентрацијама CR-39 RADUET и CR-39 RSKS детекторима на истим локацијама, добијају се средње вредности 3.25 mSv и 3.55 mSv , респективно.

Табела 8.4. *Дескриптивна статистика за ефективну дозу услед излагања радону у 113 објеката*

Годишња ефективна доза (mSv)	ICRP (DCF)	UNSCEAR (DCF)
Минимум	0.90	0.68
Максимум	27.22	20.41
Медијана	3.39	2.54
Средња вредност	4.33	3.25
Стандардна девијација	3.61	2.71
Геометријска средина	3.34	2.51
Геометријска стандардна девијација*	2.01	2.01

*-бездимензионална величина

Велика разлика у процени ефективне дозе услед излагања радону и потомцима дешава се како због претпоставке истог фактора равнотеже, истог дозног конверзионог фактора, тако и због разлике у калибрацији различитих детектора (ово ће бити дискутовано у следећем поглављу).

Фактор равнотеже није константан, већ варијабилан параметар, на чију вредност примарно утичу влажност ваздуха, концентрација аеросола и вентилација у затвореним просторијама [Kavasi *u др*, 2011]. Главни параметри који утичу на дозни конверзиони фактор су: однос припојене и слободне фракције радонових краткоживећих потомака и расподела честица аеросола по величини [Marsh *u Birchall*, 2000].

С друге стране, на дозни конверзиони фактор утиче низ параметара: старост особа, ниво физичке активности, пол, квалитет ваздуха, итд. Рачунање конверзионог коефицијента који повезује укупно излагање појединца радоновим потомцима и ефективне дозе коју прими тај појединац је предмет истраживања задњих 50 година. Постоје два приступа овом проблему. Први је епидемиолошки и заснива се на епидемиологији канцера плућа код рудара у уранским рудницима, код којих је евидентирано повећање ове болести. Овај приступ је довео до вредности од 5 mSv/WLM. Други приступ је дозиметријски. Он подразумева дозиметријски модел људских плућа који се развијао током 1980-тих и 1990-тих година прошлог века [ICRP 66, 1994]. На основу последњег модела, направљени су компјутерски програми: LUDEP (Lung Dose Evaluation Program) и RADEP (Radon Dose Evaluation Program) који узимају у обзир горе поменуте параметре и дају вредност за дозни конверзиони коефицијент 15 mSv/WLM. Очита је велика разлика између ових вредности. Ова разлика је у дужем временском интервалу представљала значајан научни проблем. На самом крају ICRP66 публикације стоји напомена да се она може користити за поређење озрачивања у разним ирадијационим ситуацијама.

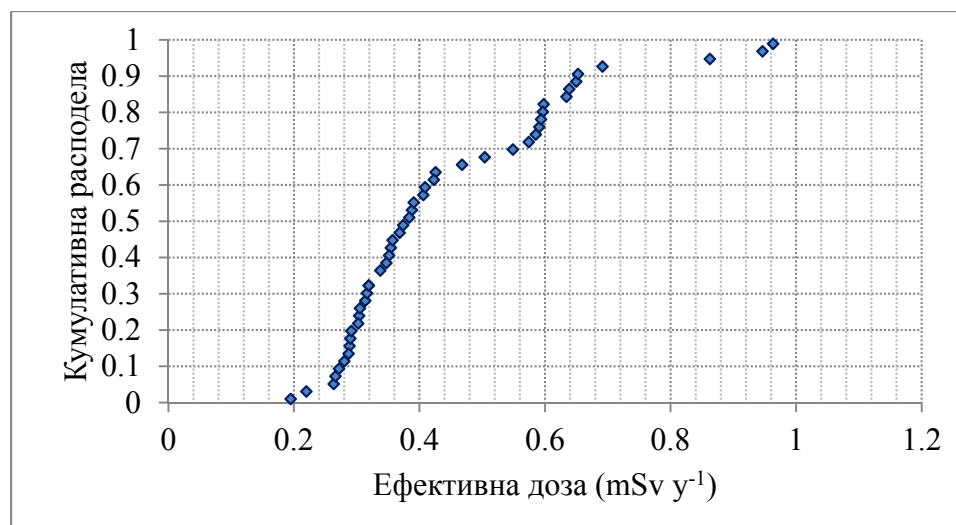
У табели 8.5. представљене су вредности дозних конверзионих фактора, DCF у одговарајућим јединицама препоручене ICRP и UNSCEAR публикацијама.

Табела 8.5. Вредности дозних конверзионних фактора DCF (у одговарајућим јединицама) препоручене ICRP и UNSCEAR публикацијама

	DCF (nSv (Bq h m ⁻³) ⁻¹)	DCF (mSv WLM ⁻¹)
ICRP 66, 1994; UNSCEAR, 2006	8	5
UNSCEAR, 2008	9	5.67
ICRP 115, 2010	12	7.56
ICRP 66, 1994	23.8	15

8.2.2 Годишња ефективна доза услед излагања торону

Ефективна доза услед излагања торону у 48 објеката на Косову и Метохији рачуната је према формули (23) и на основу средњих равнотежних еквивалентних концентрација торона (ЕЕТС) мерених LR115 (DTPS/DRPS) детекторима у оба периода. Емпиријска расподела годишње ефективне дозе услед излагања торону у 48 објеката на Косову и Метохији представљена је на слици 8.5.



Слика 8.5. Кумулативна расподела годишње ефективне дозе услед излагања торону у 48 објеката на Косову и Метохији

Вредност годишње ефективне дозе варира од 0.19-0.96 mSv, са средњом вредношћу 0.44 mSv. У поређењу са просечном вредношћу у свету од 0.10 mSv y⁻¹ (табела 1.3.) [UNSCEAR, 2008], средња вредност ефективне дозе коју прима становник Косова и Метохије инхалацијом торона и његових потомака је већа више од 4 пута.

За исте објекте средња вредност годишње дозе услед излагања радону и његовим потомцима износи 2.24 mSv (дата је у претходној секцији). Допринос дозе од торона и потомака укупној ефективној дози (од инхалације радона и торона) износи 16.4%, што се слаже са вредностима у литератури (10-20%) [Nambi, 1994; Dwivedi и др, 2001].

У традиционалним кинеским кућама од глине и блата допринос укупној дози од торона је знатно већи и варира од 12.9-56.6% [Shang и др, 2005]. Процењени допринос торона и његових потомака укупној дози у истраживању 200 урбаних и руралних објеката у Индији варира од 24-45% [Khokhar и др, 2008]. У Ирској допринос торонових потомака укупној ефективној дози у 205 стамбених објеката износи 9% [McLaughlin, 2010]. Процењено је да торон доприноси 8% од радијационе дозе услед излагања изотопима радона у затвореним просторијама у неким градовима Канаде [Chen и др, 2011].

9. КОРЕЛАЦИОНА АНАЛИЗА

Корелациона анализа даје степен зависности између испитиваних променљивих. Информацију о јачини повезаности две променљиве даје Пирсонов коефицијент, r (коефицијент прости линеарне корелације). Међутим, Пирсонов коефицијент не показује колико је зависна променљива условљена вредностима независно променљиве. То објашњава коефицијент детерминације (други степен Пирсоновог коефицијента, R^2).

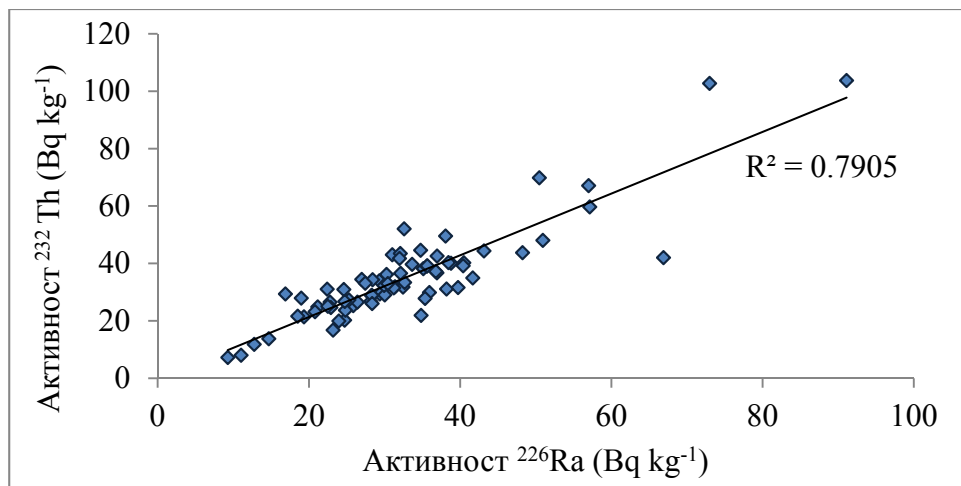
Један од циљева у овој дисертацији и тема радова [*Gulan и др, 2012; Gulan и др, 2013a; Gulan и др, 2013b*] биле су: истражити корелације између радионуклида, корелације између изотопа радона, корелације између радионуклида и изотопа радона, као и корелације између резултата мерења различитим детекторима.

9.1 Корелација између радионуклида

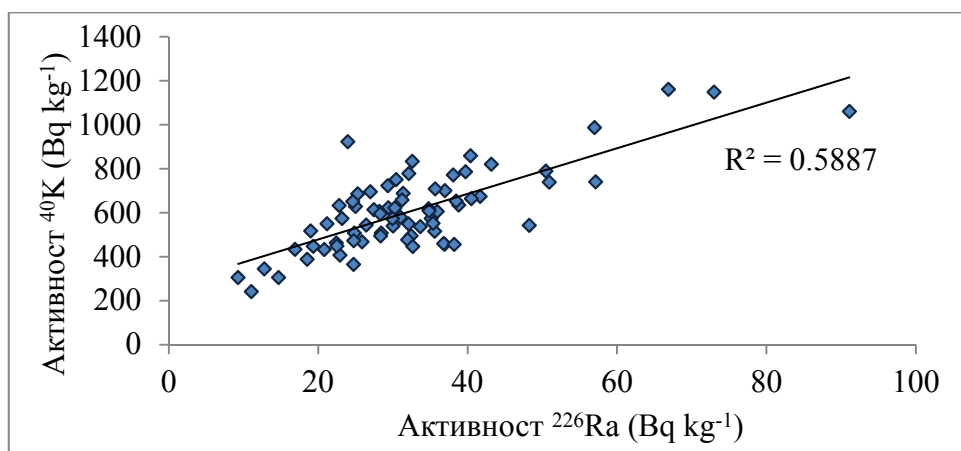
Пирсонови коефицијенти корелације за радионуклиде представљени су у табели 9.1. На сликама 9.1. - 9.3. представљене су корелације између специфичних активности природних радионуклида. Јака корелација и линеарна зависност између природних радионуклида говори о њиховој геолошкој и геохемијској повезаности. Она указује да антропогеним активностима није дошло до нарушавања равнотеже међу њима, тј. повећања концентрације активности између природних радионуклида, једног у односу на други. Евидентне занемарљиве корелације радионуклида и ^{137}Cs су представљене на сликама 9.4. - 9.6. Очекивано, код ^{137}Cs поред разлога краћег времена живота, и процеси спирања и премештања утицали су на непостојање корелације са ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K .

Табела 9.1. Пирсонови коефицијенти корелације за радионуклиде

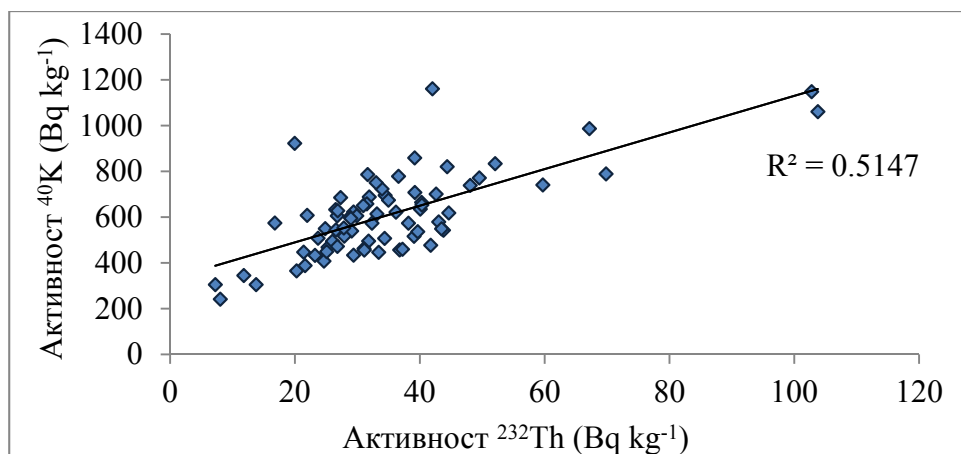
Радионуклид	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{137}Cs
^{226}Ra	1	0.889	0.767	-0.209
^{232}Th		1	0.717	-0.196
^{40}K			1	-0.236
^{137}Cs				1



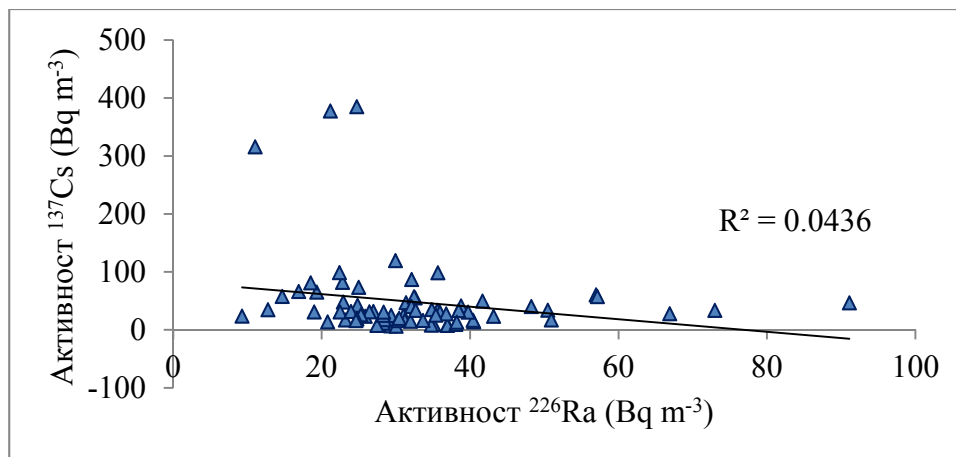
Слика 9.1. Корелација између измерених активности ^{226}Ra и ^{232}Th у 74 узорка тла



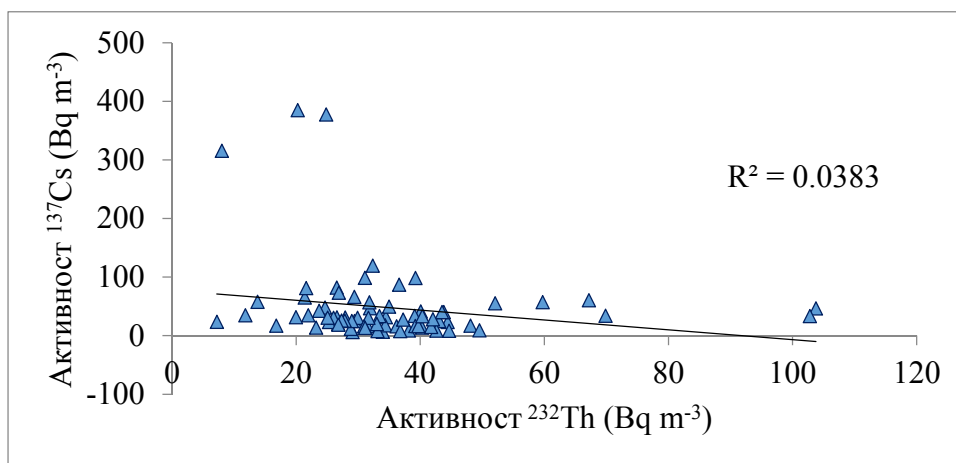
Слика 9.2. Корелација између измерених активности ^{226}Ra и ^{40}K у 74 узорка тла



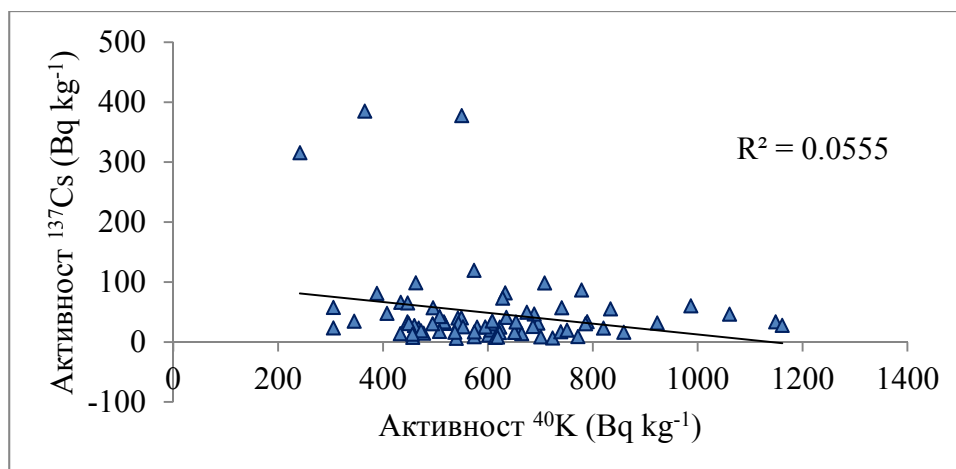
Слика 9.3. Корелација између измерених активности ^{232}Th и ^{40}K у 74 узорка тла



Слика 9.4. Корелација између измерених активности ^{226}Ra и ^{137}Cs у 74 узорка тла



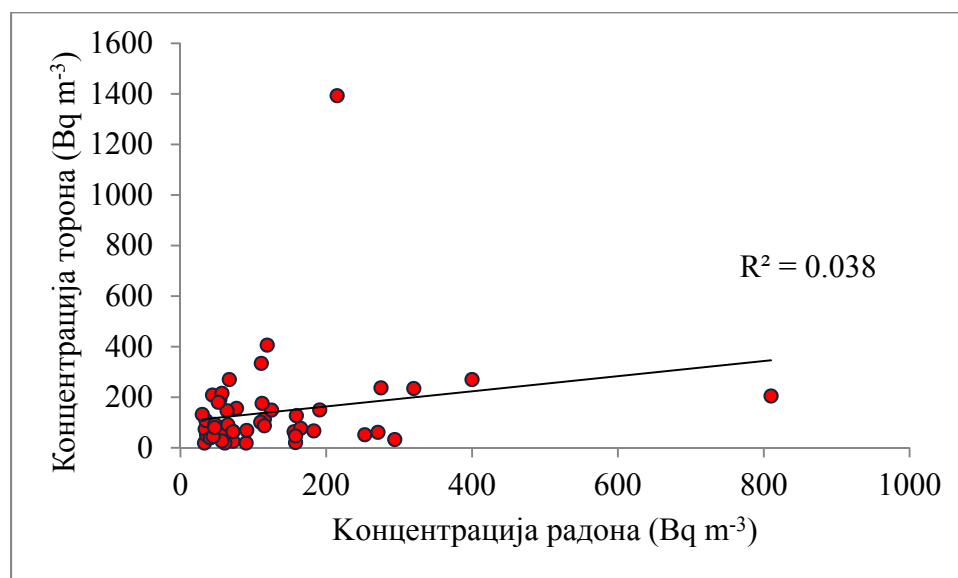
Слика 9.5. Корелација између измерених активности ^{232}Th и ^{137}Cs у 74 узорка тла



Слика 9.6. Корелација између измерених активности ^{40}K и ^{137}Cs у 74 узорка тла

9.2 Корелација између изотопа радона

На основу измерених концентрација показано је да нема корелације ($R^2=0.032$) између радона и торона (слика 9.7.). То значи да се концентрације и присуство торона не могу одредити (детерминисати) концентрацијом радона, јер су оне условљене неким другим факторима. Разлог јесте гасовита природа и чињеница да торон кратко живи, па не стиже да се равномерно распореди по просторији. Док је радон релативно добро распоређен, торон постоји само у близини површина зидова и подова просторије. У већини случајева, у центру просторије или на растојању већем од 1 m од грађевинских површина које садрже ^{224}Ra , концентрација торона је иста као у спољашњим условима [UNSCLEAR, 2006]. Само у просторијама где се користи вентилатор торон ће бити добро распоређен и нема великих варијација у концентрацији [Ma и др, 1997; UNSCEAR, 2006].



Слика 9.7. Корелација између концентрација ^{222}Rn и ^{220}Rn у затвореним просторијама

На међународној конференцији о торону у животној средини (одржаној у Јапану 2010.године) учесници су известили да нивои радона и торона не показују било какву значајну корелацију [Akiba и др, 2010]. У истраживању у Канади нема јасне асоцијације између измерених концентрација радона и торона у 110 кућа [Chen и др, 2008]. Статистичка анализа дала је корелациони коефицијент 0.04 између концентрација радона и торона у кинеској провинцији Гансу [Yamada и др, 2006]. У другом истраживању у традиционалним

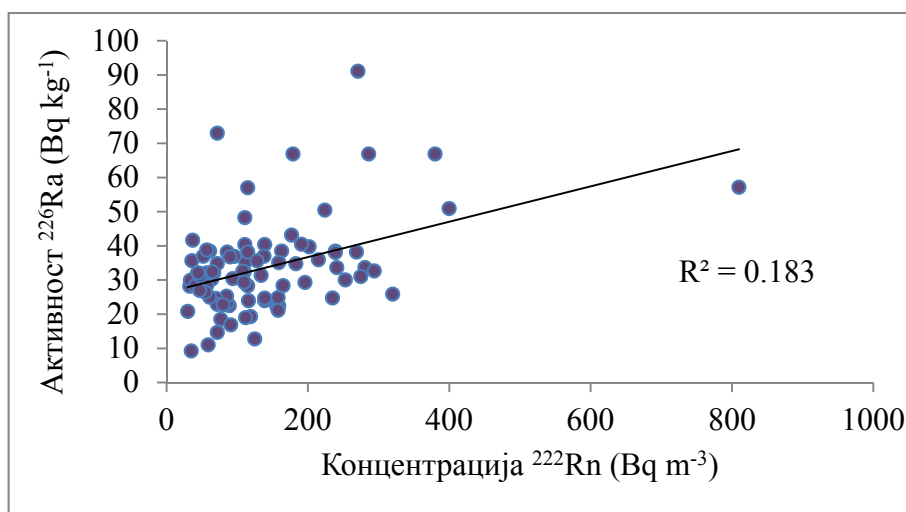
кинеским кућама (саграђеним од глине) корелација између концентрација радона и торона је 0.28 [Shang *и др*, 2005]. Међутим, скорија студија у Индији показала је јачу корелацију између изотопа радона у објектима саграђеним од блата ($R^2=0.84$) у поређењу са објектима од бетона и цигле ($R^2=0.51$) [Kumar *и Chauhan*, 2014]. Разлог лежи у чињеници да је порозност зидова од блата већа него истих од бетона.

9.3 Корелација између радионуклида и радона

Пирсонови коефицијенти корелације за радионуклиде и радон (^{222}Rn и ^{220}Rn) представљени су у табели 9.2., (према подацима за 49 објеката). Осим слабих позитивних корелација између радијума ^{226}Ra (слика 9.8.) и торијума ^{232}Th са изотопом радона ^{222}Rn између осталих променљивих не постоји корелација, тј. постоји занемарљива корелација.

Табела 9.2. Пирсонови коефицијенти корелације за радионуклиде и радон

	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{137}Cs
^{222}Rn	0.455	0.406	0.281	-0.01
^{220}Rn	0.072	0.004	0.003	-0.124



Слика 9.8. Корелација између концентрација ^{222}Rn у затвореним просторијама и специфичне активности ^{226}Ra у тлу у непосредној близини 88 објеката

Истраживање концентрације радона у затвореним просторијама и радионуклида у тлу у близини 97 објеката спроведено је у Трабзону (Турска) [Kurnaz *u др*, 2011]. Пирсонов коефицијент корелације између ^{226}Ra и ^{222}Rn износи 0.682. Корелације нема између ^{222}Rn и ^{232}Th (0.134) и ^{222}Rn и ^{40}K (0.137). Интересантно запажање је да су, поред добре позитивне корелације између ^{226}Ra и ^{222}Rn , корелације између осталих природних радионуклида слабе, нпр. Пирсонов коефицијент корелације између ^{226}Ra и ^{232}Th износи тек 0.412.

У централном делу Индије [Kher *u др*, 2008] у истраживању радона и торона у затвореним просторијама са садржајем урана и торијума у тлу није утврђена позитивна корелација. Изведен је закључак да дифузија радона из тла у затворене просторије великим делом зависи од подног материјала у просторији. Супротно овим, у другој области у Индији (Гархвал Хималаји) статистичка интерпретација показује јаку корелацију између радона у затвореним просторијама и јачине ексхалације, што указује на локални допринос земљишта [Gusain *u др*, 2009]. Истраживање у Гиресуну (Турска) је обухватило мерења радона у 71-ном објекту и одређивање садржаја радионуклида у тлу (слој 0-15 cm) у њиховој непосредној близини; закључено је да постоји позитивна корелација ($R^2=0.54$), али средња вредност радона показује знатне разлике у односу на садржај радијума. Концентрације радона су знатно веће у објектима саграђеним на земљишту са већим садржајем радијума, него где је садржај мањи [Celik *u др*, 2008]. У истраживању спроведеном у Норвешкој [Sundal *u др*, 2004] утврђене корелације између радона у затвореним просторијама и геологије (садржаја радијума и пермеабилности земљишта у околини објекта) указују да су геолошки подаци корисни у идентификацији подручја склоним радону, иако не могу обезбедити процену нивоа радона у објектима.

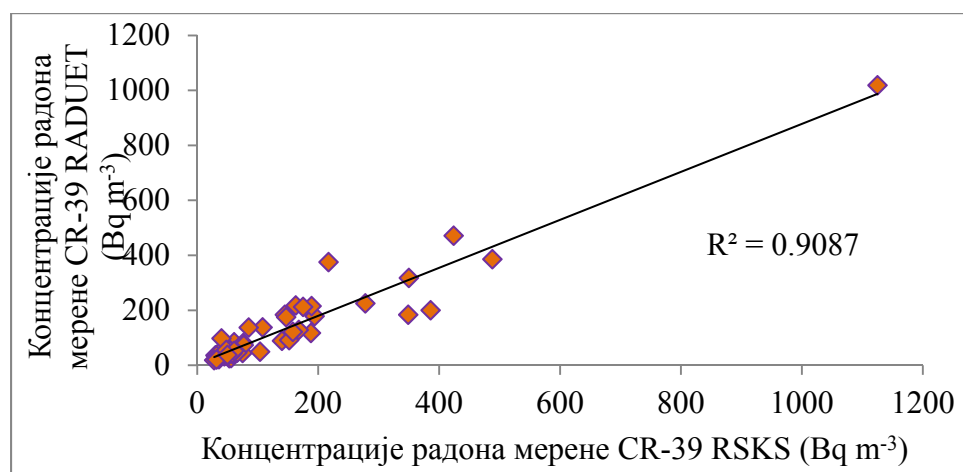
Уз геологију, на ниво радона у затвореним просторијама утичу локални варијабилни фактори: као што су климатски услови, дизајн и конструкција објекта, услови коришћења, итд.

9.4 Корелација између измерених концентрација различитим врстама детектора

У табели 9.3. представљени су Пирсонови коефицијенти корелације за измерене концентрације различитим врстама детектора. Запажа се изузетно јака позитивна корелација између концентрација мерених CR-39 (RSKS) детекторима од истих мерених CR-39 (RADUET) детекторима и тај пример је представљен на слици 9.9. Корелација показује да су ова мерења компарабилна, јер детектори мере приближно еквивалентно у истим условима (иста просторија).

Табела 9.3. Пирсонови коефицијенти корелације за концентрације радона, торона и њихових потомака измерене различитим врстама детектора

Детектор	CR-39 (RSKS)	CR-39 (RADUET)		LR115 (DTPS/DRPS)	
	Радон	²²² Rn	²²⁰ Rn	EERC	EETC
Радон	1	0.953	0.175	0.286	0.232
²²² Rn		1	0.179	0.326	0.310
²²⁰ Rn			1	-0.067	0.165
EERC				1	0.763
EETC					1



Слика 9.9. Корелација између концентрација радона мерених CR-39 (RSKS) и CR-39 (RADUET) детекторима

Корелација постоји, али се апсолутне вредности доста разликују (за око 30 %), што значи да један или оба детектора не дају добре резултате. Пропорционалност разлике у концентрацијама је условљена различитим факторима осетљивости за детекторе, тј. „тачношћу“ одређених калибрационих коефицијената. Калибрациони коефицијент за CR-39 (RSKS) детекторе је 1.093 ± 0.03 [трагова cm^{-2} ($\text{kBq m}^{-3} \text{ h}^{-1}$)⁻¹], док за CR-39 (RADUET) детекторе радона износи 1.76 ± 0.06 [трагова cm^{-2} ($\text{kBq m}^{-3} \text{ h}^{-1}$)⁻¹]. Други разлог неслагања измерених концентрација лежи у чињеници да су детектори постављани на извесном међусобном растојању. Уз то, један од разлога може бити непозната осетљивост CR-39 (RSKS) детектора на торон. Ако се детектори мало осетљиви на торон постављају у близини зидова контаминација тороном може бити велика [Tokonami, 2010]. То значи да концентрација радона при читавању детектора контаминираних тороном може бити прецењена [Tokonami и др, 2001].

Из табеле 9.3. евидентно је постојање слабе или занемарљиве корелације међу осталим паровима променљивих. Иако су радијум и торијум у тлу корелисани (табела 9.1.), корелације нема између радона и торона. Међутим, постоји слаба позитивна корелација радона са EERC (0.286 и 0.326) и радона са EETC (0.232 и 0.310), у зависности од врсте детектора за радон. На измерене концентрације утичу услови у затвореним просторијама и други фактори који нису у вези са извором радона (вентилација, загревање, концентрација аеросола, влажност, температура, затим различита осетљивост и праг детекције за α -честице CR-39 и LR115 детектора у условима излагања, итд).

У анализи корелација концентрације радона, торона и продуката распада торона заснованој на шест истраживања у Кини, Ирској и Кореји [Janik и др, 2013], изведени су закључци да мерене концентрације не зависе једне од других: очекивано, између радона и торона постоји слаба корелација ($R^2 < 0.2$), док је занемарљива између радона и потомака торона. У кинеској провинцији Гансу концентрација потомака торона је мерена истовремено са концентрацијама радона и торона; углавном нема корелације ма које две концентрације да су изабране [Tokonami, 2010]. Оне су толико независне да је тешко проценити једну концентрацију од остале две. У другом истраживању у кућама саграђеним од леса са високим садржајем ²³²Th корелација између концентрације торона и EETC је врло слаба (0.16), као и корелација између радона и EETC (0.26) [Yamada и др, 2006];

упоређивањем са табелом 9.3. евидентне су приближно исте вредности корелационих коефицијената.

У случају LR115 детектора (табела 9.3) извесна је јака корелација између мерених равнотежних еквивалентних концентрација радона и торона (EERC и EETC). Ова корелација је помало изненађујућа с обзиром да је нема код родитељских нуклида радона и торона. Иако услови у затвореним просторијама (јачина вентилације и концентрација аеросола) имају исти утицај на депозицију потомака радона и торона, они не утичу на процес стварања торона. Концентрације торона и његових потомака зависе и од врсте пода и грађевинског материјала (порозности) у просторији. Мерења потомака не зависе много од брзине депозиције, чак ни од начина постављања детектора (вертикална или хоризонтална позиција) [Mishra *u др*, 2010].

Потомке радона и торона је тешко мерити, упркос покушајима да се развију различите методе. Ограничења су везана за бројне потешкоће услед таложења и нестајања потомака у процесу распада. Даља истраживања усмерена су на разумевање проблема везаних за извор и понашање торона, као и ефекте излагања торону и његовим потомцима.

10. ПРЕГЛЕД РАДОВА ПУБЛИКОВАНИХ ИЗ ОВЕ ДИСЕРТАЦИЈЕ

Израда дисертације уследила је према објављеним радовима који су поменути кроз описано истраживање. С обзиром да су досадашње излагање и дискусија конципирани на начин да представе целокупно истраживање радионуклида у тлу и радона у затвореним просторијама на Косову и Метохији, у даљем тексту биће укратко описани радови проистекли из тог истраживања. У радовима су садржани поједини резултати истраживања који су груписани према постављеним циљевима. Радови су дати као прилог на крају текста.

У раду [*Gulan и др, 2012*] постављена тема се односила на искуство у мерењима са траг детекторима у затвореним просторијама на Косову и Метохији. Пред читаоце је постављена и донекле објашњена циљна проблематика мерења са две врсте детектора истовремено, у истим условима. Једном врстом детектора (RADUET) мерене су концентрације радона и торона, а другом (DTPS/DRPS) равнотежне еквивалентне концентрације радона и торона (EETC и EERC). На тај начин су одређене средње вредности равнотежних фактора за радон (0.50) и торон (0.037) у затвореним просторијама на Косову и Метохији. Измерене релативно веће концентрације торона у поређењу са концентрацијама радона у 48 објеката, могу указивати на повишен садржај торијума у грађевинском материјалу. Израчунат однос EETC/EERC износи 0.07 и слаже се са опсегом вредности у свету. Према средњим вредностима EETC и EERC израчунате су годишње ефективне дозе услед излагања торону и радону у затвореним просторијама и оне су знатно веће у поређењу са светским просеком. Статистичком анализом добијених резултата утврђена је значајна корелација између концентрације радона и EERC, као и између EERC и EETC. Пирсонов коефицијент показао је да нема корелације између концентрација радона и торона, као и између концентрације торона и EETC. Закључено је да нема просторне тенденције у расподели потомака торона и нема приметне компоненте геогеног торона, која би условно требала да зависи од геогеног потенцијала торијума, као у случају радона и радијума. У раду су наглашена и дискутована отворена питања која се односе на протоколе мерења, као и на обезбеђење квалитета мерења торона и уопште потомака радона и торона. Посебан проблем представљају фактори осетљивости одређених детектора у зависности од углавном непознатих параметара условљених физичким условима у атмосфери затворених

просторија (вентилација и концентрација аеросола). Они значајно утичу на непоузданост (грешку) и варијабилност резултата мерења.

У раду [*Gulan и др, 2013a*] је наглашена висока годишња концентрација радона у затвореним просторијама Косовскопоморавског и Косовског региона и метохијског села Осојане (Пећки регион). Примећено је да се не појављује значајна системска разлика у концентрацији радона мереним у две просторије. Процењена средња годишња ефективна доза услед излагања радону и његовим краткоживећим потомцима износи 5.5 mSv. Истражена корелација између радона у затвореним просторијама и радијума у тлу у непосредној близини објеката је слаба и износи $R^2 = 0.26$. То потврђује да су високе концентрације радона пре условљене другим параметрима него садржајем радијума у тлу. Представљени су резултати природне радиоактивности у земљишту са три различите дубине (0-5 cm, 10-20 cm и 20-40 cm). Измерене вредности специфичних активности за ^{226}Ra и ^{232}Th су ниже од светског просека, а вредности ^{40}K су веће. Оцењено је да постоји незнатна разлика у промени концентрације радионуклида по дубини. Процењена је годишња ефективна доза услед терестријалног излагања, чији је допринос у поређењу са ефективном дозом од радона занемарљив.

У раду [*Gulan и др, 2013b*] истраживано је подручје Северне Косовске Митровице и околине на 16 локација у циљу установљавања нивоа природне и вештачке радиоактивности. Истражене су корелације између радионуклида и тешких метала који представљају главне полутанте у некада најзначајнијем рударском и индустријском подручју Европе. Изведен је закључак да у Косовској Митровици и околини постоји неуниформна расподела радионуклида и тешких метала у тлу. Нема значајних корелација између радионуклида и физичкохемијских карактеристика земљишта. Показано је да постоји јака (директна) корелација између природних радионуклида и средња негативна корелација са вештачким радионуклидом ^{137}Cs . Утврђено је, уз детаљно разматрање геотектонских карактеристика подручја, да на извесним локацијама постоје повећани нивои природне радиоактивности који су вероватно последица постојања сеизмичких и раседних зона у близини. Израчуната ефективна доза за становништво је већа за половину од просечне светске вредности за излагање природним терестријалним изворима зрачења. Процењени ризици услед спољашњег излагања су испод нивоа значајности. Због недостатка референтних података није се могло закључити да ли је висок ниво радионуклида у тлу у

Косовској Митровици и околини последица антропогених активности или природног геолошког склопа подручја.

У раду [Milić *и др*, 2013] започета је прва фаза израде мапе ризика од радона на основу измерених концентрација радона у затвореним просторијама у периоду од 1995-2011. године. Мапом је покривено око 21% територије Косова и Метохије. Нивои радона су на мапи представљени преко средње вредности у мрежи ћелија величине 10 km x 10 km. Резултати 153 мерења концентрације радона су на основу GPS координата локација имплементирани у 23 од 132 ћелије. Средња вредност по ћелијама је 202 Bq m⁻³. Мапа приказује регионе са мањим и већим концентрацијама радона, узимајући у разматрање геолошке карактеристике посматраног подручја. Више од 59 % података има средње вредности концентрације радона по ћелији веће од 100 Bq m⁻³, док 12% превазилази вредности од 400 Bq m⁻³. Израдом мапе ризика од радона за Косово и Метохију дат је допринос Европском атласу мапа радона.

ЗАКЉУЧАК

Кратак преглед дисертације

У овој докторској дисертацији су гамаспектрометријском методом одређене активности природних радионуклида ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и вештачког радионуклида ^{137}Cs у 104 узорка тла са укупно 74 локације (четири региона) на Косову и Метохији прикупљених у периоду април-мај 2011. године. На основу активности радионуклида прорачуната је јачина дозе гама зрачења коју прима становништво услед спољашњег излагања изворима јонизујућих зрачења из тла. Процењене су годишње ефективне дозе од природних радионуклида и ^{137}Cs , и израчунат је индекс радијационог ризика услед спољашњег излагања. Испитано је постојање корелације између радионуклида. Добијене вредности су упоређене са сличним истраживањима у свету.

У дисертацији су представљени и резултати годишњих мерења радона, торона и њихових потомака у затвореним просторијама пасивном интеграционом методом помоћу траг детектора (CR-39 и LR115) на 113 локација у пет региона на Косову и Метохији у периоду децембар 2009 – април 2012. године. На основу просечне концентрације радона из две просторије у објектима израчуната је средња годишња ефективна доза услед излагања радону и његовим потомцима. Дискутоване су разлике у концентрацијама радона услед различитих грађевинских материјала коришћених за изградњу објеката и периода мерења. Такође су дискутоване високе концентрације радона на одређеним локацијама као последица високог садржаја радионуклида у тлу. На основу директно мерених равнотежних еквивалентних концентрација радона (EERC) и торона (EETC) израчуната је годишња ефективна доза услед излагања радону, торону и њиховим потомцима на 48 локација. Вредности су упоређене са сличним мерењима радона, торона и њихових потомака изведеним у свету. Истовремено постављање три различита детектора у истој просторији омогућило је одређивање равнотежних фактора за радон и торон на основу измерених равнотежних еквивалентних концентрација радона (EERC) и торона (EETC) и измерених концентрација радона и торона. Анализиране су корелације између мерених концентрација различитим детекторима.

Средње вредности специфичних активности (опсег) ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K и ^{137}Cs су: 33 (9.3-91.1), 35 (7.2-103.8), 608 (242-1161) и 48 (6.2-385.0) Bq kg^{-1} , респективно за 74 локације на Косову и Метохији. Карактеристичан геолошки склоп подручја је узрок великог опсега вредности и неравномерне расподеле радионуклида на Косову и Метохији. Измерена средња вредност за ^{226}Ra је 3% већа од светског просека, за ^{232}Th је 22% мања, а за ^{40}K је чак 45% већа. Средња вредност ^{226}Ra је скоро иста као у Србији, Румунији и Мађарској. Средња специфична активност ^{232}Th у земљишту иста је као у Словенији, већа је од вредности у Мађарској и Бугарској, а мало мања од вредности у осталом делу Србије и Румунији. Вредност средње специфичне активности ^{40}K у тлу на Косову и Метохији већа је од свих у региону и најсличнија је вредности у Луксембургу. На основу представљених података може се закључити да су средње специфичне активности и опсег примордијалних радионуклида ^{226}Ra и ^{232}Th у тлу слични са вредностима у околним земљама, осим нешто већих вредности за ^{40}K . То говори о сличној геолошкој и педолошкој структури региона. Средња вредност специфичне активности ^{137}Cs у тлу је четири пута већа него у Војводини, због алувијалног земљишта у северној покрајини и веће надморске висине на Косову и Метохији (>500 m). Изразита варијабилност у вредностима специфичних активности ^{137}Cs говори да је и даље присутан у земљиштима у региону у већој концентрацији захваљујући нехомогеној контаминацији и депозицији након акцидента у Чернобиљу и ранијих нуклеарних проба.

Средња годишња вредност концентрације радона у затвореним просторијама на Косову и Метохији износи 129 Bq m^{-3} и варира у опсегу од $27\text{-}810 \text{ Bq m}^{-3}$. Расподела резултата по регионима је логнормална. У земљама у окружењу средње вредности су нешто ниже у Црној Гори и БЈР Македонији, а веће су у Бугарској. Незнатно веће концентрације торона у једном од периода указују да сезонске промене немају утицај на варијације у концентрацијама торона. Средње годишње вредности концентрације торона (155.3 Bq m^{-3}) веће од вредности радона (134.5 Bq m^{-3}) измерених RADUET детекторима за 49 просторија. Високе концентрације торона пријављене су у неким регионима Европе и Азије. Удаљеност детектора од зидова и подова у просторији је од примарног утицаја на измерене концентрације торона, због његове неуниформне расподеле у просторији. Равнотежни фактори за радон и торон су прелиминарно одређени узимајући у обзир годишње вредности за EERC и EETC, и годишње концентрације радона и торона измерених CR-39 (RADUET)

детекторима за 48 локација и износе 0.47 и 0.021, респективно. Просечне вредности равнотежних фактора у свету за радон и торон 0.4 и 0.03, респективно, добро се слажу са добијеним вредностима.

Средња вредност јачине дозе гама зрачења у ваздуху која потиче од природних радионуклида у тлу са 74 локације на Косову и Метохији износи 61.5 (20-149) nGy h⁻¹ и врло је слична добијеним вредностима у окружењу: у Црној Гори и Румунији. Годишња ефективна доза која потиче од природних радионуклида у тлу на Косову и Метохији варира у опсегу 24.5-182.7 μSv y⁻¹ са средњом вредношћу 75.4 μSv y⁻¹. Сличне вредности у окружењу имају Мађарска, Румунија и Црна Гора, док су веће вредности у Србији и Републици Српској. Средња ефективна доза услед излагања ¹³⁷Cs износи 11.6 μSv y⁻¹ и варира од 1.4-89.5 μSv y⁻¹. Израчуната је средња вредност индекса радијационог ризика услед излагања радионуклидима на 74 локације на Косову и Метохији и она износи 0.35 (опсег 0.11-0.87). Ове вредности указују да на Косову и Метохији не постоји значајан радијациони ризик услед излагања ²²⁶Ra, ²³²Th и ⁴⁰K и земљишту.

Средња вредност ефективне дозе услед инхалације радона и његових потомака у 113 објеката на Косову и Метохији рачуната је на основу просечних концентрација у две просторије и дозног конверзионог фактора 9 nSv (Bq h m⁻³)⁻¹ (према UNSCEAR-у) износи 3.25 mSv y⁻¹ и варира од 0.68-20.41 mSv y⁻¹. Средња вредност ефективне дозе услед инхалирања радона и његових потомака је знатно већа на Косову и Метохији у поређењу са светским просеком (1.15 mSv y⁻¹). Годишња ефективна доза услед инхалације торона и његових потомака у 48 објеката варира од 0.19-0.96 mSv, са средњом вредношћу 0.44 mSv. У поређењу са светским просеком од 0.10 mSv y⁻¹ ефективна доза је већа више од 4 пута.

Анализиране корелације између природних радионуклида указују на јаку међусобну зависност што говори о њиховој геолошкој и геохемијској повезаности. Између природних радионуклида и ¹³⁷Cs корелације су занемарљиве, услед процеса спирања и премештања вештачког радионуклида. На основу измерених концентрација радона и торона показано је да између њих нема корелације (R²=0.032). Посебно су истражене корелације између радионуклида у тлу и радона у затвореним просторијама. Осим слабих позитивних корелација између радијума ²²⁶Ra и торијума ²³²Th са изотопом радона ²²²Rn, између осталих радионуклида и изотопа радона (²²²Rn и ²²⁰Rn) не постоји корелација. Изузетно јака позитивна корелација између концентрација мерених CR-39 (RSKS) детекторима од истих

мерених CR-39 (RADUET) детекторима показује да су ова мерења компарабилна, јер детектори мере приближно еквивалентно у истим условима. У анализи корелација концентрације радона, торона и њихових продуката распада мерене концентрације не зависе једне од других, тј. измерена концентрација зависи и од других фактора који нису у вези са извором радона. У случају LR115 детектора извесна је јака корелација између EERC и EETS, иако не постоји код родитељских нуклида радона и торона. Разлог је што услови у затвореним просторијама исто утичу на депозицију потомака радона и торона, али не и на процес стварања торона.

Достигнућа, новине и значај дисертације

Главни научни доприноси ове дисертације огледају се у следећем:

- Одређивањем специфичних активности радионуклида у узорцима необрадивог земљишта обезбеђена је база драгоцених података која може бити први корак при изради атласа природне радиоактивности испитиване области. Ови подаци обезбеђују референтни ниво природног зрачења у случају евентуалних акцидентних ситуација на Косову и Метохији, с обзиром да нема публикованих података о ранијим истраживањима.
- Мерења концентрације радона омогућила су идентификацију локација са повећаним нивоом природног зрачења, имајући у виду да је радон највећи извор зрачења у неакцидентним ситуацијама и највећи контаминант у затвореним просторијама. Локације са просечним годишњим нивоом радона изнад 200 Bq m^{-3} (што чини 18.6% мерења) налазе се у Косовскомитровачком региону: Грабовац, Рударе, Брђани, Гојбуља, Јошевик, Зубин Поток; у Косовском региону: Грачаница, Сушица, Добротин, Радево, Липљан; у Пећком региону: Гораждевац и у Призренском региону: Брод. Утврђено је да су веће вредности специфичних активности радионуклида у земљишту на појединим локацијама у Косовскомитровачком и Косовском региону одговорне за високе концентрације радона у затвореним просторијама, што је директна потврда његовог геогеног порекла.
- Овим циклусом мерења радона на Косову и Метохији дат је допринос изради Европске мапе ризика од радона. На основу GPS координата локација, средње вредности

концентрације радона у објектима су унете у мапу на принципу мреже квадрата димензија 10 km x 10 km, те је мапирањем обухваћено око 21% територије Косова и Метохије.

- Концентрације потомака из распада радона и торона су мерене први пут и први пут су одређени равнотежни фактори за радон и торон за атмосфере затворених просторија на Косову и Метохији.
- Резултати мерења послужили су да се анализирају и утврде корелације између радионуклида у тлу и радона у затвореним просторијама, корелације између радионуклида и корелације између изотопа радона. Постојање корелација између радионуклида у природним радиоактивним низовима ^{238}U и торијума ^{232}Th је први пут истражено, чиме су проширена сазнања о природној радиоактивности на Косову и Метохији.

До сада нису спроведена истраживања сличног карактера, па су подаци из ове дисертације од посебног значаја за процену излагања становништва јонизујућим изворима зрачења. На основу измерених и процењених вредности на Косову и Метохији не постоји радијациони ризик услед излагања становништва радионуклидима у тлу. Међутим, према израчунатој ефективној дози услед излагања радону и његовим потомцима у затвореним просторијама може се тврдити да на појединим локацијама постоји повећан ризик.

Истраживање из овог рада спроведено је у 16 од 30 општина и 49 углавном руралних насеља Косова и Метохије. Истраживањем је углавном обухваћен северни, централни и југоисточни део Косова и Метохије (Косово). Изведени подаци репрезентативни су за око 450 хиљада становника, што према скоријим проценама чини 1/4 укупног становништва у покрајини. С обзиром да већи део популације живи на Косову, а мањи у Метохији, имајући притом у виду карактеристике типичних објеката и сличне навике већег броја становника, поменути део популације обухваћен овим радом се може сматрати репрезентативним за већи део Косова и Метохије. Према насталој мапи ризика од радона покривено је 21% територије, али треба напоменути да локације у општини Драгаш и југоистоисточном делу Косова и Метохије нису унете у мапу.

Изгледи и перспектива будућих истраживања

Као теме будућих истраживања и наставка овог рада могу се навести:

- Геотектонски аспект (истраживање утицаја орудњавања или постојања зона раседа) у досадашњим истраживањима на локацијама са високим вредностима радионуклида у тлу и радона у затвореним просторијама. Испитивање утицаја различитих геолошких структура на нивое радона.
- Директно мерење јачине дозе гама зрачења у ваздуху и мерење радона активном методом ради прелиминарног утврђивања и испитивања потенцијалних локација са повишеним садржајем радионуклида у тлу и нивоом радона на Косову и Метохији, с обзиром да су резултати овог рада показали да је просечна годишња концентрација радона у свакој шестој кући већа од 200 Bq m^{-3} .
- Допуна тренутне базе података за израду мапе радонског ризика, израда мапе торонског ризика; израда геогене мапе (на основу еманације радона из земљишта).
- Мониторинг радиоактивности у градским и индустријски загађеним подручјима Косова и Метохије.
- Испитивање проблема везаних за осигурање квалитета, поузданости и калибрације различитих детектора, као и примењених техника и протокола у мерењима торона и његових потомака. Објашњење појединих појава и разлика у калибрационим коефицијентима.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] <http://www.kosovo-mining.org/kosovoweb/sc/kosovo/geography.html>
- [2] <http://www.kosovo-mining.org/kosovoweb/sc/kosovo/climate.html>
- [3] <http://www.kosovo-mining.org/kosovoweb/sc/mining/geology.html>
- [4] <http://www.kosovo-mining.org/kosovoweb/sc/mining/tectonics.html>
- Агенција за заштиту од јонизујућих зрачења и нуклеарну сигурност Србије. *Годишњи извештај о нивоу излагања становништва јонизујућем зрачењу у 2011. години*. Република Србија, Београд, 2012.
- Akiba S., Tokonami S., Bochicchio F., McLaughlin J., Tommasino L., Harley N., *Thoron: its metrology, health effects and implications for radon epidemiology: a summary of roundtable discussions*. Radiation Protection Dosimetry (2010) 141(4): 477–481.
- Amgarou K., Font LI, Baixeras C., *A novel approach for long-term determination of indoor ^{222}Rn progeny equilibrium factor using nuclear track detectors*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A (2003) 506:186-198.
- Антоновић А., *Радиоактивност у природи, значај за истраживања у геологији*. Геоинститут, књига 12, Београд, 1989.
- Antovic N.M., Svrkota N. and Antovic I., *Radiological impacts of natural radioactivity from soil in Montenegro*. Radiation Protection Dosimetry (2012) 148 (3): 310–317.
- ASTM C 1402-04 Standard Guide for High Resolution Gamma Ray Spectrometry of Soil Samples.
- Baykara O. and Dogru M., *Measurements of radon and uranium concentration in water and soil samples from East Anatolian active fault systems (Turkey)*. Radiation Measurements (2006) 41: 362–367.
- BEIR VI, Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiations. *The health effects of exposure to indoor radon*. National Research Council. National Academy Press, Washington, 1999.
- Beretka J., Mathew P.J., *Natural radioactivity of Australian building materials, industrial wastes and by-products*. Health Physics (1985) 48: 87–95.
- Bezек M., Gregorič A., Kavasi N. and Vaupotič J., *Diurnal and seasonal variations of concentration and size distribution of nano aerosols (10-1100 nm) enclosing radon decay*

- products in the Postojna cave, Slovenia. Radiation Protection Dosimetry (2012) 152: 174-178.*
- БИКИТ И., СЛИВКА Ј., *Гамаспектрометријско одређивање уранијума (Утицај употребе фосфорних ђубрива на контаминацију ураном)*. Српска Академија Наука и Уметности, Књига LXXII, Београд, 1993.
- Bikit I., Slivka J., Conkic Lj., Krmar M., Veskovic M., Zikic-Todorovic N., Varga E., Curcic S., Mrdja D., *Radioactivity of the soil in Vojvodina (Northern province of Serbia and Montenegro)*. Journal of Environmental Radioactivity (2005) 78: 11–19.
- Bochicchio F., Campos Venuti G., Nuccetelli C., Risica S. and Tancredi F., *Indoor measurements of ^{220}Rn and ^{222}Rn and their decay products in a Mediterranean climate area*. Environmental International (1996) 22 (1): S633–S639.
- Borgna L., Di Lella L.A., Nannoni F., Pisani A., Pizzetti E., Protano G., Riccobono F., Rossi S., *The high contents of lead in soils of northern Kosovo*. Journal of Geochemical Exploration (2009) 101: 137-146.
- Bossew P., *Fukushima accident influence on Europe – comparison with Chernobyl accident*. IV ECE Workshop, Kragujevac, 31 October – 1 November 2011.
- Carpentieri C., Zunic Z.S., Carelli V., Cordedda C., Ferrigno G., Veselinovic N., Bossew P., Tollefsen T., Cuknic O., Vojinovic Z. and Bochicchio F., *Assessment of long-term radon concentration measurement precision in field conditions (Serbian Schools) for a survey carried out by an international collaboration*. Radiation Protection Dosimetry (2011) 145: 305–311.
- Catalano R., Imme G., Mangano G., Morelli D. and Rosselli T., *Indoor radon survey in Eastern Sicily*. Radiation Measurements (2012) 47: 105–110.
- Celik N., Cevik U., Celik A., Kucukomeroglu B., *Determination of indoor radon and soil radioactivity levels in Giresun, Turkey*. Journal of Environmental Radioactivity (2008) 99: 1349–1354.
- Chao C.Y.H., Tung T.C.W., Burnett J., *Influence of ventilation on indoor radon level*. Building and Environment (1997) 32 (6): 527-534.
- Chen J., Tokonami S., Sorimachi A., Takahashi H. and Falcomer R., *Preliminary results of simultaneous radon and thoron tests in Ottawa*. Radiation Protection Dosimetry (2008) 130: 253–256.

- Chen J., Moir D., Pronk T., Goodwin T., Janik M. and Tokonami S., *An update on thoron exposure in Canada with simultaneous ^{222}Rn and ^{220}Rn measurements in Fredericton and Halifax*. Radiation Protection Dosimetry (2011) 147: 541–547.
- Clouvas A., Xanthos S., Antonopoulos-Domis M., *Simultaneous measurements of indoor radon, radon–thoron progeny and high-resolution gamma spectrometry in Greek dwellings*. Radiation Protection Dosimetry (2006) 118 (4): 482–490.
- Cook G.A., *Argon, helium and the rare gases*. Interscience, New York, 1961.
- Dainiak N., *Mechanisms of radiation injury: impact of molecular medicine*. Stem cells (1997) 15: 1-5.
- Denman A.R., Groves-Kirkby N.P., Groves-Kirkby C.J., Crockett R.G.M., Phillips P.S., Woolridge A.C., *Health implications of radon distribution in living rooms and bedrooms in U.K. dwellings - A case study in Northamptonshire*. Environment International (2007) 33 (8): 999-1011.
- Di Lella L.A., Frati L., Loppi S., Protano G., Riccobono F., *Environmental distribution of uranium and other trace elements at selected Kosovo sites*. Chemosphere (2004) 56: 861–865.
- Dimitrijević M.D., *Geologija Jugoslavije*. Geoinstitut, Beograd, 1995.
- Dimovska S., Stafilov T., Šajn R. and Frontasyeva M., *Distribution of some natural and man-made radionuclides in soil from the city of Veles (Republic of Macedonia) and its environs*. Radiation Protection Dosimetry (2010) 138 (2): 144–157.
- Djurić G.D., Popović Lj.D., *Uranijum u životnoj sredini - "Nulto stanje" u Srbiji*, Hemijska Industrija, (2001) **55**: 289-294.
- Додић С. и Милачић С., *Учинци урана на људско здравље (Утицај употребе фосфорних ђубрива на контаминацију ураном)*. Српска Академија Наука и Уметности, Књига LXXII, Београд 1993.
- Doi M., Fugimoto K., Kobayashi S., Yonehara H., *Spatial distribution of thoron and radon concentrations in the indoor air of a traditional Japanese wooden house*. Health Physics (1994) 66: 43-49.
- Dragović S., Janković Lj. and Onjia A., *Assessment of gamma dose rates from terrestrial exposure in Serbia and Montenegro*. Radiation Protection Dosimetry (2006) 121(3): 297–302.

- Dragović S., Janković-Mandić Lj., Dragović R., Đorđević M., Đokić M., Kovačević J., *Lithogenic radionuclides in surface soils of Serbia: Spatial distribution and relation to geological formations*. Journal of Geochemical Exploration (2014) 142: 4-10.
- Durrani S.A. and Ilic R., *Radon measurements by etched track detectors: Applications in radiation protection, earth sciences and the environment*. World Scientific, Singapore, 1997.
- Dwivedi K.K., Mishra R., Tripathy S.P., Kulshreshtha A., Sinha D., Srivastava A., Deka P., Bhattacharjee B., Ramachandran T.V., Nambi K.S.V., *Simultaneous determination of radon, thoron and their progeny in dwellings*. Radiation Measurements (2001) 33: 7-11.
- Emsley, J., *The Elements*. 3rd edition, Clarendon Press, Oxford, 1998.
- EPA, Environmental Protection Agency. 402-K02-006. *A Citizen's Guide to Radon: The guide to protecting yourself and your family from radon*. US EPA, Washington, DC, 2004.
- Espinosa G., Golzarri J.I., Gaso M.I., Mena M. and Segovia N., *An intercomparison of indoor radon data using NTD and different dynamic recording systems*. Radiation Measurements (2013) 50: 112-115.
- Fews A.P. and Henshaw D.L., *High resolution alpha particle spectroscopy using CR-39 plastic track detector*. Nuclear Instruments and Methods (1982) 197: 517-529.
- Fisne A., Okten G. and Celebi N., *Radon concentration measurements in bituminous coal mines*. Radiation Protection Dosimetry (2005) 113: 173-177.
- Fleischer R.L., *Alpha recoil damage: relation to isotopic disequilibrium and leaching of radionuclides*. Geochimica et Cosmochimica Acta (1988) 52(6): 1459-1466.
- Fleischer R.L., *Alpha-recoil damage and solution effects in minerals: Isotopic disequilibrium and radon release*. Geochimica et Cosmochimica Acta (1982) 46: 2191-2201.
- Fleischer R.L., *Isotopic disequilibrium of uranium: Alpha-recoil damage and preferential solution effects*. Science (1980) 207: 979-981.
- Fleischer R.L., *Radon: overview of properties, origin and transport*. In: Durrani S.A., Ilic R., *Radon measurements by etched track detectors. Application in radiation protection, earth sciences and the environment*. World Scientific, Singapore, 1997.
- Forkapic S., Bikit I., Slivka J., Conkic Lj., Veskovic M., Todorovic N., Varga E., Mrdja D. and Hulber E., *Indoor radon in rural dwellings of the South-Pannonian region*. Radiation Protection Dosimetry (2007) 123: 378-383.

- Fromm M., Meyer P. and Chambaudet A., *Ion track etching in isotropic polymers: etched track shape and detection efficiency*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B (1996) 107: 337-343.
- Геолошки Атлас Србије, Министарство за заштиту природних богатстава и животне средине Републике Србије, Барекс, Београд, 2002.
- Glover S.E., Traub R.J., Grim C.A., Filby R.H., *Distribution of natural thorium in the tissues of a whole body*. Radiation Protection Dosimetry (2001) 97: 153-160.
- Gržetić I., Jelenković R., *Prirodni radioaktivni elementi: geolosko poreklo, oblici pojavljivanja i migracije*, "Jonizujuća zračenja iz prirode", JDZZ Beograd (1995) 3-39.
- Guagliardi I., Buttafuoco G., Apollaro C., Bloise A., De Rosa R. and Cicchella D., *Using gamma-ray spectrometry and geostatistics for assessing geochemical behaviour of radioactive elements in the Lese Catchment (southern Italy)*. International Journal of Environmental Research (2013) 7(3): 645-658.
- Gulan L., Milic G., Bossew P., Omori Y., Ishikawa T., Mishra R., Mayya Y. S., Stojanovska Z., Nikezic D., Vuckovic B. and Zunic Z.S., *Field experience on indoor radon, thoron and their progenies with solid-state detectors in a survey of Kosovo and Metohija (Balkan region)*. Radiation Protection Dosimetry (2012): 152 (1-3) 189-197.
- Gulan L., Bochicchio F., Carpentieri C., Milic G., Stajic J., Krstic D., Stojanovska Z., Nikezic D. and Zunic Z.S., *High annual radon concentration in dwellings and natural radioactivity content in nearby soil in some rural areas of Kosovo and Metohija (Balkan region)*. Nuclear Technology and Radiation Protection, (2013a) 28(1): 60-67.
- Gulan L., Milenkovic B., Stajic J.M., Vuckovic B., Krstic D., Zeremski T. and Ninkov J., *Correlation between radioactivity levels and heavy metal content in the soils of the North Kosovska Mitrovica environment*. Environmental Science: Processes & Impacts (2013b) 15: 1735-1742.
- Gusain G.S., Prasad G., Prasad Y. and Ramola R.C., *Comparison of indoor radon level with radon exhalation rate from soil in Garhwal Himalaya*. Radiation Measurements (2009) 44: 1032-1035.
- Harb S.R.M., *On the human radiation exposure as derived from the analysis of natural and man-made radionuclides in soils*. Doctoral dissertation, Hanover, 2003.
- Henshaw D., Manual Track Analysis System Ltd. TASL Ltd., 1992.

- Hunyadi I., Csige I., Hakl J., Hertelendi E., Vasarhelyi A., *Radon enriched deep earth-gas upflow in a seismically active inhabited area*. Proceedings of 3rd International Colloquium on Rare Gas Geochemistry, Amritsar, 1995.
- Iacob O., *Exposure from natural radiation sources in Romania*. Journal of Preventive Medicine (1996) 4: 73–82
- IAEA 295, International Atomic Energy Agency, *Measurement of radionuclides in food and the Environment*. A guide book, Technical report series, Vienna, 1989.
- IAEA 309, International Atomic Energy Agency, *Construction and use of calibration facilities for radiometric field equipment*. Technical Reports Series, Vienna, 1989.
- ICRP 60, Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Pergamon Press, Oxford, (1991) 21 (1-3): 1-201.
- ICRP 65, Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. *Protection against Radon-222 at Home and at Work*. Pergamon, Oxford 1993.
- ICRP 66, International Commission on Radiological Protection. *Human respiratory tract model for radiological protection*. A report of a Task Group of the International Commission on Radiological Protection. Ann. ICRP 24 (1–3), Oxford:Pergamon Press (1994).
- ICRP 103, International Commission on Radiological Protection. Anex B. *Quantities used in radiological protection*. Oxford: Pergamon Press (2007) 37: 247-322.
- ICRP 115, International Commission on Radiological Protection, *Lung cancer risk from radon and progeny and Statement on radon*. Annals of ICRP, (2010) 40 (1).
- ICRP 116, International Commission on Radiological Protection, *Conversion coefficients for radiological protection quantities for external radiation exposures*. Pergamon Press, Oxford (2010) 40 2-5: 1-257.
- Imme G., La Delfa S., Lo Nigro S., Morelli D. and Patane G., *Soil radon concentration and volcanic activity of Mt. Etna before and after the 2002 eruption*. Radiation Measurements (2006) 41: 241-245.
- Imme G., Catalano R., Mangano G. and Morelli D., *Radon exhalation measurements for environmental and geophysics study*. Radiation Physics and Chemistry (2014) 95: 349–351.
- Ivanova K., Stojanovska Z., Badulin V. and Kunovska B., *Pilot survey of indoor radon in the dwellings of Bulgaria*. Radiation Protection Dosimetry (2013) 157: 594-599.

- Ivanovich M. and Harmon R.S., *Uranium-series disequilibrium: Application to earth, marine and environmental sciences*. Oxford: Clarendon Press, 2nd Edition, 1992.
- Jakupi B., Bytycy M., Todorović Ž., Antanasijević R., *Prospection for uranium using solid state nuclear track detectors*. Proceedings of 1st Yugoslav Symposium on Solid State Nuclear Track Detectors, Belgrade, September 1988.
- Jakupi B., Bytycy M., Todorović Ž., Antanasijević R., Perelygin V.P. and Stetsenko S.G., *Tracks of heavy charged particles in some natural minerals*. Nuclear Tracks and Radiation Measurements. (1990) 17: 55-57.
- Janik M., Tokonami S., Kranrod C., Sorimachi A., Ishikawa T., Hosoda M., Mc Laughlin J., Chang B.U., Kim Y.J., *Comparative analysis of radon, thoron and thoron progeny concentration measurements*. Journal of Radiation Research (2013) 54 (4): 597-610.
- Jankovic M., Todorovic D., Savanovic M., *Radioactivity measurements in soil samples collected in the Republic of Srpska*. Radiation Measurements (2008) 43: 1448–1452.
- Janković-Mandić Lj. i Dragović S., *Radijacioni rizik usled terestričkog izlaganja za stanovništvo gradova Srbije, XXIV DZZSCG Simpozijum, Zlatibor (2007) 63–67*.
- Janković-Mandić Lj., *Radioaktivnost zemljišta Beograda: distribucija prirodnih i veštačkih radionuklida i procena radijacionog izlaganja stanovništva*. Doktorska disertacija, Univerzitet u Beogradu, Fakultet za fizičku hemiju, Beograd, 2011.
- Jevtić M., Vesković M., Mirosavljević M., Bikit I. i Čonkić Lj., *Značaj istraživanja izloženosti stanovništva radonu i njegovim potomcima*, Medicinski Pregled (2001) LIV (3-4): 140-145.
- Jilek K., Thomas J., Tomašek L., *First results of measurement of equilibrium factors F and unattached fractions fp of radon progeny in Czech dwellings*. NUKLEONIKA (2010) 55(4):439–444.
- Jonson G., *About Radon-where, when and how?* Studentlitteratur Publ.Comp., Lund, Swedish, 1-112 (1992); in: Durrani S.A. and Ilic R., *Radon measurements by etched track detectors: Applications in radiation protection, earth sciences and the environment*. World Scientific, Singapore, 1997.
- Kaletsch D., Kaatsch P., Meinert R., Schuz J., Czarwinski R., Michaelis I., *Childhood cancer and residential radon exposure - results of a population - based case control study in Lower Saxony (Germany)*. Radiation and Environmental Biophysics (1999) 38: 211-5.

- Kavasi N., Nemeth C., Kovacs T., Tokonami S., Jobbagy V., Varhegyi A., Gorjanacz Z., Vigh T. and Somlai J., *Radon and thoron parallel measurements in Hungary*. Radiation Protection Dosimetry (2007) 123: 250–253.
- Kavasi N., Kobayashi Y., Kovacs T., Somlai J., Jobbagy V., Nagy K., Deak E., Berhes I., Bender T., Ishikawa T., Tokonami S., Vaupotic J., Yoshinaga S. and Yonehara H., *Effect of radon measurement methods on dose estimation*. Radiation Protection Dosimetry (2011) 145: 224–232.
- Khan H. M., Ismail M., Khan K., Akhter P., *Radioactivity levels and gamma-ray dose rate in soil samples from Kohistan (Pakistan) using gamma-ray spectrometry*. Chinese Physics Letters (2011) 28 (1): 019301.
- Kher R.S., Khokhar M.S.K., Rathore V.B., Ramachandran T.V., *Measurement of indoor radon and thoron levels in dwellings and estimation of uranium, thorium and potassium in soil samples from central part of India*. Radiation Measurements (2008) 43: S414–S417.
- Khokhar M.S.K., Kher R.S., Rathore V.B., Pandey S. and Ramachandran T.V., *Comparison of indoor radon and thoron concentrations in the urban and rural dwellings of Chhattisgarh state of India*. Radiation Measurements (2008) 43: S405–S409.
- Kigoshi K., *Alpha-recoil ^{234}Th . Dissolution into water and the $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ disequilibrium in nature*. Science (1971) 173: 47-48.
- Kim C.K., Kim Y.J., Lee H.Y., Chang B.U., Tokonami S., *^{220}Rn and its progeny in dwellings of Korea*. Radiation Measurements (2007) 42: 1409 – 1414.
- Kim Y.J., Lee H.Y., Kim C.S., Chang B.U., Rho B.H., Kim C.K., Tokonami S., *Indoor radon, thoron, and thoron daughter concentrations in Korea*. International Congress Series (2005) 1276: 46–49.
- Kogan R.M., Nazarov I.M., Fridman S.D., *Gamma Spectrometry of natural environments and formations*. Israel program for scientific translations, Jerusalem, 1-337 (1971); in: Durrani S.A. and Ilic R., *Radon measurements by etched track detectors: Applications in radiation protection, earth sciences and the environment*. World Scientific, Singapore, 1997.
- Kovacs T., *Thoron Measurements in Hungary*. Radiation Protection Dosimetry (2010) 141(4): 328–334.
- Krstić D. and Nikezić D., *External doses to humans from ^{137}Cs in soil*. Health Physics (2006) 91: 249-257.

- Krstić D., Nikezić D., Stevanović N. and Vučić D., *Radioactivity of some domestic and imported building materials from south Eastern Europe*. Radiation Measurements (2007) 42: 1731-1736.
- Krstić D., *Vertikalna raspodela radionuklida Cs-137 u tlu okoline Kragujevca početkom 21. veka i proračun efektivne doze*. Doktorska disertacija, Univerzitet u Kragujevcu, PMF, Kragujevac, 2006.
- Kumar A., Singhal R. K., Preetha J., Rupali K., Joshi V. M., Hegde A. G. and Kushwaha H. S., *A non-parametric statistical analysis in the measurement of outdoor gamma exposure to the residents around Trombay*. Radiation Protection Dosimetry (2007) 124: 378-384.
- Kumar A., Chauhan R.P., *Measurement of indoor radon–thoron concentration and radon soil gas in some North Indian dwellings*. Journal of Geochemical Exploration (2014) 143: 155–162.
- Kurnaz A., Kucukomeroglu B., Cevik U. and Celebi N., *Radon level and indoor gamma doses in dwellings of Trabzon, Turkey*. Applied Radiation and Isotopes, (2011) 69: 1554-1559.
- Lederer C.M., Shirley V.S., Browne E., Dairiki J.M., Doebler R.E., Shihab-Eldin A.A., Jardine L.J., Tuli J.K. and Buyn A.B., *Table of Isotopes*. 7th edition, John Wiley and Sons, New York, 1978.
- Lima A., Albanese S. and Cicchella D. *Geochemical baselines for the radioelements K, U and Th in the Campania region, Italy: a comparison of stream-sediment geochemistry and gamma-ray surveys*. Applied Geochemistry (2005) 20: 611–625.
- Ma J., Yonehara H., Aoyama T., Doi M., Kobayashi S., Sakanoue M., *Influence of air flow on the behavior of thoron and its progeny in a traditional Japanese house*. Health Physics (1997) 72(1): 86-91.
- Magill J. and Galy J., *Radioactivity Radionuclides Radiation*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg and European Communities, 2005.
- Majumdar S.K., Schmaly R.F. and Easton P., *Environmental radon: occurrence, control and health hazards*. Pennsylvania Academy of Sciences, 1990.
- Markkanen M., Arvela H., *Radon emanation from soils*. Radiation Protection Dosimetry (1992) 45 (1-4): 262-272.
- Marsh J. W. and Birchall A., *Sensitivity analysis of the weighted equivalent lung dose per unit exposure from radon progeny*. Radiation Protection Dosimetry (2000) 87(3): 167–178.

- Mayya Y. S., Eappen K. P., Nambi K. S. V., *Parametric methodology for inhalation dosimetry due to a mixed field of radon and thoron using passive detectors*. In: 12th National Symposium on Radiation Physics, Jodhpur, January (1998) 28-30.
- McLaughlin J., *An overview of thoron and its progeny in the indoor environment*. Radiation Protection Dosimetry (2010) 141(4): 316–321.
- Meisenberg O., Tschiersch J., *Specific properties of a model of thoron and its decay products in indoor atmospheres*. NUKLEONIKA (2010) 55: 463-469.
- Mercer T. T. *The effect of particle size on the escape of recoiling RaB atoms from particulate surfaces*. Health Physics (1976) 31: 173–174.
- Milić G., *Distribucija radona u vazduhu zatvorenog prostora u nekim regionima Kosova i Metohije*. Doktorska disertacija, Univerzitet u Prištini, PMF, Kosovska Mitrovica, 2003.
- Milic G., Jakupi B., Tokonami S., Trajkovic R., Ishikawa T., Celikovic I., Ujic P., Cuknic O., Yarmoshenko I., Kosanovic K., Adrovic F., Sahoo S.K., Veselinovic N., Žunic Z.S., *The concentrations and exposure doses of radon and thoron in residences of the rural areas of Kosovo and Metohija*. Radiation Measurements (2010) 45: 118–121.
- Milic G., Gulan Lj., Bossew P., Vuckovic B. and Zunic Z. S., *Indoor radon mapping: a survey of residential houses of Kosovo and Metohija*. Romanian Journal of Physics (2013) 58: S180–S188.
- Milić G., Yarmoshenko I., Jakupi B., Kovačević M. and Žunić Z.S., *Indoor radon measurements in Kosovo and Metohija over the period 1995–2007*. Radiation Measurements (2011) 46: 141-144.
- Mishra R. and Mayya Y. S., *Study of a deposition based Direct Thoron Progeny Sensor (DTPS) technique for estimating Equilibrium Equivalent Thoron Concentration (EETC) in indoor environment*. Radiation Measurements (2008) 43: 1408-1416.
- Mishra R., Mayya Y. S. and Kushwaha H. S., *Measurement of $^{220}\text{Rn}/^{222}\text{Rn}$ progeny deposition velocities on surfaces and their comparison with theoretical models*. Journal of Aerosol Science (2009) 40: 1-15.
- Mishra R., Prajith R., Sapra B.K. and Mayya Y.S., *An integrated approach for the assessment of the thoron progeny exposures using Direct Thoron Progeny Sensors*. Radiation Protection Dosimetry (2010) 141: 363-366.

- Mitrovic B., Vitorovic G., Vitorovic D., Pantelic G. and Adamovic I., *Natural and anthropogenic radioactivity in the environment of mountain region of Serbia*. Journal of Environmental Monitoring (2009) 11(2): 383-388.
- Moharram B.M., Suliman M.N., Zahran N.F., Shennawy S.E. and El Sayed A.R., ^{238}U , ^{232}Th content and radon exhalation rate in some Egyptian building materials. Annals of Nuclear Energy (2012) 45: 138-143.
- Moreno V., Bach J., Baixeras C. and Font L., *Radon levels in groundwaters and natural radioactivity in soils of the volcanic region of La Garrotxa, Spain*. Journal of Environmental Radioactivity (2014) 128: 1-8.
- Mosavi-Jarrahi A., Mohagheghi M., Akiba S., Yazdizadeh B., Motamedi N., Monfared A. S., *Mortality and morbidity from cancer in the population exposed to high level of natural radiation area in Ramsar, Iran*. International Congress Series (2005) 1276: 106–109.
- Мухин К.Н., *Экспериментальная Ядерная Физика*, том I, Энергоатомиздат, 1983.
- Murty V.R.K., Karunakara N., *Natural radioactivity in the soil samples of Botswana*. Radiation Measurements (2008) 43: 1541–1545.
- Nada A., Abd-El M. T.M., Abu-Zeid H. M., El-Nagar T., Awad S., *Distribution of radionuclides in soil samples from a petrified wood forest in El-Qattamia, Cairo, Egypt*. Applied Radiation and Isotopes (2009) 67: 643–649.
- Nagda Niren L., *Radon: Prevalence, measurements, health risk and control*. Philadelphia, 1998.
- Nambi K.S.V., *A new SSNTD method for the measurement of radon-thoron mixed working levels in dwellings*. Bulletin of Radiation Protection (1994) 17: 49-52.
- Nannoni F., Protano G., Riccobono F., *Fractionation and geochemical mobility of heavy elements in soils of a mining area in northern Kosovo*. Geoderma (2011) 161: 63–73.
- Nikezic D. and Stevanovic N., *Room model with three modal distributions of attached ^{220}Rn progeny and dose conversion factor*. Radiation Protection Dosimetry (2007) 123(1): 95–102.
- Nikezic D. and Yu K.N., *Modelling radon progeny behaviour on surfaces and note on radon retrospective dosimetry*. Radiation Protection Dosimetry (1999) 82:141-146.
- Nikezic D. and Yu K.N., *Three-dimensional analytical determination of the track parameters: over-etched tracks*. Radiation Measurements (2003) 37: 39–45.

- Nikezic D. and Yu K.N., *Formation and growth of tracks in nuclear track materials*. Materials Science and Engineering R (2004) 46: 51–123.
- Niki I. *The radon concentration and adsorbed dose rate in Hungarian dwellings*. Radiation Protection Dosimetry (1996) 24: 387–389.
- Nikolić J. L., Veselinović N. Č., Tollefsen T. B., Čeliković I. T., Kisić D. M., Čuknić O. R. and Žunić Z. S., *Soil gas mapping in the vicinity of Nikola Tesla thermo power plant disposal field*. Nuclear Technology & Radiation Protection (2010) 25(1): 37-40.
- Nikolov J., Forkapić S., Hansman J., Kozmidis-Luburić U., Bikit I., Vesković M., Krmar M., Todorović N., Mrđa D., Bikit K., *Prirodna radioaktivnost u okolini bivšeg rudnika urana Gabrovnica*. XXVI DZZSCG Simpozijum, Vrnjačka Banja (2013) 92-96.
- Papastefanou C., Stoulos S. and Manolopculou M., *The radioactivity of building materials*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry (2005) 266: 367-372.
- Petrovic J., Cujic M., Djordjevic M. M., Dragovic R. M., Gajic B. A., Miljanic S. S., Dragovic S. D., *Spatial distribution and vertical migration of Cs-137 in soils of Belgrade (Serbia) 25 years after the Chernobyl accident*. Environmental Science:Processes & Impacts, (2013) 15 (6): 1279-1289.
- Popović D., Todorović D., *Radon indoor concentrations and activity of radionuclides in building materials in Serbia*. Facta Universitatis: Physics, Chemistry and Technology (2006) 4: 11-20.
- Porstendorfer J., *Behaviour of radon daughters products in indoor air*. Radiation Protection Dosimetry (1984) 7: 107-113.
- Porstendörfer J., Butterweck G., Reineking A., *Daily variation of the radon concentration indoors and outdoors and the influence of meteorological parameters*. Health Physics (1994) 67 (3): 283-287.
- Prasad G., Prasad Y., Gusain G.S. and Ramola R.C., *Measurement of radon and thoron levels in soil, water and indoor atmosphere of Budhakedar in Garhwal Himalaya, India*. Radiation Measurements (2008) 43: S375–S379.
- Prasad G., Gusain G.S., Joshi V. and Ramola R.C., *Assessment of dose due to exposure to indoor radon and thoron progeny*. Nuclear Technology and Radiation Protection (2010) 25: 198-204.

- Ramola R. C., Gusain G. S., Rautela B. S., Sagar D. V., Prasad G., Shahoo S. K., Ishikawa T., Omori Y., Janik M., Sorimachi A., Tokonami S., *Levels of thoron and progeny in high background radiation area of southeastern coast of Odisha, India*. Radiation Protection Dosimetry (2012) 152: 62–65.
- Rončević G., *Ležista i rudne pojave urana u neogenim sedimentima Belanovičkog basena*, Radovi geoinstituta (2005) 40: 141-154.
- Savović S., Djordjevich A. and Ristić G., *Numerical solution of the transport equation describing the radon transport from subsurface soil to buildings*. Radiation Protection Dosimetry (2012) 150 (2): 213–216.
- Sannappa J. and Ningappa C., *Indoor concentration of radon, thoron and their progeny around granite regions in the state of Karnataka, India*. Radiation Protection Dosimetry (2014) 158 (4): 406–411.
- Singh J., Singh H., Singh S., Bajwa B.S., Sonkawade R.G., *Comparative study of natural radioactivity levels in soil samples from the Upper Siwaliks and Punjab, India using gamma-ray spectrometry*. Journal of Environmental Radioactivity (2009) 100: 94–98.
- Singh S., Rani A. and Mahajan R. K., *^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K analysis in soil samples from some areas of Punjab and Himachal Pradesh, India using gamma-ray spectrometry*. Radiation Measurements (2005) 39: 431 – 439.
- Shang B., Chen B., Gao Y., Wang Y., Cui H., Li Z., *Thoron levels in traditional Chinese residential dwellings*. Radiation and Environmental Biophysics (2005) 44: 193–199.
- Shang B., Tschiersch J., Cui H. and Xia Y., *Radon survey in dwellings of Gansu, China: the influence of thoron and an attempt for correction*. Radiation and Environmental Biophysics (2008) 47: 367–373.
- Somogyi G. and Szalay A.S., *Track diameter kinetics in dielectric track detector*. Nuclear Instruments and Methods (1973) 109: 211-232.
- Sorimachi A., Ishikawa T., Janik M. and Tokonami S., *Quality assurance and quality control for thoron measurement at NIRS*. Radiation Protection Dosimetry (2010) 141: 367-370.
- Stevanovic N., Markovic V., Urosevic V., Nikezic D., *Determination of parameters of the Jacobi room model using the Brownian motion model*, Health Physics (2009) 96: 48-54.
- Stevanovic N., Nikezic D. and Djordjevich A., *Recoil factor of ^{214}Pb* . Journal of Aerosol Science (2004) 35(8): 1041–1050.

- Стојановић М., Радосављевић С. и Мартиновић Љ., *Особине урана и његова дистрибуција у земљишту и биљкама (Утицај употребе фосфорних ђубрива на контаминацију ураном)*. Српска Академија Наука и Уметности, Књига LXXII, Београд, 1993.
- Stojanovska Z., Januseski J., Boev B., Ristova M., *Indoor exposure of population to radon in the FYR of Macedonia*. Radiation Protection Dosimetry (2012) 148: 162–167.
- Stojanovska Z., Januseski J., Bossew P., Zunic Z.S., Tollefsen T., Ristova M., *Seasonal indoor radon concentration in FYR of Macedonia*. Radiation Measurements (2011) 46 (5-6): 602-610.
- Stojanovska Z., Bossew P., Tokonami S., Zunic Z.S., Bochicchio F., Boev B., Ristova M., Januseski J., *National survey of indoor thoron concentration in FYR of Macedonia (continental Europe-Balkan region)*. Radiation Measurements (2013) 49: 57-66.
- Sundal A.V., Henriksen H., Soldal O., Strand T., *The influence of geological factors on indoor radon concentrations in Norway*. Science of the Total Environment (2004) 328: 41–53.
- Swedjemark G.A., *The Equilibrium Factor F.*, Special Issue on Indoor Radon. Health Physics (1983) 45 (2): 453-462.
- Sykes A.G., *Recent Advances in Noble-Gas Chemistry*. Advances in Inorganic Chemistry (1998) 46: 91–93.
- Szeiler G., Somlai J., Ishikawa T., Omori Y., Mishra R., Sapra B. K., Mayya Y.S., Tokonami S., Csordas A., Kovacs T., *Preliminary results from an indoor radon thoron survey in Hungary*. Radiation Protection Dosimetry (2012) 152 (1-3): 243-246.
- Tahir S.N.A., Jamil K., Zaidi J.H., Arif M., Ahmed N., *Activity concentration of ¹³⁷Cs in soil samples from Punjab Province (Pakistan) and estimation of gamma-ray dose rate for external exposure*. Radiation Protection Dosimetry (2006) 118: 345-351.
- Tanner A.B., *Radon migration in the ground*. A supplementary review, in the Natural Radiation Environment III, National Technical Information service, Springfield, VA.CONF-780422, (1980) 5-56.
- Tao Z., Zha Y., Akiba S., Sun Q., Zou J., Li J., Liu Y., Kato H., Sugahara T., Wei L., *Cancer mortality in the high background radiation areas of Yangjiang, China during the period between 1979 and 1995*. Journal of Radiation Research (2000) 41: 31–41.
- Taylor S. R., *Abundance of chemical elements in the continental crust: a new table*. Geochimica et Cosmochimica Acta (1964) 28: 1273–1284.

- Taylor S. R., *Application of trace element data to problems in petrology*. Physics and Chemistry of the Earth (1966) 6: 135–213.
- Thad G., *Indoor Environment Quality*. Boca Raton, FL. CRC Press LLC, 2001.
- Tokonami S., Sanada T., Yang M. *Contribution from thoron on the response of passive radon detectors*. Health Physics (2001) 80:612–615.
- Tokonami S., *Summary of dosimetry (radon and thoron) studies*. International Congress Series (2005) 1276: 151–154.
- Tokonami S., Takahashi H., Kobayashi Y., Zhuo W. and Hulber E., *Up-to-date radon-thoron discriminative detector for a large scale survey*. Review of Scientific Instruments (2005) 76: 113505.
- Tokonami S., Zhuo W., Ryuo H., Yonehara H., Yamada Y. and Shimo M., *Instrument performance of a radon measuring system with the alpha-track detection technique*. Radiation Protection Dosimetry (2003) 103: 69-72.
- Tokonami S., *Why is ^{220}Rn (thoron) measurement important?* Radiation Protection Dosimetry (2010) 141(4): 335–339.
- Tommasino L., Tokonami S., Tommasino P. M., *The measurements of thoron, radon and their decay products thanks to Pinocchio, Tengu and Trolls*. Radiation Protection Dosimetry (2010) 141(4): 340–345.
- Turekian K.K. and Wederpohl K.H., *Distribution of the elements in some major units of the Earth's crust.*, Geological Society of America Bulletin (1961) 72: 175-196.
- Turner E. J., *Atoms, Radiation, and Radiation Protection*. WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, 2007.
- UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, *Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects*. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, United Nations, New York, 1982.
- UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, *United Nations Sources and Effects of Ionizing Radiation*. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations, New York, 1993.
- UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, *Sources and effects of ionizing radiation*. Report to General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations, New York, 2000.

- UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Report: *Effects of ionizing radiation ANNEX E. Sources-to-effects assessment for radon in homes and workplaces*. United Nations, New York, 2006.
- UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, *Sources and effects of ionizing radiation. Annex B: Exposure of the public and workers from various sources of radiation*. UNSCEAR, 2008. United Nations, New York, 2010.
- Urosevic V., Nikezic D., Vulovic S., *A theoretical approach to indoor radon and thoron distribution*. Journal of Environmental Radioactivity (2008) 99: 1829-1833.
- Van der Stricht E. and Kirchmann R., *Radioecology, Radioactivity and Ecosystems*. Oupeye, Belgium, 2001.
- Vaupotič J., Barišić D., Kobal I., Lulić S., *Radioactivity and radon potential of the terra rossa soil*. Radiation Measurements (2007) 42: 290 – 297.
- Vaupotič J., Kavasi N., *Preliminary study of thoron and radon levels in various indoor environments in Slovenia*. Radiation Protection Dosimetry (2010) 141 (4): 383–385.
- Veiga L.H.S. and Koifman S., *Pattern of cancer mortality in some Brazilian HBRAs*. International Congress Series (2005) 1276: 110–113.
- Веселиновић Д., Гржетић И., Ђармати Ш., Марковић Д., *Стања и процеси у животној средини*. Универзитет у Београду, Факултет за физичку хемију, Књига прва, Београд, 1995.
- Vukotic P., Antovic N., Zekic R., Svrkota R., *Indoor radon concentrations in the coastal and central regions of Montenegro*. International congress of the International Radiation Protection Association (IRPA): 12, Strengthening radiation protection worldwide; Buenos Aires (Argentina); 19-24 Oct 2008.
- WHO, World Health Organization, *Air Quality Guidelines for Europe*. Geneva, 1987.
- WHO, World Health Organization. *Depleted uranium: Sources, exposures and effects*, WHO/SDE/PHE01.1 Geneva, 2001.
- Yablokov V., Vassily B., Nesterenko B., Nesterenk V., *Chernobyl consequences of the catastrophe for people and the environment*. Published by Blackwell Publishing on behalf of the New York Academy of Sciences, Boston, Massachusetts, 2009.
- Yamada Y., Sun Q., Tokonami S., Akiba S., Zhuo W., Hou C., Zhang S., Ishikawa T., Furukawa M., Fukutsu K., Yonehara H., *Radon–thoron discriminative measurements in Gansu*

- province, China, and their implication for dose estimates. Journal of Toxicology and Environmental Health A (2006) 69: 723-734.*
- Yang T.F., Walia V., Chyi L.L., Fu C.C., Chen C.H., Liu T.K., Song S.R., Lee C.Y. and Lee M., *Variations of soil radon and thoron concentrations in a fault zone and prospective earthquakes in SW Taiwan. Radiation Measurements (2005) 40: 496 – 502.*
- Zhuo W., Tokonami S., *Convenient methods for evaluation of indoor thoron progeny concentrations. International Congress Series (2005) 1276: 219– 220.*
- Zhuo W., Chen B. and Wei M., *Estimation of Indoor ²²⁰Rn Progeny Concentrations with ²²⁰Rn Measurements. Radiation Protection Dosimetry (2010) 141 (4): 408–411.*
- Zunic Z.S., Carpentieri C., Stojanovska Z., Antignani S., Veselinovic N., Tollefsen T., Carelli V., Cordedda C., Cuknic O., Filipovic J., Bossew P., Bochicchio F., *Some results of a radon survey in 207 Serbian schools. Romanian Journal of Physics (2013) 58: S320-S327.*
- Zunic Z.S., Celikovic I., Tokonami S., Ishikawa T., Ujic P., Onischenko A., Zhukovsky M., Milic G., Jakupi B., Cuknic O., Veselinovic N., Fujimoto K., Sahoo S.K. and Yarmoshenko I., *Collaborative investigations on thoron and radon in some rural communities of Balkans. Radiation Protection Dosimetry (2010a) 141: 346–350.*
- Zunic Z.S., Bossew P., Veselinovic N.C., Bochicchio F., Carelli V., Vaupotic J., Cuknic O.R., Vojinovic Z., Kistic D.M., Tollefsen T., *The indoor radon survey in Serbian schools: can it reflect also the general population exposure? NUKLEONIKA (2010b) 55 (4): 419-427.*

ПРИЛОГ

ПУБЛИКОВАНИ РАДОВИ

FIELD EXPERIENCE ON INDOOR RADON, THORON AND THEIR PROGENIES WITH SOLID-STATE DETECTORS IN A SURVEY OF KOSOVO AND METOHIJA (BALKAN REGION)

L. Gulan¹, G. Milic¹, P. Bossew², Y. Omori³, T. Ishikawa³, R. Mishra⁴, Y. S. Mayya⁴, Z. Stojanovska⁵, D. Nikezic^{6,*}, B. Vuckovic¹ and Z. S. Zunic⁷

¹Faculty of Natural Sciences, University of Pristina, Lole Ribara 29, 38200 Kosovska Mitrovica, Serbia

²Bundesamt für Strahlenschutz (German Federal Office for Radiation Protection), Köpenicker Allee 120-130, Berlin 10318, Germany

³Regulatory Science Research Group, National Institute of Radiological Sciences, 4-9-1 Anagawa, Inage-ku, Chiba 263-8555, Japan

⁴Radiological Physics and Advisory Division (RPAD), Bhabha Atomic Research Centre, Mumbai 400085, India

⁵Faculty of Medical Sciences, Goce Delcev University, Stip, FYR of Macedonia

⁶Faculty of Science, University of Kragujevac, Radoje Domanovic 12, Kragujevac 34000, Serbia

⁷ECELab, Institute of Nuclear Sciences 'Vinca', University of Belgrade, PO Box 522, Beograd 11000, Serbia

*Corresponding author: nikezic@kg.ac.rs

Since 1996/97, indoor radon has been measured in scattered locations around Kosovo. In the most recent campaign, apart from radon, thoron and Rn and Tn progenies have also been measured. The current survey involves 48 houses, in which different detectors have been deployed side-by-side in one room, in order to measure indoor radon and thoron gas with RADUET devices based on CR-39 detectors (analysed by Japanese collaborators) and with direct thoron and radon progeny sensor (DTPS and DRPS) devices based on LR-115 detectors (analysed by collaborators from India). Estimated arithmetic mean values of concentrations in 48 houses are 122 Bq m^{-3} for radon and 136 Bq m^{-3} for thoron. Those for equilibrium equivalent radon concentration and equilibrium equivalent thoron concentration based on measurements in 48 houses are 40 and 2.1 Bq m^{-3} , respectively. The arithmetic mean value of the equilibrium factor is estimated to be 0.50 ± 0.23 for radon and 0.037 ± 0.041 for thoron. The preliminary results of these measurements are reported, particularly regarding DTPS and DRPS being set up in real field conditions for the first time in the Balkan region. The results are to be understood under the caveat of open questions related to measurement protocols which yield reproducible and representative results, and to quality assurance of Tn and Rn/Tn progeny measurements in general, some of which are discussed.

INTRODUCTION

Radon, thoron and their progenies represent the main source of population exposure to ionising radiation in many countries. Since 1996/97, indoor radon (Rn) and thoron (Tn) have been measured in scattered locations around Kosovo by SSI/NRPB (Swedish Stockholm Institute designed diffusion chamber, intercalibrated in National Radiological Protection Board, Oxon, UK) and passive discriminative radon/thoron polycarbonate detectors^(1–4). Measurements of Rn and Tn with passive discriminative radon/thoron CR-39 detectors commercially known as RADUET started from 2007⁽⁵⁾ in some areas of Kosovo. During the Thoron 2010 Workshop held in Chiba, Japan⁽⁶⁾, it was agreed that indoor radon, thoron and their respective progenies should be measured independently. At the end of 2010, new cycles of indoor measurements were started at new houses in Kosovo and Metohija, trying to follow this conclusion and also, in order to determine the equilibrium factor for radon and thoron. By

collaboration of the research teams from NIRS (National Institute for Radiological Sciences, Chiba, Japan) and Babha Atomic Research Centre (India) with received detectors, field work has been conducted in 30 settlements and 48 new houses at Kosovo area. Therefore, this paper deals with the field experimental results with RADUET devices deployed side by side with direct radon progeny sensor (DRPS) and direct thoron progeny sensor (DTPS) devices at measuring points over the region for the first time.

METHODOLOGY OF MEASUREMENTS

The study area included the 48 houses in 30 settlements in Kosovo from the North to the South with Metohijan village Gorazdevac. The houses were randomly chosen with an idea of surrounding a greater geographical part (Figure 1). These rural types of houses are mostly self-contained and representatives of the study area.



Figure 1. Map of study areas in Kosovo and Metohija.

Passive discriminative radon and thoron detectors (RADUET) were deployed side by side with DRPS and DTSPS devices in the bedrooms of 48 houses. About 70 % of the rooms are located in ground floor, 20 % in first floor and rest 10 % in house with cellars. Only houses with basements were chosen for this research. A RADUET device was put 10 cm from the walls and >2 m above the floor, while a DTSPS/DRPS device was placed in the centre of the bedroom, on hanging lamps ~ 30 cm below the ceiling. The 10-cm distance was chosen because the Tn level at a 10-cm distance from the wall could be more or less representative of the interior of the room⁽⁷⁾. If the detector is placed closer to the wall, the measured Tn concentration mainly represents exhalation from the wall. The detectors were deployed in rooms in two consecutive 6-months periods encompassing 1 y, from December 2010 to December 2011, and after the first period the detectors were replaced with new ones and measurements were continued up to December 2011. Since measurements were carried out in the cold period of the year, most houses used solid fuel heating (predominantly wood). Although the houses in Kosovo were usually ventilated even in

the winter period, bedrooms were not or poorly heated in most of the houses.

DTSPSs are absorber (aluminised mylar of 50- μm thickness) mounted LR-115-type nuclear-track detectors which selectively detect only the 8.78 MeV alpha emitted from ^{212}Po atoms formed from the radioactive decay of ^{212}Pb and ^{212}Bi atoms deposited on the absorber surface. Similarly, DRPS has an absorber thickness of 37 μm to detect mainly the alpha particles emitted from ^{214}Po (7.69 MeV) formed from the eventual decay of ^{218}Po , ^{214}Pb and ^{214}Bi atoms deposited on it. They are designed to yield the equilibrium equivalent radon concentration/equilibrium equivalent thoron concentration (EETC/EERC) (time-averaged) and not the gas concentrations. The lower limit of detection for the DRPS is 1 Bq m^{-3} of EERC and that for DTSPS is 0.1 Bq m^{-3} of EETC.

CR-39 detectors deployed for RADUET were chemically processed in the laboratory of Radiological Sciences NIRS, Chiba, Japan. The CR-39 detectors were etched in 6.25 M NaOH solution at 90°C during 6 h. After the etching, they were taken out, rinsed with 50 % ethanol and ion-exchange water, and dried naturally. Then, the formed

tracks were counted automatically with a reading system^(8, 9). For calibrating the RADUET devices, they were exposed in well-controlled radon and thoron calibration chambers in the NIRS, where quality assurance (QA) and quality control for thoron measurement were also provided⁽¹⁰⁾. The track density has an uncertainty of 6–20 % for radon exposure and 16–26 % for thoron exposure which vary with the integrated concentrations. The lower limits of detection for RADUET depend on the other concentration. In typical conditions, it is 5 Bq m⁻³ for radon and 15 Bq m⁻³ for thoron in the case of a 6-month exposure⁽⁸⁾.

LR-115 detectors were chemically processed in 2.5 M NaOH solution in laboratory of Bhabha Atomic Research Centre Radiological Physics and Advisory Division, Mumbai, India by standard etching protocols⁽¹¹⁾. The track counting was carried out by a semiautomatic spark counter. The track densities were converted to EETC and EERC by using the sensitivity factors of 0.94 track cm⁻² d⁻¹/EETC (Bq m⁻³) for DTSP and 0.09 track cm⁻² d⁻¹/EERC (Bq m⁻³) for DRPS for the indoor environment⁽¹²⁾. Model predictions for indoor environments with particle concentrations of >10⁴ cm⁻³ and ventilation rates of (0.5–1.5) h⁻¹ (these parameters control the deposition velocity of Rn and Tn progenies, which in turn determines the sensitivity factors of the DRPS and DTSP) show that the sensitivity factor of DTSP/DRPS systems could have ~40 % uncertainty. This has been demonstrated by large number of experiments in Indian environments. The performances of these passive sensors were also satisfactorily compared with the active flow-mode devices⁽¹³⁾ in these environments. It is possible that the aerosol concentrations and ventilation rates could be different in the Kosovo environments when compared with the Indian environments. At the same time, it may be pointed out that the use of solid fuel heating in most houses in Kosovo will give rise to higher aerosol concentrations, similar to the Indian scenario. Considering this fact, the sensitivity factors have been retained for the present study also, with the expectation that the uncertainty band of about ±40 % will cover these variations.

As a preliminary conclusion, pending better information about the functional dependence of the sensitivity factors on the above parameters, the authors assume here a lognormal, i.e. *right-skew* uncertainty model with geometric standard deviation=1.5, because this appears to account better for the possible errors which are made by assuming the given sensitivity factors (Under log-normality, this corresponds to coefficient of variation = 42 %).

RESULTS AND DISCUSSION

In the original data set, in about 10 cases, the measured EERC were higher than the Rn concentration

in the same room. This is, of course, physically not possible (since the equilibrium factor, F , cannot exceed unity) and this observation is the result of measurement and calibration uncertainties mentioned previously. With an associated uncertainty of ~40 %, 9 out of the 10 cases of $F > 1$ falls within 1 σ excursion. Following a more rigorous Bayesian approach for the uncertainty analysis, all values were subjected to a Bayesian correction accounting for physical constraints (Figure 2). The original and Bayes-corrected data are compared in Figure 3, with the example of $C(\text{Rn})$ and EERC. The effect is practically invisible for $C(\text{Rn})$, because the uncertainties of the data are small, so that $x < 0 | x' > 0$ is very unlikely for $x = C(\text{Rn})$. On the other hand, the effect is strong for some data of EERC, viz. the ones with measured EERC $> C(\text{Rn})$. To which degree the correction is itself correct could only be assessed with repeated measurements and through further discussion.

One physical reason for the apparent over-estimation of EERC (and possibly EETC) by the measurements may be found in the following observation. The high EERC values were observed in houses located in the mountains (800 m in altitude or higher). This could be because of possible higher aerosol loading coupled with decreased ventilation in these houses, but additional investigations, involving pump-based sampling and measurement of aerosol parameters, are required to ascertain the actual reasons.

Frequency distributions and statistics of indoor radon and thoron concentrations, progeny concentrations (EERC and EETC) and equilibrium factors (F_{Rn} and F_{Tn}) are shown in Table 1 and Figure 4. All quantities can be approximated as log-normal distribution; alternative hypothesis rejected at error probability > 0.1 by Kolmogorov–Smirnov, Cramer–von Mises and Anderson–Darling tests.

The average thoron concentration is higher than the average radon concentration. The building materials used for construction of houses involve bricks, sand and stones from local area. Also, results of the measured concentrations of radionuclides in the soil near the houses indicate higher soil concentration of ²³²Th than ²²⁶Ra in the region. The earlier radon measurements in this area (but in different houses) yielded results with an arithmetic mean of $C(\text{Rn}) = 65$ Bq m⁻³⁽⁴⁾ in the region Brezovica (Figure 1: villages Donja Bitinja and Sevice) and 95 Bq m⁻³, while the arithmetic mean of $C(\text{Tn})$ was 34 Bq m⁻³⁽⁶⁾ in the North Kosovo.

The ratio of EETC to EERC was calculated. It ranged from 0.03 to 0.18 with an arithmetic mean of 0.07 ± 0.04 and (Table 1). The result agrees with worldwide range of 0.01–0.5⁽¹⁴⁾.

An arithmetic mean of F_{Rn} was found to be 0.50 (for further statistics see Table 1) and the weighted mean was 0.47. This is somewhat higher, but still in

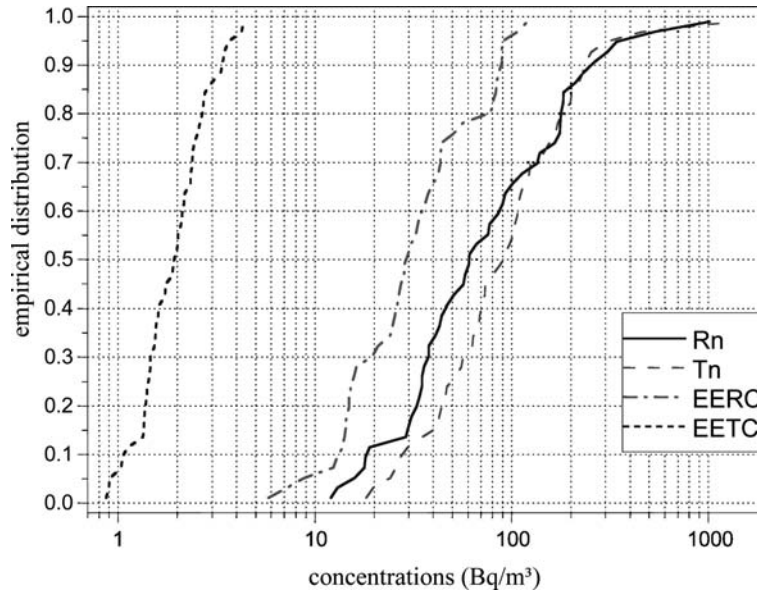


Figure 2. Frequency distributions of the Bayes corrected concentrations.

line with what is usually assumed for houses in Europe, e.g. Jilek *et al.*⁽¹⁵⁾ give 0.40 for towns and 0.32 for villages. Also, UNSCEAR 1988 suggests $F_{Rn}=0.4$, and gives a range between 0.1 and 0.82 (ibid, p. 105, Table 18), and a value of 0.49 is reported from Greece⁽¹⁶⁾. The F_{Rn} values approximately showed normal distribution (Figure 4) (truncated due to the physical constraint $0 \leq F \leq 1$); alternative hypothesis rejected at error probability >0.1 by Kolmogorov–Smirnov, Cramer–von Mises and Anderson–Darling tests.

Thoron decay products with relatively long half-life (^{212}Pb and ^{212}Bi) would mix more or less uniformly in the room and their activities will be fractions of a representative mean thoron concentration^(17, 18). Therefore, the equilibrium factor for thoron, F_{Tn} and its alpha decay products could be calculated from the ratio of EETC to thoron concentration. Statistics of F_{Tn} are presented in Table 1. Its arithmetic mean was 0.037 (the weighted mean: 0.025), which agrees well with worldwide literature data UNSCEAR 2000 (typical value: 0.02–0.04). The difference between the arithmetic mean and the weighted mean suggests that a greater percentage of the population is exposed to low concentrations of thoron progeny.

The F_{Tn} values showed approximately lognormal distribution (truncated due to the physical constraint $0 \leq F \leq 1$); alternative hypothesis rejected at error probability >0.1 by Kolmogorov–Smirnov, Cramer–von Mises and Anderson–Darling tests.

Annual effective doses due to indoor radon and thoron calculated considering arithmetic means of

EERC and EETC are 3.84 and 1.41 mSv, respectively. The following dose conversion factors were used: $9 \text{ nSv (Bq h m}^{-3}\text{)}^{-1}$ for radon progeny and $40 \text{ nSv (Bq h m}^{-3}\text{)}^{-1}$ for thoron progeny with an occupancy factor of 7000 h. In comparison with a world average effective dose from indoor radon and thoron of 1 and 0.084 mSv y^{-1} , respectively, evidently higher doses were estimated for the Kosovo region.

Correlation between quantities

Visually, the scatter plots, Figure 5, show different degrees of correlation between the ln transformed quantities. (Due to the skew distributions of the data this is difficult to assess from the non-transformed values.) In Table 2, the Pearson ρ^2 correlation coefficients of the ln(data) and the Spearman rank correlation coefficients (Pearson ρ^2 of the data ranks) are given for relevant pairs of variables. $C(Rn)$ versus EERC as well as EERC versus EETC are significantly correlated ($p < 0.05$), while $C(Rn)$ versus $C(Tn)$, and $C(Tn)$ versus EETC are not. Due to the skewness of the data, a Pearson ρ^2 makes little sense for the non-transformed values. On the other hand, there is no physical reason why the log-quantities should be linearly related; but only in this case the Pearson ρ^2 is a meaningful measure of correlation. In fact, (approximate) linear relation of the original quantities is physically more plausible, which in case of the presence of an intercept excludes linearity between the log-quantities. Similarly, slope unequal 10 in log space excludes a linear relation in

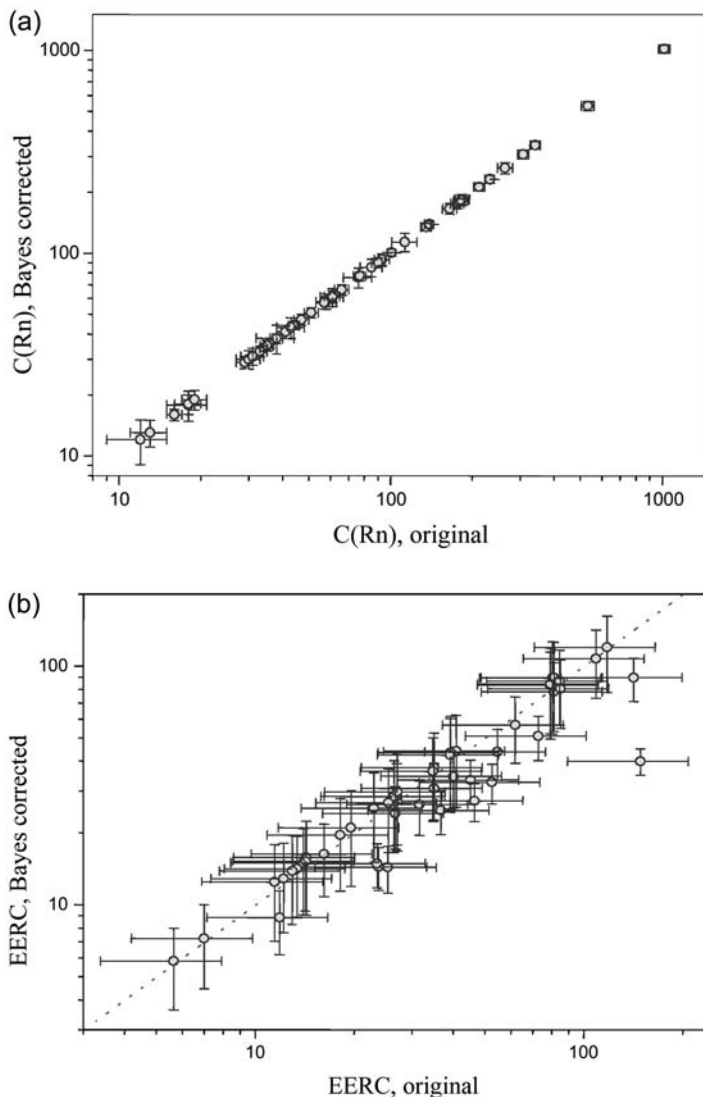


Figure 3. Scatter plots of Bayes corrected quantities. Units: Bq m^{-3} . Uncertainties of original EERC: 40 %.

original space. Therefore, the Pearson correlation is perhaps the better quantity for testing dependence in the case. The positive correlation of radon and its progenies is physically no surprise. For Tn, no correlation with EETC can be identified. This may be interpreted such that processes which control the progeny concentration, and which are independent of Tn generation, obscure any relation to Tn.

A remarkable finding is the positive correlation between EERC and EETC, while there is none for the parents Rn and Tn. A tentative explanation may go along this line: assuming that the progeny concentrations are related to the parent concentrations

approximately (first-order) multiplicative-linearly,

$$\begin{aligned} \text{EERC} &\approx \alpha_{\text{Rn}} C(\text{Rn}) F_{\text{Rn}}; \\ \text{EETC} &\approx \alpha_{\text{Tn}} C(\text{Tn}) F_{\text{Tn}} \end{aligned} \quad (1)$$

where the F represents the physical processes in the room atmosphere which relate parents and progenies and α_{Rn} and α_{Tn} some constants, independent of $C(\text{Rn})$ and $C(\text{Tn})$, respectively, and of the room characteristic. The factors F are assumed to depend only weakly (if at all) on $C(\text{Rn})$ and $C(\text{Tn})$, respectively. On the other hand, the F depends on factors

Table 1. Characteristics values of $C(Rn)$, $C(Tn)$, EERC, EERC, EETC/EERC, F_{Rn} and F_{Tn} estimated according to obtained results.

	$C(Rn)$ Bq m ⁻³	$C(Tn)$ Bq m ⁻³	EERC Bq m ⁻³	EETC Bq m ⁻³	EETC/ EERC	F_{Rn}	F_{Tn}
AM	122	136	40	2.06	0.071	0.50	0.037
Mean internal (ergodic) standard deviation	7	17	3.4	0.64	0.024	0.14	0.029
External standard deviation	167	194	29	0.85	0.038	0.23	0.042
GM	71	90	30	1.90	0.063	0.43	0.024
GSD	2.7	2.3	2.1	1.5	1.7	1.9	2.7
Median	61	90	29	1.93	0.063	0.47	0.024
Min	12	18	5.8	0.87	0.026	0.043	0.0019
Max	1016	1313	120	4.38	0.18	0.93	0.25

$n=48$ for all quantities.

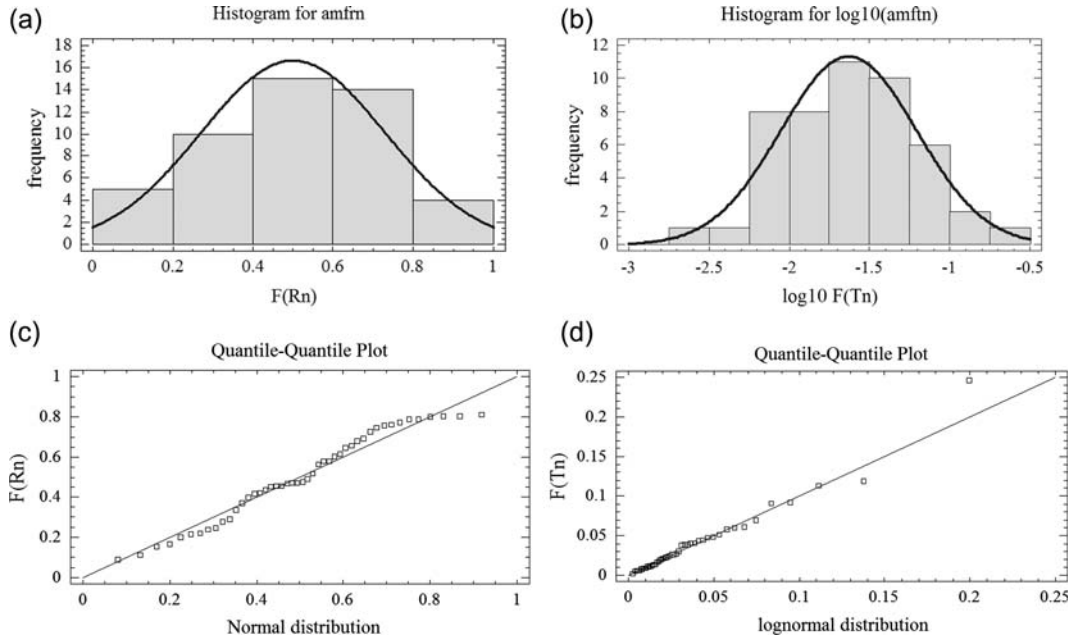


Figure 4. Distributions of the equilibrium factors. Curves in the histograms: fitted normal distributions.

related to the room atmosphere which are the same for Rn and Tn (such as air exchange or aerosol concentration), but different for each room, and material parameters of Rn and Tn , which are everywhere the same. Log-transform yields

$$\begin{aligned} \ln \text{EERC} &= (\ln \alpha_{Rn} + \ln C(Rn)) + \ln F_{Rn}; \\ \ln \text{EETC} &= (\ln \alpha_{Tn} + \ln C(Tn)) + \ln F_{Tn} \end{aligned} \quad (2)$$

The terms in the brackets are not related, as has been shown empirically, but $\ln F_{Rn}$ and $\ln F_{Tn}$ are, following the above argument (the better, the less

they depend on the parent concentrations). This leads to an approximately linear dependence between $\ln \text{EERC}$ and $\ln \text{EETC}$, as can be indeed observed. To be sure, this is a qualitative argument at this point which requires further discussion. It can possibly be supported by deriving F_{Rn} and F_{Tn} from the Jacobi–Porstendörfer model of the processes which control the behaviour of Rn , Tn and their progenies in a room of defined physical characteristics.

Table 2 also shows the parameters of linear regression between those quantities which have significant correlation, under the assumption of linear dependence.

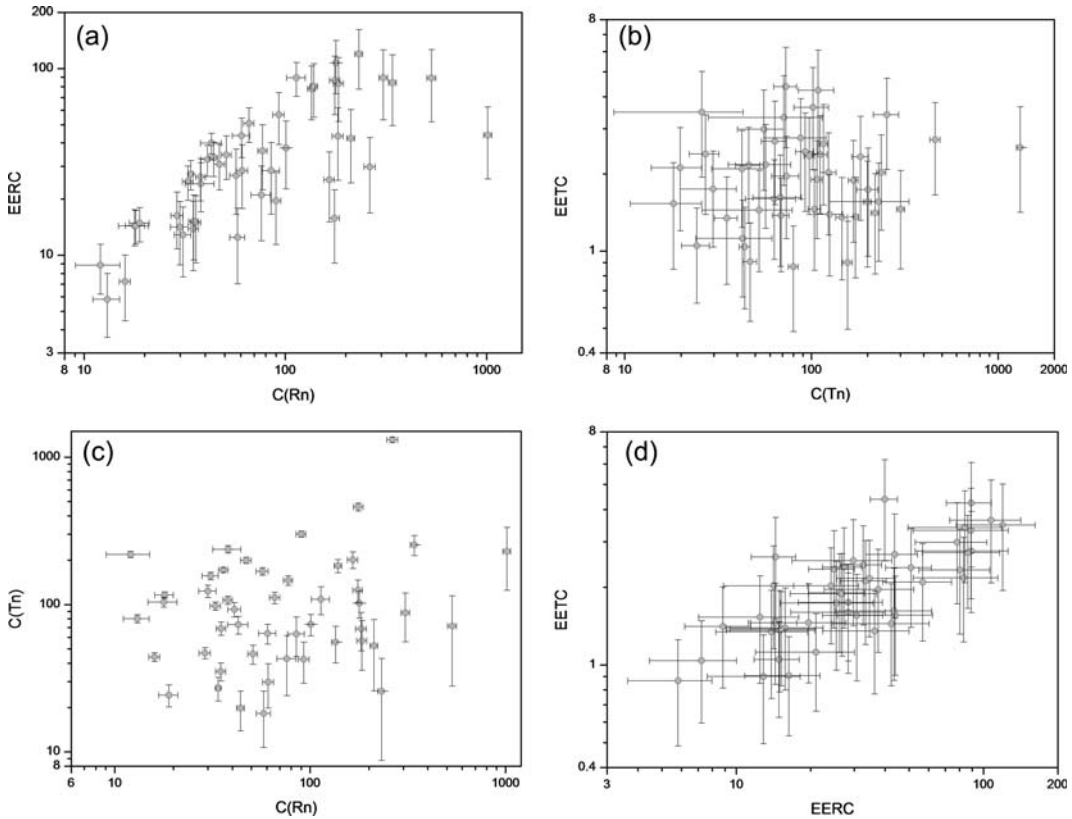


Figure 5. Scatter plots of Bayes corrected quantities; units: Bq m^{-3} . Uncertainty bars: ergodic SDs over realisations of the MC scheme.

Table 2. The parameters of linear regression fitted to correlated pairs values.

	Slope	Intercept	Pearson ρ^2	$p=t(n-2.1)$ side	Spearman r^2	$p=t(n-2.1)$ side
$\ln Tn - \ln Rn$			0.056	0.0523	0.023	0.15
$\ln EETC - \ln EERC$	0.42 ± 0.05	-0.78 ± 0.18	0.59	$8E-11$	0.56	$5E-10$
$\ln EERC - \ln Rn$	0.57 ± 0.07	0.99 ± 0.31	0.58	$2E-10$	0.64	$5E-12$
$\ln EETC - \ln Tn$			0.013	0.2194	0.0073	0.28

Internal and external variances

Another result of the Bayesian correction by simulation is the statistic over realisations. The variance between realisations for one location is called internal or ergodic variance (its square root, internal standard deviation). It measures the variability of realisations of one (unknown) true value, and therefore can be interpreted as uncertainty of the estimated true value, which is the expectation of the random variable, of which the realisations are samples. The means over locations of the internal SDs are given in Table 1 together with the external

SDs, which are the SDs over locations of the ergodic means.

In all but one case (EETC) the external variances of the quantities are higher than the internal ones. This indicates variability between the true values, i.e. not due to random statistics. This is no surprise for the Rn concentrations which are known to show a spatial trend due to their dependence on geology. For Tn, it may indicate difference of building materials and possibly of geogenic Tn potential. On the other hand, for EETC the internal and external SDs are about equal, which suggests that there is no

spatial trend in EETC, and no observable component of geogenic Tn.

For the equilibrium factors the external SDs are again greater than the internal ones, pointing again to systematic differences in the factors which control them. Physical explanation would require further investigations.

CONCLUSION

In 48 rooms across Kosovo and Metohija, radon, thoron and progenies were measured with passive detectors. From these, the equilibrium factors were estimated. Estimated mean values of concentrations in 48 houses are 122 Bq m^{-3} for radon and 136 Bq m^{-3} for thoron. Mean values for EERC and EETC based on measurements in 48 houses are 40 and 2.1 Bq m^{-3} , respectively. The mean value of the equilibrium factor is estimated at 0.50 ± 0.23 for radon and 0.037 ± 0.041 for thoron. A method for corrected implausible values is proposed to estimate uncertainties. The results are in line with what is known from literature. In particular, the equilibrium factors, 0.50 for Rn and 0.037 for Tn, appear plausible. Given the limited number of investigated rooms one cannot say whether, or to which degree the results are representative for the region. Relatively high Tn concentrations, compared with Rn, may point to the prevalence of building materials with elevated Th content. Some QA issues, however, remain to be resolved: uncertainty budgets are largely missing for the RADUET method, and to a greater extent, for the DRPS and DTPS methods. A particular problem is the sensitivity of calibration factors of the DRPS and DTPS detectors against physical conditions of the room atmosphere; further investigations are required to assess uncertainties related to the variability of these usually (and certainly in regional surveys) unknown parameters.

This study was seen as a contribution to exploring whether and how the simple method based on track etch detectors can be used for regional surveys of indoor radon, thoron and their progenies.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors highly appreciate the kind cooperation of the owners of the houses where the detectors were deployed.

FUNDING

This work was supported by the projects 171021 and P-41028 of the Ministry of Education and Science of Republic Serbia.

REFERENCES

- Jakupi, B., Krstić, G., Tonić, M. and Ilić, R. *Radon in mines and dwellings in Kosovo and Metohia*. Radiat. Meas. **28**(1–6), 691–694 (1997).
- Zunic, Z. S., Fujimoto, K., Mc Laughlin, J. P. and Birovljev, A. *Field experience of indoor thoron gas measurements in a stable rural community in Yugoslavia*. IRPA 10, 10th International Congress of the International Radiation Protection Association 'Harmonization of Radiation, Human Life and the Ecosystem', International Conference Center Hiroshima, Hiroshima, Japan, 14–19 May, Proceedings, CD-ROM, P-1b-15/1–5 (2000).
- Milić, G. *Indor distribution of radon in some regions of Kosovo and Metohija*. Ph.D. disertation, Kosovska Mitrovica (2003).
- Zunic, Z. S. *et al. Integrated natural radiation exposure studies in stable Yugoslav Rural Communities*. Sci. Total Environ. **272**, 253–259 (2001).
- Milic, G. *et al. The concentrations and exposure doses of radon and thoron in residences of the rural areas of Kosovo and Metohija*. Radiat. Meas. **45**, 118–121 (2010).
- Tokonami, S., McLaughlin, J., Tommasino, L., Harley, N. *et al. International workshop on environmental thoron and related issues*. In: Proceedings of a Workshop held in Chiba, Japan, 19–22 May. Radiat. Prot. Dosim. Special Issue 141(4), 315–315 (2010).
- Meisenberg, O. and Tschiersch, J. *Specific properties of a model of thoron and its decay products in indoor atmospheres*. Nukleonika **55**(4), 463–469 (2010).
- Tokonami, S., Takahashi, H., Kobayashi, Y., Zhuo, W. and Hulber, E. *Up-to-date radon-thoron discriminative detector for a large scale survey*. Rev. Sci. Instrum. **76**, 113505 (2005).
- Tokonami, S., Zhuo, W., Ryuo, H., Yonehara, H., Yamada, Y. and Shimo, M. *Instrument performance of a radon measuring system with the alpha-track detection technique*. Radiat. Prot. Dosim. **103**, 69–72 (2003).
- Sorimachi, A., Ishikawa, T., Janik, M. and Tokonami, S. *Quality assurance and quality control for thoron measurement at NIRS*. Radiat. Prot. Dosim. **141**, 367–370 (2010).
- Mishra, R. and Mayya, Y. S. *Study of a deposition based direct thoron progeny sensor (DTPS) technique for estimating equilibrium equivalent thoron concentration (EETC) in indoor environment*. Radiat. Meas. **43**, 1408–1416 (2008).
- Mishra, R., Mayya, Y. S. and Kushwaha, H. S. *Measurement of $^{220}\text{Rn}/^{222}\text{Rn}$ progeny deposition velocities on surfaces and their comparison with theoretical models*. J. Aerosol. Sci. **40**, 1–15 (2009).
- Mishra, R., Prajith, R., Sapra, B. K. and Mayya, Y. S. *An integrated approach for the assessment of the thoron progeny exposures using direct thoron progeny sensors*. Radiat. Prot. Dosim. **141**(4), 363–366 (2010).
- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Sources and effects of ionizing radiation*. Report to the General Assembly with Scientific Annexes (Annex B, par. 131). UN, p. 104 (2000).
- Jilek, K., Thomas, J. and Tomášek, L. *First results of measurement of equilibrium factors F and unattached fractions fp of radon progeny in Czech dwellings*. Nukleonika **55**(4), 439–444 (2010).

FIELD EXPERIENCE ON INDOOR RADON, THORON

16. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Sources and effects of ionizing radiation*. Report to the General Assembly with Scientific Annexes (Annex A, par. 138). UN, p. 75 (1988).
17. Dwivedi, K. K., Mishra, R., Tripathy, S. P., Kulshreshtha, A., Sinha, D., Srivastava, A., Deka, P., Bhattacharjee, B., Ramachandran, T. V. and Nambi, K. S. V. *Simultaneous determination of radon, thoron and their progeny in dwellings*. Radiat. Meas. **33**, 7–11 (2001).
18. Mayya, Y. S., Eappen, K. P. and Nambi, K. S. V. *Parametric methodology for inhalation dosimetry due to a mixed field of radon and thoron using passive detectors*. In: Proceedings of the 12th National Symposium on Radiation Physics, Jodhpur, 28–30 January (1998).

HIGH ANNUAL RADON CONCENTRATION IN DWELLINGS AND NATURAL RADIOACTIVITY CONTENT IN NEARBY SOIL IN SOME RURAL AREAS OF KOSOVO AND METOHIJA

by

Ljiljana R. GULAN¹, **Francesco BOCHICCHIO**^{2*}, **Carmela CARPENTIERI**²,
Gordana A. MILIĆ¹, **Jelena M. STAJIĆ**³, **Dragana Ž. KRSTIĆ**³,
Zdenka A. STOJANOVSKA⁴, **Dragoslav R. NIKEZIĆ**³, and **Zora S. ŽUNIĆ**⁵

¹Faculty of Natural Sciences, University of Priština, Kosovska Mitrovica, Serbia

²Italian National Institute of Health, Rome, Italy

³Faculty of Natural Sciences, University of Kragujevac, Kragujevac, Serbia

⁴Faculty of Medical Sciences Goce Delčev, University of Stip, FYR of Macedonia

⁵ECE Lab, Vinča Institute of Nuclear Sciences, University of Belgrade, Belgrade, Serbia

Scientific paper

DOI: 10.2298/NTRP1301060G

Some previous studies on radon concentration in dwellings of some areas of Kosovo and Metohija have revealed a high average radon concentration, even though the detectors were exposed for three months only. In order to better design a larger study in this region, the annual measurements in 25 houses were carried out as a pilot study. For each house, CR-39-based passive devices were exposed in two rooms for the two consecutive six-month periods to account for seasonal variations of radon concentration. Furthermore, in order to correlate the indoor radon with radium in nearby soil and to improve the knowledge of the natural radioactivity in the region, soil samples near each house were collected and ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K activity concentration were measured. The indoor radon concentration resulted quite high from the average (163 Bq/m³) and generally it did not differ considerably between the two rooms and the two six-month periods. The natural radionuclides in soil resulted to be distributed quite uniformly. Moreover, the correlation between the ²²⁶Ra content in soil and radon concentration in dwellings resulted to be low ($R^2 = 0.26$). The annual effective dose from radon and its short-lived progeny (5.5 mSv, in average) was calculated by using the last ICRP dose conversion factors. In comparison, the contribution to the annual effective dose of outdoor gamma exposure from natural radionuclides in soil is nearly negligible (66 Sv). In conclusion, the observed high radon levels are only partially correlated with radium in soil; moreover, a good estimate of the annual average of radon concentration can be obtained from a six-month measurement with a proper choice of exposure period, which could be useful when designing large surveys.

Key words: radon, soil radioactivity, radiological impact

INTRODUCTION

Many studies on the indoor radon have been carried out in Balkan region [1]. Also, in the last decade, a considerable attention has been given to the indoor radon survey in Kosovo and Metohija, although it limited to some specific regions [2-7].

However, evaluations of radon concentration in these studies (as in other all around the world [8]) were generally based only on the three-month measurements, and annual averages could not be evaluated because adequate correction factors for the seasonal variations were not available. Therefore, in order to obtain an unbiased evaluation (*i. e.* not affected by sea-

sonal variations) of annual radon concentration in dwellings of Kosovo and Metohija, a new measurement campaign in the area was necessary and the measurement of radon concentration had to be conducted for a total of 12 months. To this purpose, a pilot study has been conducted (from December 2009 to December 2010) in 25 houses distributed in 13 villages of 8 municipalities of the region. In particular, two "mixed" six-month exposure periods were selected, *i. e.* periods with overall similar mixture of cold and warm months, in order to test if each of these periods could be used to estimate the annual average with a low bias.

Moreover, an effort has been made in this study to evaluate the correlation between the radon level in

* Corresponding author; e-mail: francesco.bochicchio@iss.it

dwellings and the ^{226}Ra concentration in soil samples taken close to the selected dwellings. This is interesting because whereas the soil is generally the main source of radon concentration in indoor air, the correlation between the indoor radon and radium in soil is often not very strong [9], although in some situations it resulted to be significant [10], and not many studies have been carried out trying to correlate the indoor radon and radium content in nearby soil (*e. g.*, [11, 12]). Finally, in order to increase the knowledge on the natural radioactivity in the region (which could be useful also for comparing the soil contamination from artificial radionuclides), the other main natural radionuclides (*i. e.* ^{232}Th and ^{40}K) in soil were also measured.

In summary, in this paper methodology and results of the study are presented as regards: (a) the annual radon concentration and comparison of the two six-month periods, (b) the natural radionuclide content in the soil, including the correlation between radium in soil and indoor radon, and (c) the evaluation of the effective dose for the population living in these areas.

Study area and its geology

The studied area, Kosovo and Metohija, is located between latitudes $41^{\circ} 51'$ and $43^{\circ} 15' \text{ N}$ and longitudes $20^{\circ} 01'$, and $21^{\circ} 48' \text{ E}$. The 25 houses involved in the study are distributed in 13 villages belonging to 8 different municipalities of the South-Eastern and Central Kosovo.

The terrain is plain, with hilly and mountainous landscapes of average height of over 500 m above the sea level. The continental climate indicates cold winters and warm summers, windy springs and rainy autumns. Temperature ranges from -10°C to 30°C .

The complex geology of studied area is due to the different periods of formation that range from Cambrian to Quaternary. It is rich in volcano-sedimentary formations and ophiolitic mélanges. The deposits fill numerous depressions with marl-sandy clays and sands bellow the Neocene and Quaternary overstep sequence with lignite deposits [13]. Formations set in magmatic and orogenic phases include few belts of ophiolites ranging in age from Jurassic to Cretaceous. These ophiolitic mélanges consist of marly limestones, conglomerates, sandstones, massive limestones, silts, carbonates and clastics. From Cambrian to Triassic became phyllites, calc-schists, marbles, dolomites, schists, and gneisses.

EXPERIMENTAL PROCEDURE

Indoor radon measurements

Aiming to cover the biggest possible field terrain regarding radon survey in Kosovo and Metohija, the new cycle of radon survey in the region (including new homes and locations) started by investigating 25

homes in the period between 2009 and 2011. In order to obtain the permission to measure radon concentration, the houses of some students from the University of Priština were selected for this survey. Although these houses are not randomly selected, they are still appropriate for the purposes of this study. Only in two locations the measurements were repeated, *i. e.* in Gracanica and Dobrotin, due to the previously measured high indoor radon concentrations [6, 7]. The houses are rural types houses with self-contained ground-floor with or without concrete slab and of average age of about 30 years. The solid fuel heating and natural ventilation are typical for these houses. In addition to the sandy soil or clay, somewhere even the stone is under and around the house's basement, mainly. The study area gravitates toward two active mines of lead and zinc [3].

The indoor radon measurements were carried out by exposing passive device, which consisted of a small dome-shaped diffusion chamber of 4.5 cm diameter and 2 cm height, made of conductive plastic, housing on the bottom a CR-39 nuclear track detector (2.5 cm \times 2.5 cm, 1 mm thick) model TASTRAK made by Track Analysis Systems Ltd., for the two consecutive six-month periods, from December 2009 to June 2010 and from June 2010 to December 2010. The devices were placed in the kitchen (or living rooms) and bedrooms, at a distance of about 30 cm from walls (in order to reduce the thoron contribution to the detector track density) and at the (a) height of 1.5 to 2.0 m above the floor. The first period relates to winter-spring, and the second relates to summer-autumn, so that the similar radon concentration values could result, on average, for the two periods. The tracks of alpha particles in the detectors were visible after chemical etching in a 6.25 N NaOH solution at 98°C for 1 h. The readout of alpha particle tracks was carried out by an automatic track analysis system (Politrack, Italy). The etching, track counting and radon concentration assessment were performed by the Italian National Institute of Health.

Measurement of radioactivity in soil

During the indoor radon measurements soil samples from undisturbed area near the houses were collected in 15 sampling sites. For neighboring houses, which were not but several meters far from each other, the soil samples were taken from one joint sampling site, *i. e.* of one square meter. Samples were taken by shovel from the three different depths. For the superficial samples, about 200 ml surface soils from each angle of a one square meter and from a center of this square were taken up to the 5 cm depth, whereas the other two one litre soil samples were taken both at the center of the one square meter at 10-20 cm and 20-40 cm depth. All samples were closed in plastic bags and transported to the laboratory. After removing the stones and roots, each sample was dried in an oven at temperature of $100\text{-}110^{\circ}\text{C}$ for about two hours to

eliminate the moisture. Then the samples were crushed and sifted on sieve < 2 mm aiming at getting volume of 450 ml. The samples were stored in Marinelli beakers, closed by silicone sealant and left for more than 4 weeks to achieve secular equilibrium between radium and its decay products. The gamma spectrometric system used for the analysis of the samples consists of a coaxial high-purity germanium detector (GEM30-70, ORTEC) with relative efficiency of 32% at 1.33 MeV (^{60}Co) and of multichannel analyzer. The system had an energy resolution (FWHM) 1.69 keV at 1.33 MeV (^{60}Co) and 725 eV at 122 keV (^{57}Co). The detector was settled in a 10 cm thick lead shelter in order to reduce the background. Background and each soil sample were measured 10800 s under the same conditions.

The gamma-activity of radionuclides was determined through their intensity of emission lines in the spectrum after the background subtraction. Activity concentration of ^{226}Ra was determined as weighted average activity obtained from the two separate gamma photopeaks of its decay products, *i. e.* ^{214}Pb at 351.9 keV, and ^{214}Bi at 609.3 keV. The activity concentration of ^{232}Th was determined by the gamma photopeaks of ^{228}Ac (at the energies of 911.1 keV and 968.9 keV) and ^{208}Tl (at the energies of 583.0 keV and 860.6 keV). The photopeaks are created by gamma rays from de-excitation of decay products (gamma rays following β -decay of ^{214}Pb (to ^{214}Bi), ^{214}Bi (to ^{214}Po), ^{228}Ac (to ^{228}Th), ^{208}Tl (to ^{208}Pb)). From the photopeak at energy line of 1460.7 keV, gamma-activity concentration of 40 K was obtained.

RESULT AND DISCUSSION

Indoor radon

Out of the 25 monitored houses, full and validated measurements (*i. e.* both rooms and both peri-

ods) were available for 17 houses, whereas partial measurements were available for the remaining 8 houses: valid measurements for both rooms during one measurement period were only available for 4 houses, and measurements during both periods in one room were available for 4 houses. An anomalous radon concentration value found in one home, in one of the two rooms during the second period, has been excluded from this analysis, and the house was considered in the group of houses where the measurements during both periods were available only in one room.

The summary statistic of measurements carried out during the two exposure periods, in the two monitored rooms, is presented in tab. 1. Out of the 25 measured houses, the houses with both rooms measured were 22 and 18 for the first and second exposure period, respectively. For each period, the average indoor radon concentration in each house was estimated as the arithmetic mean of results in the two rooms.

The differences between the two measured rooms in each house were investigated. The ratios between radon concentration measured in the kitchen or living rooms and that measured in bedrooms follow the expected lognormal shape, with a geometric mean for the first and the second period of 0.9 and 1.0, respectively, and a geometric standard deviation of 1.7 and 1.6, respectively. Therefore, no significant systematic difference appears between radon concentrations in the two room types, as confirmed by the Kruskal-Wallis test.

According to the above result, in case of a missing measurement in a room, the available measurement in the other room was assumed to be representative for both ones. In this way it was possible to estimate the house average radon concentration, during the two six-month periods, for 25 and 21 houses respectively (see tab. 1).

The ratio between radon concentration measured in the two periods was analyzed in order to ver-

Table 1. Summary statistic of indoor radon concentrations measurements in the two periods of exposure and of the annual indoor radon concentrations

Period	Location	N	Indoor radon concentration [Bqm^{-3}]						
			Min	Max	Med	AM	SD	GM	GSD
First (Dec. 09-June 10)	Kitchen or living room	24	49	423	139	173	91	151	1.7
	Bedroom	23	27	380	136	161	94	136	1.9
	House average ^a	22	38	336	136	165	82	145	1.7
	House average ^b	25	38	336	138	169	79	150	1.7
Second (June 10-Dec. 10)	Kitchen or living room	20	44	359	133	173	97	147	1.8
	Bedroom	19	32	489	123	170	119	138	1.9
	House average ^a	18	46	424	157	179	101	153	1.8
	House average ^b	21	44	424	130	166	99	140	1.8
Complete year (Dec. 09-Dec. 10)	Kitchen or living room	20	47	383	161	179	94	155	1.8
	Bedroom	18	46	424	157	179	101	153	1.8
	House average ^a	17	61	378	164	179	88	159	1.7
	House average ^c	25	41	378	138	136	84	143	1.7

AM – arithmetic mean, SD – standard deviation, GM – geometric mean, GSD – geometric standard deviation (dimensionless)

^ahouses with valid measurements in both room, ^bhouses with valid measurements in 1 room, ^chouses with valid measurements in 1 room and 1 period

ify if the two six-month periods are equivalent or not. The distribution of the radon concentration ratio during the second and the first period is shown in fig. 1 for both measured rooms. The ratio ranges from 0.6 to 1.8 for kitchens or living rooms, and from 0.6 to 1.3 for the bedrooms, with a median value of 0.9 for both room types. Therefore, the average radon concentration during the two exposure periods appears to be nearly equivalent, although with some house-to-house variation that will be discussed later.

The annual average values are also summarized in tab. 1. The Complete measurements were available for 17 dwellings. For these houses, the annual average for each room was obtained by weighting the results in the two periods, with the weights equal to the exposure times, in order to take into account minor deviations from the planned six months exposure period Then, the house annual average was obtained by averaging the annual averages of the two rooms. As regards the houses with missing measurements in one of the two six-month periods, it is possible to estimate the house annual average by using the ratio (evaluated in houses with complete measurements) of radon concentration in the two measuring periods. In particular, for each room type, the annual average was obtained multiplying the radon concentration in the first six-month period by the median values reported in fig. 1.

However, it is worth noting that the above procedure of estimating the annual average by using a correction factor based on the median of the ratio for the two periods introduces an uncertainty related to the width of the ratio distribution in the fig. 1. This is a common problem for every annual average obtained from the measurement periods shorter than one year [14].

The minimum annual indoor radon concentration is 41 Bq/m³ and it was observed in Gračanica. The maximum value (378 Bq/m³) was measured in Sušica and it is the only measured indoor radon concentration (roughly corresponding to 4%) that exceeds 300 Bq/m³,

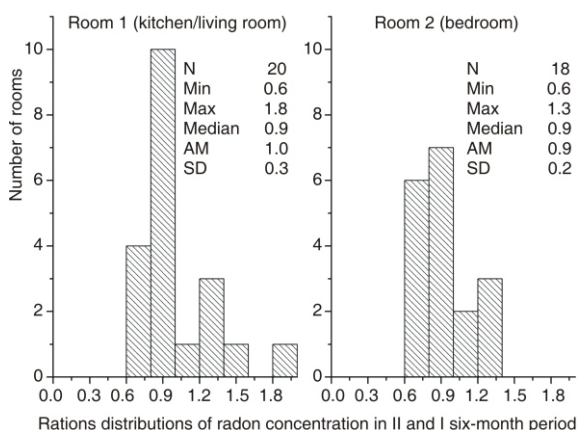


Figure 1. Ratio of radon concentration in the II six-month period and in the I six-month period for both measured room

which is the maximum reference level for existing houses, as established in the latest drafts of both the International and European Basic Safety Standards [15].

The results reported in tab. 1 can be compared with those of previous studies carried out partly in the same regions and partly in different regions of Kosovo. From measurements in 83 buildings in Priština [16], the results of indoor radon measurements ranging from 20 to 100 Bq/m³ (with AM = 50 Bq/m³) have been reported. The results of combined studies [17] are also quite different giving an approximate value of GM of 220 Bq/m³. Part of the differences is probably due to the measuring period that was 3 months for previous studies and a total of 12 months in this study. The effect of the seasonal variations cannot be evaluated in this study because the chosen exposure periods were nearly equivalent as regards the average radon concentration. In [7] a radon values comparison in different periods was reported, showing higher values in winter than in summer, with ratios of average in different periods ranging from about 1 to about 1.8 (the comparison was done in different houses). In a study carried out in schools in Sharr municipality [5], very different average values were measured in winter (236 Bq/m³) and summer (20 Bq/m³), however these results could be not representative for dwellings, due to the peculiar characteristics and the occupancy of schools.

Activity concentration of natural radionuclides in soil

A total of 15 3 soil sample measurements were done.

The samples came from the undisturbed areas near the houses where also indoor radon concentration was measured. Table 2 gives the descriptive statistic for activity concentration of ²²⁶Ra, ²³²Th, and ⁴⁰K for all samples obtained by gamma spectrometry measurements. The activity concentration of ²²⁶Ra, ²³²Th, and ⁴⁰K for all the 15 measuring sites collected at different depth are plotted in fig. 2. The plots show no significant increase of the

Table 2. Descriptive statistic of ²²⁶Ra, ²³²Th, and ⁴⁰K activity concentrations in all the 15 3 soil samples

Radionuclide	Depth [cm]	Activity concentration [Bqkg ⁻¹]				
		Min	Max	Med	AM	SD
²²⁶ Ra	0-5	16	45	23	24	8
	10-20	14	46	24	25	8
	20-40	16	59	22	27	11
²³² Th	0-5	18	52	33	34	9
	10-20	18	52	33	36	9
	20-40	21	55	38	37	11
⁴⁰ K	0-5	340	880	495	520	150
	10-20	292	912	506	529	157
	20-40	299	993	513	553	183

mean values increasing the depth, and therefore the values averaged over the three depths were used for the radiological impact estimations. The mean values of ^{226}Ra and ^{232}Th in the measured soil samples are slightly lower than the world population weighted mean values of 32 and 45 Bq/kg, respectively, whereas the measured mean value of ^{40}K is slightly higher than the world mean of 412 Bq/kg [18].

Correlation between the radium in soil and the indoor radon

In fig. 3 the radon indoor versus concentration of ^{226}Ra (averaged over the three depths) is plotted for each measurement site. The plot and the correlation parameter ($R^2 = 0.260$) show that the correlation is low. Therefore, we can conclude that the indoor radon levels in the selected dwellings are mostly affected by parameters other than the radium content in soil, such as other soil characteristics (e. g. permeability), house characteristics (particularly those related to the contact of the building with soil, but also wall materials), and living habits (e. g. ventilation).

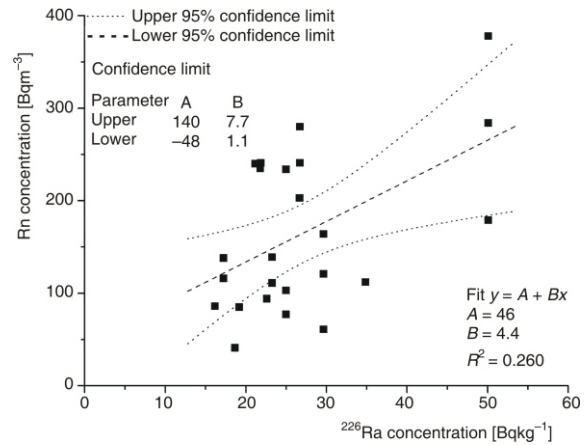


Figure 3. ^{226}Ra in soil vs. indoor radon concentration

Radiological impact

Radiological impact due to the indoor radon

The annual effective dose E [Sv] due to the exposure to indoor radon and its decay products can be

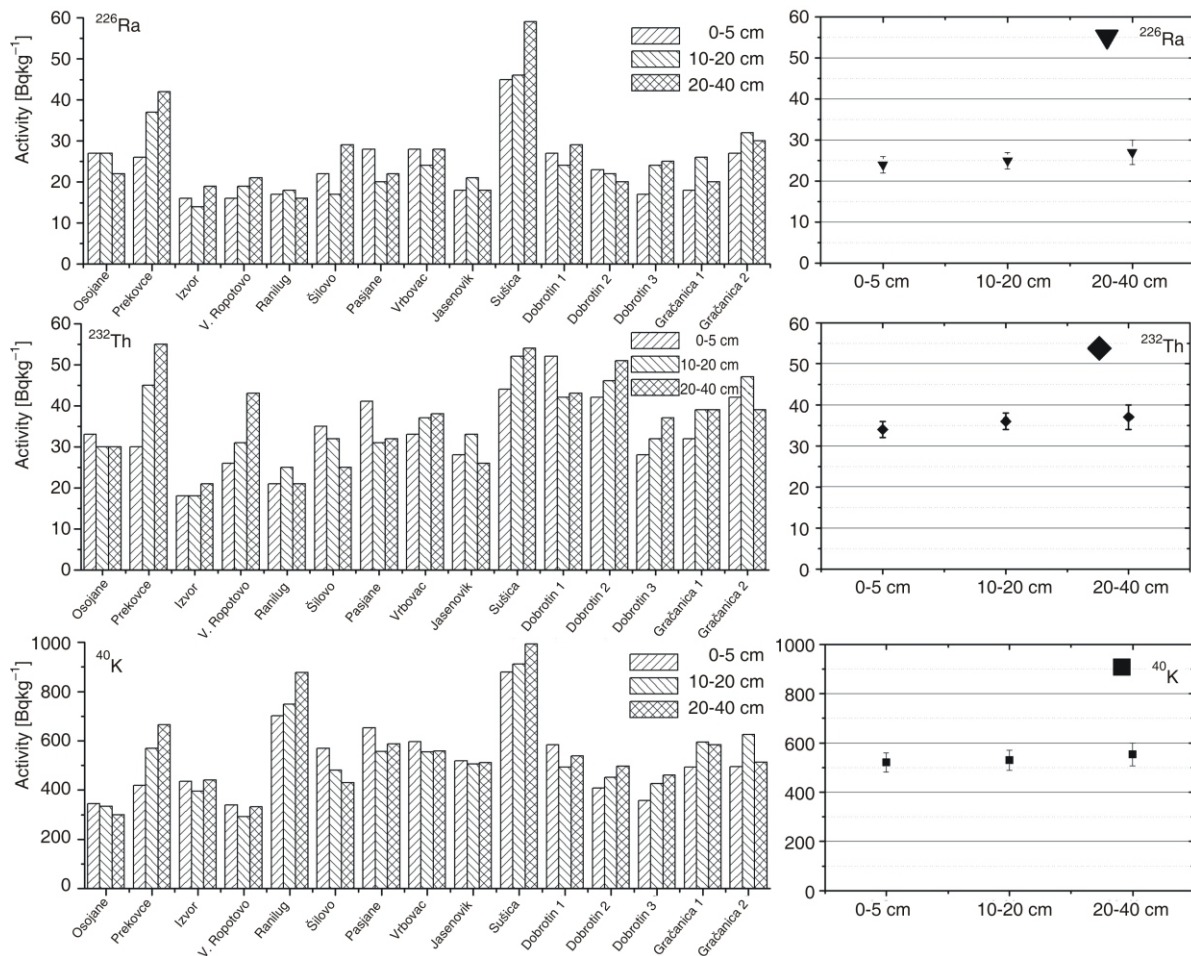


Figure 2. The activity concentration of ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K in soils sampled from different depth

estimated from the measured annual radon concentration using the following formula

$$E = C_{Rn} F T DCF \quad (1)$$

where C_{Rn} is the annual mean radon concentration, F – the equilibrium factor between radon and its decay products (taken equal to 0.4), T – the annual indoor occupancy (taken equal to 7000 hours per year as assumed also by ICRP [19]), and DCF – the dose conversion factor for radon decay products. Both the recently updated ICRP DCF and the usual UNSCEAR one – 12 and 9 nSv per Bq/m³, respectively – were considered [18, 19]. The annual effective dose values calculated by using the ICRP DCF is 5.5 mSv (calculated from the average indoor radon concentration in all 25 houses), are quite higher than the worldwide mean value of 1.2 mSv [19]. By using the UNSCEAR DCF, all annual effective doses resulted 3/4 lower than the above ones.

The mean value of effective dose obtained in this study by using ICRP DCF can be compared with results obtained in other studies in Balkan regions (tab. 3).

Radiological impact due to the outdoor terrestrial radiation

The outdoor exposure of general public and the corresponding absorbed dose rate and annual effective dose can be evaluated on the basis of the measured activity concentration in the soil. The absorbed dose rate D [nGy h⁻¹] in air at 1 m above the ground level due to the presence of natural radionuclides is estimated according to the following equation

$$D = 0.445 A_{Ra} + 0.584 A_{Th} + 0.0417 A_K \quad (2)$$

where A_{Ra} , A_{Th} , and A_K are the average activity concentrations in Bq kg⁻¹ of ²²⁶Ra, ²³²Th, and ⁴⁰K, respectively. The coefficients used in eq. (2) are obtained averaging the values found in literature, which range from 0.399 to 0.463 nGy/h per Bq/kg for ²²⁶Ra, from 0.544 to 0.604 nGy/h per Bq/kg for ²³²Th, and from 0.0399 to 0.0429 nGy/h per Bq/kg

for ⁴⁰K [20-23]. The estimated average absorbed dose rates were found not to exceed the world average value of 60 nGy/h obtained from the direct outdoor measurements [19]. The absorbed dose rate values can be used to estimate an annual effective dose due to the gamma dose terrestrial radiation at each site. The conversion coefficient of 0.7 Sv/Gy from absorbed dose in air D [nGy] to effective dose E [μSv] and the outdoor occupancy factor of 0.2 for one year (8760 h) – 10⁻³ if E in μSv – proposed by [21], were used

$$E [\text{mSv}] = D [\text{nGy}] \cdot 1.23 \quad (3)$$

In tab. 4 the summary of annual effective dose E statistic is presented. It can be seen that the outdoor annual effective dose ranges from 44 mSv (Izvor) to 111 mSv (Sušica), with an average of 66 mSv.

In tab. 5, a summary of average values of the annual effective doses due to outdoor exposure to natural radionuclides in soil is presented, as evaluated in this and other conducted investigations in Balkan region.

Table 4. Summary statistic of annual effective dose E in all the monitored locations

	AM	SD	Min	Max	Med	1 st quart.	3 rd quart.
E [Sv]	66	16	44	111	66	57	72

Table 5. Annual effective doses from natural radionuclides in soil, in Balkan region

Region or country	E [Sv]	Reference
Kosovo and Metohija	66	Present study
Republic of Srpska	85	[24]
Vojvodina	91	[25]
Serbia	77	[26]
FYR Macedonia	88	[27]

CONCLUSIONS

The annual average radon concentration measured in the selected dwellings distributed in 13 villages of 8 rural municipalities of South-Eastern and

Table 3. Indoor radon concentration and annual effective dose reported in different Balkan regions

Region or country	C_{Rn} [Bqm ⁻³]					E^{**} (ICRP) [mSv]	Reference
	N	AM	(SD)	GM	(GSD*)	AM	
Kosovo and Metohija (South-eastern and Central part)	25	163	(84)	143	(1.7)	5.5	Present study
Serbia (Niška Banja)	65	1163		529	(3.9)	39	[17]
Kosovo and Metohija (Central Kosovo, Region Prizren and North Kosovo)	63	429		224	(3.3)	14	[6]
Montenegro (Montenegrin coast)	107	32	(23)	26	(2.1)	1.1	[2]
FYR Macedonia	437	105	(84)	84	(1.9)	3.5	[1]

* GSD is dimensionless

** All the annual effective dose values E are calculated by using the ICRP DCF

Central Kosovo and Metohija resulted quite high, although lower than values obtained during the three-month measurements in other areas of Kosovo and Metohija. On the opposite, the average of natural radionuclides activity concentration (and the derived doses) in soil resulted slightly lower (for ^{226}Ra and ^{232}Th) or slightly higher (for ^{40}K) than the world population weighted mean values. Although the highest indoor radon concentration and the highest radium activity concentration in soil were measured in the same location (Susica), the correlation between these two quantities is low and the indoor radon levels appear to be more affected by other parameters than the radium content in soil. Finally, the radon concentration was quite similar (on average) for the two selected six-month periods, so that a single six-month period (from December to June, or from June to December) could be used to obtain a good estimate of the annual average for a group of dwellings, whereas for a single dwelling this would introduce a significant uncertainty due to the house-to-house variability. This could be very useful in the design of large surveys.

ACKNOWLEDGEMENTS

The authors highly appreciate the kind co-operation of the owners of the houses where the detectors were deployed. The financial support is partially provided by P 41 028 of the Ministry of Education, Science and Technological Development of the Republic of Serbia.

AUTHOR CONTRIBUTIONS

Theoretical analysis was carried out by L. R. Gulan, F. Bochicchio, C. Carpentieri, G. A. Milić, Z. A. Stojanovska, D. R. Nikezić, and Z. S. Žunić. Experiments were organized and carried out by L. R. Gulan, C. Carpentieri, G. A. Milić, J. M. Stajić, D. Ž. Krstić, and Z. S. Žunić. All authors analyzed and discussed the results. The manuscript was mainly written by L. R. Gulan and F. Bochicchio, with the contribution of all the authors.

REFERENCES

- [1] Stojanovska, Z., *et al.*, Indoor Exposure of Population to Radon in the FYR of Macedonia, *Radiat. Prot. Dos.*, 148 (2011), 2, pp. 162-167
- [2] Antović, N., *et al.*, Indoor Radon Concentrations in Urban Settlements on the Montenegrin Coast, *Radiat. Meas.*, 42 (2007), 9, pp. 1573-1579
- [3] Jakupi, B., *et al.*, Radon in Mines and Dwellings in Kosovo and Metohia, *Radiat. Meas.*, 28 (1997), 1-6, pp. 691-694

- [4] Žunić, Z. S., *et al.*, Integrated Natural Radiation Exposure Studies in Stable Yugoslav Rural Communities, *Sci. Total Environ.*, 272 (2001), 1-3, pp. 253-259
- [5] Bahtijari, M., *et al.*, Exposure to Radon in Dwellings in the Sharri Community, Kosovo, *Rad. Prot. Dos.*, 130 (2007), 2, pp. 244-248
- [6] Milić, G., *et al.*, The Concentrations and Exposure Doses of Radon and Thoron in Residences of the Rural Areas of Kosovo and Metohija, *Radiat. Meas.*, 45 (2010), 1, pp. 118-121
- [7] Milić, G., *et al.*, Indoor Radon Measurements in Kosovo and Metohija over the Period 1995-2007, *Radiat. Meas.*, 46 (2011), 1, pp. 141-144
- [8] Rafique, M., *et al.*, Matiullah Estimation of Annual Effective Radon Doses and Risk of Lung Cancer in the Residends of District Bhimber, Azad Kashmir, Pakistan, *Nucl. Technol. Radiat.*, 26 (2011), 3, pp. 218-225
- [9] Appleton, J. D., *et al.*, Soil Radium, Soil Gas Radon and Indoor Radon Empirical Relationships to Assist in Post-Closure Impact Assessment Related to Near-Surface Radioactive Waste Disposal, *J. Environ. Radioact.*, 102 (2011), 2, pp. 221-234
- [10] Price, P. N., Nero, A. V., Gelman, A., Bayesian Prediction of Mean Indoor Radon Concentrations for Minnesota Counties, *Health Phys.*, 71 (1996), 6, pp. 992-936
- [11] Singh, S., Kumar, A., Singh, B., Radon Level in Dwellings and its Correlation with Uranium and Radium Content in Some Areas of Himachal Pradesh, *India. Environ. Int.*, 28 (2002), 1-2, pp. 97-101
- [12] Žunić, Z. S., *et al.*, A Campaign of Discrete Radon Concentration Measurements in Soil of Niška Banja Town, Serbia, *Radiat. Meas.*, 42 (2007), 10, pp. 1696-1702
- [13] Dimitrijević, M. D., Geology of Yugoslavia, Geol. Inst. GEMINI, Belgrade, 1997
- [14] Bochicchio, F., *et al.*, Annual Average and Seasonal Variations of Residential Radon Concentration for all the Italian Regions, *Radiat. Meas.*, 40 (2005), 2-6, pp. 686-694
- [15] ***, European Commission (EC), 2011, Proposal for a council directive laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation Available on: http://ec.europa.eu/energy/nuclear/radiation_protection/doc/com_2011_0593.pdf
- [16] Sutej, T., Ilić, R., Najzar, M., Response of Track-Etch Dosimeters to Environmental Radon, *Nucl. Tracks Rad. Meas.*, 15 (1988), 1-4, pp. 547-550
- [17] Žunić, Z. S., *et al.*, Radon Survey in the High Natural Radiation Region of Niška Banja, Serbia, *J. Environ. Radioactiv.*, 92 (2007), 3, pp. 165-174
- [18] ***, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and Effects of Ionizing Radiation, UNSCEAR 2008 Report. Vol. I, Annex B: Exposure of the Public and Workers from Various Sources of Radiation, United Nations, New York, 2010
- [19] ***, International Commission on Radiological Protection (ICRP), Lung Cancer Risk from Radon and Progeny and Statement on Radon, ICRP Publication 115, *Ann. ICRP*, 40 (2010), 1, pp. 1-64
- [20] Saito, K., Jacob, P., Gamma Ray Fields in the Air Due to Sources in the Ground, *Radiat. Prot. Dos.*, 58 (1995), 1, pp. 29-45
- [21] ***, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), Sources and Effects of Ionizing Radiation, Vol. I Annex A: Dose Assessment Methodologies, United Nations, New York, 2000

- [22] Clouvas, A., *et al.*, Monte Carlo Calculation of Dose Rate Conversion Factors for External Exposure to Photon Emitters in Soils, *Health Phys.*, 78 (2000), 3, pp. 295-302
- [23] Quindos, L. S., *et al.*, Conversion Factors for External Gamma Dose Derived from Natural Radionuclides in Soils, *J. Environ. Radioactiv.*, 71 (2004), 2, pp. 139-145
- [24] Janković, M., Todorović, D., Savanović, M., Radioactivity Measurements in Soil Samples Collected in the Republic of Srpska, *Radiat. Meas.*, 43 (2008), 8, pp. 1448-1452
- [25] Bikit, I., *et al.*, Radioactivity of the Soil in Vojvodina (Northern Province of Serbia and Montenegro) *J. Environ. Radioact.*, 78 (2004), 1, pp. 11-19
- [26] Dragović, S., Onjia, A., Classification of Soil Samples According to Geographic Origin Using Gamma-Ray Spectrometry and Pattern Recognition Methods, *Appl. Radiat. Isot.*, 65 (2006), 3, pp. 218-224
- [27] Stojanovska, Z., Nedelkovski, D., Initial Investigation of the Natural Radioactivity in the Soil in Some Locations in Macedonia from Radiation Protection Point of View, *Phys. Macedonica*, 58 (2008), 1, pp. 67-74

Received on July 7, 2012

Accepted on January 28, 2013

**Љиљана Р. ГУЛАН, Франческо БОКИКИО, Кармела КАРПЕНТИЈЕРИ,
Гордана А. МИЛИЋ, Јелана М. СТАЈИЋ, Драгана Ж. КРСТИЋ,
Зденка А. СТОЈАНОВСКА, Драгослав Р. НИКЕЗИЋ, Зора С. ЖУНИЋ**

**ВИСОКА ГОДИШЊА КОНЦЕНТРАЦИЈА РАДОНА У КУЋАМА
СЕОСКИХ ПОДРУЧЈА КОСОВА И МЕТОХИЈЕ И ПРИРОДНА
РАДИОАКТИВНОСТ ОКОЛНОГ ЗЕМЉИШТА**

У претходним истраживањима концентрације радона у кућама (стамбеним просторијама) неких подручја Косова и Метохије измерене су високе просечне концентрације радона, премда су детектори били изложени само три месеца. Да би се могла планирати обимнија истраживања у овом подручју, годишња мерења у 25 кућа су спроведена као пилот студија. У свакој кући, у две просторије, дневној и спаваћој соби, постављени су пасивни радонски детектори Сг-39, сваки два пута по шест месеци у току годину дана, да би се видела и сезонска варијација. У циљу процене корелације измерених концентрација радона са садржајем радијума у околном земљишту и да би се унапредило знање о садржају природних радионуклида у земљишту, узорци земљишта су узорковани у околини сваке куће и анализирани на садржај радијума (^{226}Ra), торијума (^{232}Th), и калијума (^{40}K). Измерена просечна годишња концентрација радона од 163 Bq/m^3 је висока, а измерене концентрације у дневним и спаваћим собама се нису значајно разликовале међусобно као ни у првом и другом шестомесечном периоду у току годину дана, у току којих су детектори били излагани. У земљишту је расподела природних радионуклида била сасвим уједначена. Корелација између садржаја ^{226}Ra и концентрације радона у кућама била је ниска са коефицијентом корелације од ($R^2 = 0.26$). Годишња ефективна доза од радона и његових краткоживећих потомака (5.5 mSv , просечно) израчуната је коришћењем најновијих ICRP дозних конверзионих фактора. Допринос годишњој ефективној дози од спољашњег терестријалног гама зрачења које потиче од природних радионуклида је скоро занемарљив ($66 \mu\text{Sv}$). Закључак је да су уочене високе концентрације радона само делимично корелисане са радијумом из земљишта. Добра процена годишње просечне концентрације радона може се добити на основу шестомесечног мерења са добро изабраним периодом излагања, што може бити корисно када се планирају обимнија истраживања.

Кључне речи: радон, радиоактивност тла, радиолошки утицај

Correlation between radioactivity levels and heavy metal content in the soils of the North Kosovska Mitrovica environment

Cite this: *Environ. Sci.: Processes Impacts*, 2013, **15**, 1735

Ljiljana Gulan,^a Biljana Milenkovic,^b Jelena M. Stajic,^b Biljana Vuckovic,^a Dragana Krstic,^{*b} Tijana Zeremski^c and Jordana Ninkov^c

This paper reports the results of radioactivity concentrations and heavy metal content in soil samples collected from non-agricultural areas in the municipality and vicinity of North Kosovska Mitrovica, formerly the most important mining area in Europe. The estimated average activity concentrations of ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K and ¹³⁷Cs are 40.6 ± 19 , 48 ± 25.4 , 743.2 ± 200.5 and 81 ± 119 Bq kg⁻¹, respectively. The estimated average absorbed dose rate in the air and the annual effective dose are 78.7 nGy h⁻¹ and 96.6 μSv, respectively. The radium equivalent activity and external hazard index were also calculated. High contents of Pb, Zn, Cu, Cd, As and Ni were found in the analyzed soil samples, thus indicating pollution of the environment. Most metals have a wide range of values spanning 2 to 3 orders of magnitude, which is particularly evident for Pb and Zn. Correlations between the activity concentrations of the radionuclides, the heavy metal content in soil and the basic soil properties were determined by means of the Pearson linear coefficient. Strong positive correlations between the naturally occurring radionuclides, and also among Pb, Zn, Cu and Cd were found.

Received 16th April 2013

Accepted 19th June 2013

DOI: 10.1039/c3em00208j

rsc.li/process-impacts

Environmental impact

Environmental pollution causes a serious harmful impact on population health in an industrial area. The state and quality of the soil could serve as a significant indicator of environmental contamination. Providing the data on radioactivity levels from natural and artificial radionuclides in soil is of great significance for estimating the external dose to the population. Extensive mining processes are the main source of heavy metal contamination and degradation of the environment. Heavy metals are classified among the most dangerous groups of anthropogenic environmental pollutants due to their toxicity and persistence in the environment. Therefore, the monitoring of pollutants from industrial processing facilities is essential for the human environment of formerly the most important mining area in Europe, the nearby town of North Kosovska Mitrovica.

1 Introduction

Radioactivity is permanently present in the environment from the Earth's formation. Different levels of natural radioactivity are conditioned by the composition of soils and rocks, *i.e.* by the geological and geographical characteristics of each region.^{1–6} Natural radiation includes cosmic and terrestrial sources of radiation. Cosmic rays constitute 15% of the natural background radiation, while the remaining 85% has a terrestrial source.⁷ The terrestrial long lived radionuclides ²³⁸U, ²³²Th and ⁴⁰K exist at trace levels in all ground formations^{8,9} and they are of great interest for estimating the external dose to the population. Artificial radiation arises by anthropogenic activities.

Its main source in the environment is the atmospheric fallout from nuclear weapon tests and accidents. The most important artificial radionuclide is ¹³⁷Cs, which is particularly present in the surface soil. Natural or artificial radionuclides are ubiquitous in the environment.¹⁰

Assessing the radiation exposure of the population requires establishing an inventory of radionuclides in the environment. Furthermore, the data can serve as a baseline reference in case of future anthropogenic activities which result in additional contamination.

Environmental pollution is the main problem in an industrial area. Serious harmful impacts on population health arise due to air, water and soil pollution of not only local, but regional, adjoining urban and agricultural areas. Also, extensive mining activities have the potential to degrade the environment and to enhance the background radiation levels.¹¹ The quality of the environment is of vital importance to the population and it depends on the quality of the soil, amongst other factors.^{12–14} In addition, the soil acts as a migration medium for the transfer of

^aUniversity of Pristina, Faculty of Natural Science, Lole Ribara 29, 38200 Kosovska Mitrovica, Serbia. E-mail: ljgulan@gmail.com

^bUniversity of Kragujevac, Faculty of Science, R. Domanovica 12, Kragujevac 34000, Serbia. E-mail: dragana@kg.ac.rs; Fax: +381 34 335 040; Tel: +381 34 336 223

^cInstitute of Field & Vegetable Crops, Maksima Gorkog 30, Novi Sad 21000, Serbia. E-mail: tijana.zeremski@nsseme.com

radionuclides to biological systems and hence it is a significant indicator of environmental contamination.¹⁵

Heavy metals are classified among the most dangerous groups of anthropogenic environmental pollutants due to their toxicity and persistence in the environment.¹⁶ Mining and industrial processing are among the main sources of heavy metal contamination in the environment.¹⁷ Increasing anthropogenic influences on the environment, especially pollution loadings, have caused negative changes in the natural ecosystems, decreased biodiversity and lowered productivity. Thus, it is important to continually assess and monitor the levels of heavy metals in the environment due to anthropogenic activities, including mining activities, for the evaluation of human exposure and for maintaining a sustainable environment.

2 Materials and methods

2.1 Study area

Formerly the most important mining area in Europe, Trepča consisted of five mines. The Stari Trg mine is located in Northern Kosovo, near the town of Kosovska Mitrovica. At the end of the 1920s, an English company “Trepča Mines Limited” started the excavation of Pb and Zn in Stari Trg. Soon after, the flotation and the smelter of Pb in Zvečan began the process of production. These mining developments are about 2.5 km north of Kosovska Mitrovica, at the bank of the Ibar river. A chemical industry developed in 1959, and was soon followed by a battery factory and finally, metallurgy of Zn in 1967. These industrial facilities were located in the south of Kosovska Mitrovica at the bank of the Sitnica river. The work of the Trepča facilities for the past 60 years (1939–1999) created an enormous quantity of flotation tailings, metallurgical slag, intermediate products, mud, sludge, ash, *etc.* Nine active and passive large industrial dump areas are located near the Ibar and Sitnica rivers, about 1–2.5 km away from the town.^{18,19} The Ibar river carries the greater amount of the deposited material, because the Sitnica flows into the Ibar.

The study area included the northern part of Kosovska Mitrovica town, some locations around the Zvečan smelter and

the flotation tailings near Žitkovac, Fig. 1. The Trepča facilities were operating at full capacity about 30 years ago. A negative impact of the smelter on the environment is still present.²⁰ This study was carried out to estimate the radioactivity levels and the environmental pollution from heavy metals in the soil.

2.2 Geological features

The region of Kosovska Mitrovica belongs to a zone of tertiary magmatic activity.²¹ The variety in the geology is influenced by magmatic and tectonic phases. The formation of geological structures in the studied area relates to the period from the Ordovician–Silurian to the Quaternary. Middle Triassic volcanogenic sedimentary formations are characterized by clastics with volcanics, dolomites, marbles, carbonates, phyllites and green schists. Metamorphic rocks from this age cover an area of about 30 km² around Trepča. This formation is composed of argillaceous schists, cherts, gneisses and feldspathic micaschists.²² Jurassic ophiolitic mélanges northeast from Kosovska Mitrovica cover a narrow schist zone. The Cretaceous period includes “flysch”: marly limestones, sandstones and conglomerates. A characteristic volcanic cone in Zvečan formed in the Oligocene–Miocene period, as well as clays. Volcanic activity from these epochs produced large masses of extrusive rocks and pyroclastics along the Ibar valley and around Trepča.^{21,22} A quaternary overstep covered all of the mentioned formations with alluvium deposited by the rivers. The river sediments consisted of gravel, sand and mud layers.

Ore formations from the Late Palaeozoic era are characterized by hydrothermal-metasomatic replacement and vein types of Pb, Zn and other metals (Ag and Bi).²³

The environment of Kosovska Mitrovica has a continental climate with annual average temperatures, minimum and maximum, from -4 to $+28$ °C and an average annual air humidity of 77%. The average annual precipitation is 629 mm and there are about 60 windy days a year. Pollution of the air, water and soil occurs due to the weather conditions *i.e.* precipitation and wind.²⁰

2.3 Sampling and preparation

Soil samples from a non-agricultural area were collected from 16 sites in and around the town of Northern Kosovska Mitrovica, selecting locations with a high population density, Fig. 1. Samples were taken by a shovel from one joint sampling site of a 1 m² square during the spring of 2011. The surface soil samples were composed of subsamples of approximately equal volume, taken at up to a 5 cm depth from each angle and from the center of this square.²⁴ They were all enclosed in plastic bags and transported to the laboratory.

After removing stones and roots, each sample was dried at a temperature of 100–110 °C for about 2 hours to eliminate moisture. The samples were then ground, homogenized and passed through a 2 mm sieve to obtain a volume of 450 mL. The samples were stored in Marinelli beakers sealed by beeswax and left for more than 4 weeks to achieve a secular equilibrium between radium and its decay products.

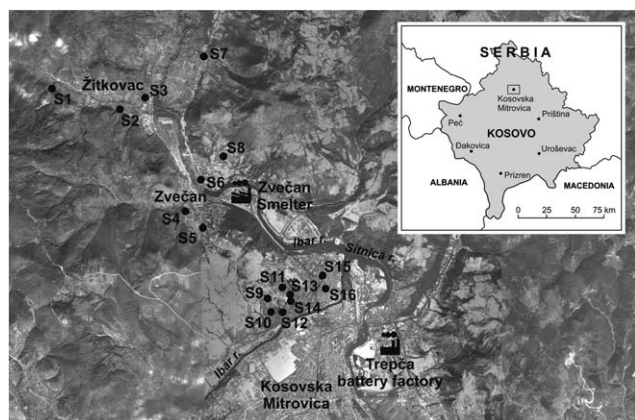


Fig. 1 Map of the studied area.

2.4 Determination of radioactivity in soil

The activity concentrations of the soil samples were measured nine months after sampling. The gamma spectrometric system used for the analysis consisted of a coaxial HP-Ge detector (GEM30-70, ORTEC) with a relative efficiency of 32% at 1.33 MeV (^{60}Co) and a multichannel analyzer. The system has an energy resolution (FWHM) of 1.85 keV at 1.33 MeV (^{60}Co). Detector calibration was done using a calibration source of a Marinelli mixture by the Czech Metrological Institute, Inspectorate for Ionizing Radiation (type MBSS 2 containing eleven radionuclides: ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{88}Y , ^{203}Hg , and ^{152}Eu). The detector was shielded with 10 cm lead in order to reduce the background.

The activity of each sample and the background was measured for 10 800 s under the same conditions. The gamma-activity of the radionuclides was determined through the intensity of the emission lines in the spectrum after a background subtraction. The specific activity of ^{226}Ra was determined as the weighted average activity obtained from two separate gamma-ray lines of its decay products, *i.e.* ^{214}Pb at 351.9 keV and ^{214}Bi at 609.3 keV. The specific activity of ^{232}Th was determined by the gamma-ray lines of ^{228}Ac (at the energies of 911.1 keV and 968.9 keV) and ^{208}Tl (at the energies of 583.0 keV and 860.6 keV). The specific activity of ^{40}K was obtained from the gamma-ray line of 1460.7 keV. The measured activity concentrations of ^{137}Cs were decay corrected to the sampling dates (May, 2011).

2.5 Determination of main physical and chemical characteristics and heavy metals in soil

The pH value in a 1 : 5 (v/v) suspension of soil in H_2O using a glass electrode was determined by the ISO method 10390:1994. The organic matter content was measured by oxidation, using the sulfochromic oxidation method ISO 14235:1998. The free CaCO_3 content was determined by the ISO 10693:1995 volumetric method.

The particle size distribution was determined in the <2 mm fraction by the internationally recognized pipette method. The size fractions were defined as coarse sand (200–2000 μm), fine sand (20–200 μm), silt (20 μm) and clay (2 μm). The soil texture was determined according to the ISSS soil texture classification.

The total heavy metal concentrations in the soil samples were determined by a microwave assisted digestion in accordance with the USEPA Method 3051A using the Milestone Ethos 1 microwave sample preparation system. The analysis was subsequently performed using ICP-OES (Varian Vista Pro-axial). A quality control was periodically carried out with the IRMM BCR reference materials CRM-141R and CRM-142R. The recoveries were within $\pm 10\%$ of the certified values.

The EDTA-extractable concentrations of heavy metals were determined by the EDTA extraction protocols for the IRMM BCR reference material CRM-484: 5 g soil/50 mL EDTA concentration 0.05 mol L^{-1} , pH = 7.00, with the extract being used to determine the heavy metal content using ICP-OES (Varian Vista Pro-axial). A quality control was periodically carried out with IRMM BCR reference material CRM 484. The recoveries were within $\pm 10\%$ of the certified values.

All the reagents were of analytical grade or better and blank samples were included in each extraction procedure. All the calibration standards were prepared in the same acid matrix used for the soil samples.

3 Results

3.1 Radioactivity levels

3.1.1 Activity concentrations of radionuclides. The activity concentrations of the natural and artificial radionuclides, with average values, are presented in Table 1. The calculated average activity concentrations of ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K and ^{137}Cs are: 40.6, 48, 743.2 and 81 Bq kg^{-1} , respectively. These values are higher in comparison with the average worldwide values of 32, 45 and 412 Bq kg^{-1} for ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K , respectively.²⁵ The average value obtained for the artificial radionuclide ^{137}Cs is higher than the values of 48.3 and 36.4 Bq kg^{-1} obtained from Serbia, given by Dragovic and Onjia²⁶ and Dugalic *et al.*,²⁷ respectively.

3.1.2 Absorbed dose rate and annual effective dose. The absorbed dose rate D (nGy h^{-1}) in the air at 1 m above the ground level due to the presence of natural radionuclides, was calculated according to the following formula:

$$D = 0.462A_{\text{Ra}} + 0.604A_{\text{Th}} + 0.0417A_{\text{K}} \quad (1)$$

where A_{Ra} , A_{Th} and A_{K} are the values of the specific activities for ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K (Bq kg^{-1}).²⁵ The results are shown in Table 1. The average value of 78.7 nGy h^{-1} (range 38.9–149 nGy h^{-1}) of the dose rate in air due to natural radionuclides in soil is higher than the average world range (50–59 nGy h^{-1}), but falls in the range of about 20–100 nGy h^{-1} for 90% of the world's population, using data provided in the annex of UNSCEAR.²⁵ It should be noted that the average contribution to the absorbed dose rate from the artificial radionuclide ^{137}Cs (2.4 nGy h^{-1}) is minor in comparison to the contributions of the natural radionuclides and is not taken into account. The annual effective dose of the nearby population was calculated using the conversion coefficient of 0.7 Sv Gy^{-1} , from the absorbed dose in air to the effective dose in the human body, according to the following equation:

$$D_{\text{E}} = 0.7Dtp \quad (2)$$

where t is the annual exposure time (8760 h) and p is the outdoor occupancy factor of 0.2 for the time spent outdoors. The average value of 96.6 μSv (range 47.7–182.7) is higher than the annual average value of 66 μSv for the external exposure to natural terrestrial sources of radiation,²⁵ Table 1.

3.1.3 Radium equivalent activity and external hazard index. The radium equivalent activity is a weighted sum of the ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K radionuclides based on the assumption that the activity concentrations of 10 Bq kg^{-1} ^{226}Ra , 7 Bq kg^{-1} ^{232}Th and 130 Bq kg^{-1} ^{40}K produce the same gamma-ray dose rates. The radium equivalent activity was calculated from the following relationship.²⁸

$$A_{\text{Ra,eq}} = A_{\text{Ra}} + 1.43A_{\text{Th}} + 0.077A_{\text{K}} \quad (3)$$

Table 1 Activity concentration of radionuclides, air-absorbed dose rates, annual effective doses, Ra equivalent activity and the external hazard index^a

Sample	²²⁶ Ra (Bq kg ⁻¹)	²³² Th (Bq kg ⁻¹)	⁴⁰ K (Bq kg ⁻¹)	¹³⁷ Cs (Bq kg ⁻¹)	<i>D</i> (nGy h ⁻¹)	<i>D_E</i> (μSv)	Ra _{eq} (Bq kg ⁻¹)	<i>H_{ex}</i> (Bq kg ⁻¹)
S1	27 ± 0.9	34.4 ± 2.2	695.2 ± 12.8	31.6 ± 0.7	62.2	76.3	129.7	0.35
S2	32.1 ± 1	36.6 ± 2.3	778.6 ± 13.1	86.9 ± 1.1	69.4	85.1	144.4	0.39
S3	<i>21.2 ± 1</i>	24.8 ± 2	550.1 ± 12.7	377.6 ± 2.5	47.7	58.5	99.0	0.27
S4	43.2 ± 1	44.4 ± 2.3	820.4 ± 12.6	23.3 ± 0.6	81	99.3	169.9	0.46
S5	32.6 ± 1	52.1 ± 2.4	833.8 ± 13.5	55.2 ± 0.9	81.3	99.7	171.3	0.46
S6	50.5 ± 1.4	69.8 ± 3.4	789.2 ± 15.6	34 ± 0.9	98.4	120.7	211.1	0.57
S7	<i>91.1 ± 1.6</i>	<i>103.8 ± 3.4</i>	1061 ± 15.6	46.5 ± 0.9	<i>149</i>	<i>182.7</i>	<i>321.2</i>	<i>0.87</i>
S8	73 ± 1.8	102.8 ± 4	<i>1148.7 ± 18.5</i>	33.6 ± 0.9	143.7	176.3	308.5	0.83
S9	31 ± 1.4	43 ± 2.2	579.3 ± 11.3	24.8 ± 0.6	64.5	79	137.1	0.37
S10	57 ± 1.4	67.2 ± 3.2	986.9 ± 16.2	60.4 ± 1.1	108.1	132.5	229.1	0.62
S11	31.4 ± 1.1	31.9 ± 2.2	688.3 ± 12.4	46.8 ± 0.9	62.5	76.6	130.0	0.35
S12	29.4 ± 0.9	29.4 ± 1.9	622.7 ± 11.6	24.8 ± 0.6	57.3	70.3	119.4	0.32
S13	35.1 ± 1	38.2 ± 2.2	574 ± 11.9	8.8 ± 0.4	63.2	77.5	133.9	0.36
S14	29.3 ± 1	34 ± 2	723.4 ± 13	<i>6.8 ± 0.4</i>	64.2	78.8	133.6	0.36
S15	24.7 ± 1.2	<i>20.3 ± 1.7</i>	<i>365.1 ± 11.3</i>	<i>385 ± 2.7</i>	<i>38.9</i>	<i>47.7</i>	<i>81.8</i>	<i>0.22</i>
S16	41.7 ± 1.2	35 ± 2.5	674.3 ± 12.5	49.7 ± 0.9	68.5	84	143.7	0.39
Average ± SD	40.6 ± 19	48 ± 25.4	743.2 ± 200.5	81 ± 119	78.7 ± 31.4	96.6 ± 38.5	166.5 ± 68.6	0.45 ± 0.19

^a The italic characters represent the minimum and maximum values.

The calculated radium equivalent activity ranged from 81.8 to 321.2, with an average value of 166.5 Bq kg⁻¹, Table 1. The maximum value is less than 370 Bq kg⁻¹, so the recommended limit is not exceeded.

The external hazard index *H_{ex}* is a modified quantity of the radium equivalent activity and it can be expressed by the following equation^{29,30}

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \quad (4)$$

and it should be lower than one. The calculated average value of the external hazard index is 0.45 and ranged from 0.22 to 0.87, Table 1. Therefore, the requirement is satisfied.

3.2 Basic physical and chemical characteristics of the soil

Table 2 shows the basic physical and chemical properties and texture of the analyzed soils. All the soil properties showed a high heterogeneity and ranged in a wide interval, with the exception of the pH which ranged between 7.17 and 8.34, indicating that all the analyzed soils were subalkaline to alkaline. The organic matter content ranged widely from 0.24 to 16.53% and the CaCO₃ content ranged in an even wider interval from 0.34 to 58.8%. The particle size distribution was also variable, with the clay component ranging 6–25%. In accordance with the ISSS soil texture classification, soil samples had a loam to clay loam texture.

3.3 Heavy metals

The background levels of the heavy metals in the soils of northern Kosovo were previously assessed by Borgna *et al.*²³ The authors found the following values: As = 24 mg kg⁻¹; Cd = 0.5 mg kg⁻¹; Cu = 30 mg kg⁻¹; Pb = 84 mg kg⁻¹ and Zn = 150 mg kg⁻¹.

Table 3 reports the total concentrations of the heavy metals in the analyzed samples. Most metals had a wide range of values spanning 2 to 3 orders of magnitude. This was particularly evident for Pb and Zn. The Pb concentrations varied from 390 to 34 160 mg kg⁻¹ and the Zn concentrations from 242 to 7389 mg kg⁻¹ and they were much higher than the background concentrations in the soils of northern Kosovo. The samples labeled S3 and S15, beside the high concentrations of Pb and Zn had an extremely high content of As and Cu. Only three samples (S1, S9 and S10) had an As content below the background level and only one sample (S10) had a Cu concentration similar to the background level typical for soils of northern Kosovo. The Cd concentrations ranged from 1.3 to 27.1 mg kg⁻¹ with an average value of 5.2 mg kg⁻¹ which is much higher than the estimated world average concentration of 0.1 mg kg⁻¹ (ref. 31) and the background level for the soils of northern Kosovo. The average content of Co in the analyzed soils was 15.9 mg kg⁻¹ which is close to the estimated world average content of 15 mg kg⁻¹.³² The Cr content in the soils ranged from 31.3 to 136 mg kg⁻¹ with the average concentration of 85 mg kg⁻¹ which is similar to the world average Cr content in soils, of 84 mg kg⁻¹.³³ The average Ni content in the analyzed soil was 151.9 mg kg⁻¹ which is approximately seven times higher than the world average content of Ni in soil.¹⁷

An EDTA extractable amount of heavy metal is used for an estimation of its availability for plants. It also indicates how strongly a heavy metal is bound to the soil components. Strongly bound metals are less available for plant uptake and EDTA extraction. Table 4 reports the percentages of the total heavy metals in the analyzed soil samples that can be extracted with EDTA. Compared to the very high total As concentration in sample S3, its EDTA extractable concentration was very low and represented only 5% of its total concentration, in contrast to sample S15 where the EDTA extractable As concentration was high and represented almost 30% of its total concentration. The

Table 2 The main physical and chemical characteristics of analyzed soils^a

Sample	pH	Organic matter (%)	CaCO ₃ (%)	Particle size distribution			
				Sand (200–2000 μm) (%)	Fine sand (20–200 μm) (%)	Silt (<20 μm) (%)	Clay (<2 μm) (%)
S1	8.27	<i>0.24</i>	<i>58.80</i>	12.83	<i>57.41</i>	15.68	14.08
S2	7.45	10.47	3.36	40.02	34.34	17.76	7.88
S3	<i>8.34</i>	0.42	53.34	16.96	49.28	17.72	16.04
S4	8.11	1.98	7.56	11.87	43.49	25.32	19.32
S5	7.76	3.67	6.72	30.70	31.46	24.56	13.28
S6	7.92	3.29	15.54	8.97	48.75	<i>33.84</i>	8.44
S7	7.91	3.10	7.14	11.16	43.00	33.48	12.36
S8	<i>7.17</i>	<i>16.53</i>	2.94	<i>0.36</i>	43.00	31.8	<i>24.84</i>
S9	7.73	3.12	4.20	28.07	39.17	22.68	10.08
S10	7.87	2.56	0.59	21.06	35.90	25.20	17.84
S11	7.57	3.32	2.10	36.85	33.35	19.52	10.28
S12	7.23	4.43	1.26	34.08	39.20	19.68	7.04
S13	7.22	5.59	4.20	16.13	<i>31.79</i>	31.76	20.32
S14	7.55	6.28	1.01	29.55	34.85	18.28	17.32
S15	7.37	4.74	<i>0.34</i>	<i>50.94</i>	35.82	<i>7.16</i>	<i>6.08</i>
S16	7.90	2.19	4.20	15.23	33.29	28.84	22.64
Average ± SD	7.71 ± 0.37	4.49 ± 4.02	10.83 ± 18.07	22.8 ± 13.5	39.63 ± 7.38	23.33 ± 7.45	14.24 ± 5.78

^a The italic characters represent the minimum and maximum values.

EDTA extractable Cu contribution in the total concentration varied from 23 to 53% and represented approximately 40% of the total concentration in the samples rich in Cu (S3 and S15). The extractable Pb concentrations in all the soil samples were high and represented approximately 50% of its total amount in the soil. The contribution of the EDTA extractable Zn in the total concentration varied from 5 to 33% and although the total Zn concentration in sample S3 was extremely high, only 9% of it was EDTA extractable, in contrast to sample S15 where 16% of the total Zn was EDTA extractable.

3.4 Correlation analysis

The statistical processing of the data was performed using the SPSS computer package, software version 16.0 for Windows. The correlations between the heavy metal content, radioactivity concentrations in soil and the basic soil properties were determined by means of the Pearson linear coefficient. The statistical significance of the Pearson correlations was determined by the Student's *t* test.

The Pearson correlations of the heavy metals and radionuclides with the physicochemical soil characteristics are shown

Table 3 Total concentrations of the heavy metals (mg kg⁻¹)^a

Sample	As	Cd	Co	Cr	Cu	Mn	Ni	Pb	Zn
S1	18.3	nd ^b	20.0	116	34.2	1150	238	<i>390</i>	284
S2	34.1	1.7	18.6	110	48.5	1129	228	1442	464
S3	<i>571</i>	12.0	<i>25.5</i>	<i>136</i>	233	<i>4724</i>	<i>423</i>	9902	2982
S4	26.7	nd	21.7	108	39.6	1170	218	643	242
S5	36.7	2.0	17.7	89.9	48.3	1142	125	1184	694
S6	93.2	4.6	12.8	53.7	67.3	1875	69.4	5946	529
S7	24.6	3.0	8.1	33.6	38.4	1467	<i>30.4</i>	2463	426
S8	31.5	4.9	7.9	<i>31.3</i>	77.0	1703	32.02	5132	725
S9	<i>15.7</i>	<i>1.3</i>	8.8	34.7	34.8	1106	42.4	1332	366
S10	16.6	1.5	14.7	75.3	<i>30.5</i>	1050	87.7	968	465
S11	71.5	5.9	17.5	128	82.7	1184	164	4692	632
S12	22.4	2.5	16.7	86.3	42.2	223	121	1676	353
S13	27.8	2.7	13.9	81.1	43.9	929	124	1899	265
S14	40.2	2.0	18.2	106	49.5	1111	274	1224	578
S15	351	<i>27.1</i>	12.6	81.6	<i>491</i>	1277	122	<i>34 160</i>	<i>7389</i>
S16	83.1	11.4	18.9	90.0	131	1332	126	8221	3738
Average ± SD	91.7 ± 151.7	5.2 ± 6.8	15.9 ± 5	85.3 ± 33	93.3 ± 117	1410 ± 952	151.9 ± 104	5080 ± 8263	1258 ± 1919

^a The italic characters represent the minimum and maximum values. ^b nd = not detected. The detection limit for Cd was 0.3 mg kg⁻¹.

Table 4 Percentages of the total heavy metals extracted with EDTA (%)

Sample	As	Cd	Co	Cr	Cu	Mn	Ni	Pb	Zn
S1	— ^a	—	—	—	22.51	9.22	3.03	30.00	10.28
S2	—	—	—	—	31.13	11.60	0.83	47.43	5.80
S3	4.96	48.3	20.4	—	31.12	17.19	5.79	46.08	9.49
S4	—	—	13.8	—	29.29	19.91	2.66	41.52	7.36
S5	—	50.0	16.9	—	35.61	27.93	6.24	52.70	7.35
S6	—	52.2	—	—	45.91	17.49	11.96	31.99	20.42
S7	13.4	70.0	—	—	51.30	30.06	14.14	63.30	33.80
S8	24.4	55.1	—	—	41.43	10.98	9.68	48.01	30.21
S9	—	75.4	—	—	53.45	19.89	9.91	52.33	18.01
S10	—	60.0	10.9	—	43.61	18.76	9.92	51.03	23.66
S11	10.2	42.4	—	—	34.95	8.78	1.22	44.78	7.63
S12	9.82	40.0	—	—	35.31	53.36	2.56	53.76	13.31
S13	—	48.1	—	—	28.47	2.97	0.97	48.34	9.89
S14	1.34	48.5	—	—	29.49	12.51	0.88	51.14	15.71
S15	29.6	79.3	—	—	34.01	15.82	4.92	53.04	15.93
S16	—	54.4	8.47	—	45.88	17.79	4.21	51.04	15.76

^a — Concentration below the detection limit.

in Table 5. The soil pH is correlated positively ($p \leq 0.05$) with Mn. The organic matter is positively correlated with the Cd, Cu, Zn ($p \leq 0.05$) and Pb ($p \leq 0.01$) concentrations. The CaCO₃ content is positively correlated with the As and Co ($p \leq 0.05$) and Mn and Ni ($p \leq 0.01$) concentrations. A significant negative correlation ($p \leq 0.05$) occurred between the coarse sand and Cu, Pb and Th. The fine sand content is positively correlated with Cr ($p \leq 0.05$) and As, Mn and Ni ($p \leq 0.01$). The clay and silt are weakly correlated with the heavy metal content, but there is a positive correlation of the silt ($p \leq 0.05$) with Ra and Th.

The Pearson correlations for the heavy metal content and radionuclide activities are shown in Table 6. A strong positive correlation is observed between Pb, Zn, Cu and Cd ($p \leq 0.01$). The correlation between Zn and Cd is in good agreement with the geochemical affinity of these elements (Zn sulphide can contain up to 4.5% of Cd). A strong positive correlation is also observed between Ni, Co and Cr.

A strong positive correlation among natural radionuclides: ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K ($p \leq 0.01$) and its moderate negative correlation with the artificial radionuclide ¹³⁷Cs is evident, especially with ⁴⁰K, Table 6. There is no significant correlation between ²²⁶Ra and heavy metals. But, there is a strong positive correlation between ⁴⁰K and ²³²Th and also among heavy metals: Pb, Cu and Cd ($p \leq 0.05$). ¹³⁷Cs and the presented heavy metals are not in correlation.

4 Discussion

Four analyzed soil samples stand out. In terms of the high heavy metal content these are S15 and S3, and in terms of the high radioactivity levels these are S7 and S8.

Sample S15 is of great interest with the lowest values for ⁴⁰K and ²³²Th, but the highest values of ¹³⁷Cs, Table 1. The differences in two orders of magnitude for ¹³⁷Cs in comparison with the other samples is influenced by the complex dispersion pattern of the radionuclide releases that the Chernobyl accident added to global fall-out and also the migration of cesium from one place to another by rain.³⁴ Since the migration of ¹³⁷Cs in deeper soil layers is very slow and insignificantly subject to the “wash off” effect, most radioactive particles (85%) are accumulated and retained in surface soils of 5 cm depth.³⁵ In addition, the retention of Cs in the surface soil depends on the local sorption capacity of the soil. The lowest content of CaCO₃, clay and silt is noted in sample S15, while it has the highest content of sand. In sandy soils that are low in clay and potassium, the cesium availability in soil may be enhanced by several orders of magnitude.³⁶ Also, the content of Pb, Zn and As in this sample is extremely high, and the reason for that could be the sample's position, which is located between southern and northern industrial facilities, thus implying many years of pollution from these two sources. Sample S16 is located in the neighbourhood of S15 (Fig. 1), but it does not have such an extremely high content of Pb, Zn and As. The smaller values of deposited heavy metals could be explained by the existence of several high rise buildings in the vicinity of S16. The presence of any obstruction like settlement, hill or high building (associated with wind direction) may keep back and reduce the deposition of heavy metals. In terms of radioactivity, sample S3 is similar to S15, while the high concentration of As in S3 could be caused by the vicinity of flotation tailings and the flat relief of the sampling locality. Sample S3 is characterized by the highest content of Mn, Ni and Co.

Many factors, including the soil chemical and physical properties and the origin of the heavy metals in the soil (anthropogenic or natural) affect the metal extractability. Significant differences in the percentages of the extractable metals (between different metals as well as between different soil samples) can be explained by a high heterogeneity of all the basic properties of the analyzed soils and the wide range of the total metal concentrations.

Table 5 The Pearson correlation matrix of the heavy metals and radionuclides with the soil physicochemical characteristics

	As	Cd	Co	Cr	Cu	Mn	Ni	Pb	Zn	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs
pH	0.204	-0.174	0.149	0.103	-0.178	0.509 ^a	0.324	-0.224	-0.233	-0.116	-0.101	-0.135	0.437
Organic matter	0.131	0.524 ^a	-0.071	0.054	0.594 ^a	-0.277	-0.087	0.635 ^b	0.571 ^a	0.348	0.431	0.488	-0.282
CaCO ₃	0.564 ^a	0.089	0.503 ^a	0.48	0.149	0.637 ^b	0.709 ^b	0.023	0.077	-0.284	-0.205	-0.229	0.363
Coarse sand	-0.445	-0.476	0.049	-0.075	-0.506 ^a	-0.252	-0.181	-0.502 ^a	-0.369	-0.433	-0.526 ^a	-0.306	-0.132
Fine sand	0.667 ^b	0.301	0.489	0.553 ^a	0.364	0.714 ^b	0.723 ^b	0.279	0.246	0.124	0.187	0.113	0.052
Silt	-0.049	0.239	-0.317	-0.145	0.21	-0.28	-0.198	0.258	0.147	0.550 ^a	0.622 ^a	0.349	-0.032
Clay	0.252	0.418	-0.331	-0.343	0.447	0.038	-0.245	0.485	0.359	0.145	0.189	0.121	0.282

^a The correlation is significant at the 0.05 level. ^b The correlation is significant at the 0.01 level.

Table 6 The Pearson correlation matrix for the heavy metals content and radionuclide activities

	As	Cd	Co	Cr	Cu	Mn	Ni	Pb	Zn	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs
As	1	0.724 ^b	0.384	0.365	0.769 ^b	0.823 ^b	0.569 ^a	0.655 ^b	0.688 ^b	0.121	0.216	0.237	-0.190
Cd		1	-0.160	0.070	0.977 ^b	0.320	0.075	0.976 ^b	0.976 ^b	0.450	0.544 ^a	0.544 ^a	-0.199
Co			1	0.926 ^b	0.053	0.361	0.884 ^b	-0.094	0.069	-0.195	-0.184	-0.165	-0.204
Cr				1	0.142	0.248	0.864 ^b	0.010	0.116	0.081	0.086	0.035	-0.167
Cu					1	0.345	0.178	0.981 ^b	0.960 ^b	0.414	0.531 ^a	0.526 ^a	-0.180
Mn						1	0.564 ^a	0.220	0.273	-0.104	-0.051	0.066	-0.111
Ni							1	0.009	0.120	-0.147	-0.073	-0.079	-0.080
Pb								1	0.949 ^b	0.477	0.580 ^a	0.588 ^a	-0.180
Zn									1	0.330	0.439	0.450	-0.173
²²⁶ Ra										1	0.948 ^b	0.843 ^b	-0.335
²³² Th											1	0.888 ^b	-0.363
⁴⁰ K												1	-0.497
¹³⁷ Cs													1

^a Correlation is significant at the 0.05 level. ^b Correlation is significant at the 0.01 level.

In contrast to samples S3 and S15, the highest values of the natural radionuclides were found at sample locations S7 and S8. Considering the geological features, this could be conditioned by the existence of a deep fault and seismogenic fault zones in the vicinity.^{4,21} Furthermore, it could be assumed that the locations S7 and S8 lie on a fault zone. Metamorphic rocks, volcanogenic–sedimentary and volcanogenic complexes (with metal bearing and non-metal raw materials) exist near these locations. As volcanic activity caused the faults, they consist of metamorphic rocks formed from fissure and crushed rocks, by great pressure and temperature. Therefore, they are highly permeable areas for groundwater to carry natural radionuclides to the fault surface.³⁷ Also, the relative mobility of radionuclides and their decay products during metasomatic activity results in movement upward to the ground surface, increasing the uranium, thorium and potassium concentrations. According to Table 3, the lowest values of Co, Cr and Ni were noted at these locations. From Table 6, it is apparent that there is no correlation between Co, Cr, Ni, Mn and the natural radionuclides. Considering the soil characteristics opposite to sample S15, the highest content of clay and the lowest content of sand are noted at location S8. One could infer that in soils with a high clay content and low sand content, a higher activity concentration of natural radionuclides could be expected and *vice versa*.

There is a strong positive correlation between the Pb, Cd and Zn total concentrations in the soil, which is in contrast with the results obtained by Borgna *et al.*²³ who did not find a significant correlation between Pb and Zn and Pb and Cd in soils from Northern Kosovo. A strong positive correlation between these three elements was found in soils near Pb/Zn mining and smelting areas in Poland³⁸ and Spain.³⁹ These statistically positive correlations corresponded to the classic metallogenic association between these three metals. The strong positive correlations between Ni, Co and Cr are in good agreement with correlations found by Borgna *et al.*,²³ where a mutual geogenic origin of these elements was proposed.

The Dutch intervention values for Pb, Cd, As and Zn in soils are 530, 12, 55 and 720 mg kg⁻¹, respectively.⁴⁰ The concentrations of Pb detected in this study were significantly higher than the Dutch intervention values in all the samples, except in

S1, which was the farthest from the sources of pollution. The most contaminated sample, compared to the Dutch intervention values was S15 with the As and Zn concentrations ten times exceeding the intervention values and a Pb concentration more than 60 times exceeding the Dutch values.

5 Conclusion

The following remarks could be derived:

The high average values of the radionuclides and the heavy metal content in the soil of the North Kosovska Mitrovica locality have been estimated. As a consequence of elevated average radioactivity level, the calculated average annual effective dose of the nearby population is also higher than the UNSCEAR recommended value. Data on the radioactivity levels are provided for the first time for the studied area.

The wide range of results indicates a non-uniform distribution for both the radionuclides and heavy metals. It is caused by different geological structures, different sorption capacity of the soils, metallogenic associations and lastly, the uneven apportionment of pollutants from industrial processing facilities.

A strong positive correlation ($p \leq 0.01$) among the natural radionuclides (²²⁶Ra, ²³²Th and ⁴⁰K) and its moderate negative correlation with the artificial radionuclide ¹³⁷Cs need to be emphasized. A significant correlation ($p \leq 0.01$) was found between the heavy metals Cd, Cu, Pb and Zn.

The results of the analyzed soil samples indicated that years of extensive mining operations and thereby permanent pollution have left consequences on the environment. More attention has to be devoted to soil remediation and adequate countermeasures, with the aim of further protection of humans and their surroundings.

Acknowledgements

The present work was supported by the Ministry of Education and Science of the Republic of Serbia, under the Project no. 171021 and Project no. 41028.

Notes and references

- 1 UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), *Sources and Effects of Ionizing Radiation*, Report to General Assembly, with Scientific Annexes UN, New York, 2000.
- 2 H. M. Khan, M. Ismail, K. Khan and P. Akhter, *Chin. Phys. Lett.*, 2011, **28**, 019301.
- 3 M. Tzortzis, H. Tsertos, S. Christofides and G. Christodoulides, *Radiat. Meas.*, 2003, **37**, 221–229.
- 4 S. Singh, A. Rani and R. K. Mahajan, *Radiat. Meas.*, 2005, **39**, 431–439.
- 5 I. F. Al-Hamarneh and M. I. Awadallah, *Radiat. Meas.*, 2009, **44**, 102–110.
- 6 M. Marocchi, S. Righi, G. Maria Bargossi and G. Gasparotto, *Radiat. Meas.*, 2011, **46**, 538–545.
- 7 IAEA, *International basic safety standards for protection against ionizing radiation and for safety of radiation sources*, Safety Series No. 115, 1996.
- 8 M. Tzortzis, E. Svoukis and H. Tsetos, *Radiat. Prot. Dosim.*, 2004, **109**, 217–224.
- 9 A. I. Abd El-mageed, A. H. El-Kamel, A. Abbady, S. Harb, A. M. M. Youssef and I. I. Saleh, *Radiat. Phys. Chem.*, 2011, **80**, 710–715.
- 10 R. M. Anjos, E. Okuno, P. R. S. Gomes, R. Veiga, L. Estellita, L. Mangia, D. Uzeda, T. Soares, A. Facure, J. A. P. Brage, B. Mosquera, C. Carvalho and A. M. A. Santos, *Eur. J. Phys.*, 2004, **25**, 133–144.
- 11 V. R. K. Murty and N. Karunakara, *Radiat. Meas.*, 2008, **43**, 1541–1545.
- 12 A. M. G. Figueiredo, J. Enzweiler, S. P. Camargo, J. B. Sígolo, F. C. Gumiero, A. C. Pavese and F. M. Milian, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 2009, **280**, 419–425.
- 13 F. Mireles, J. L. Pinedo, J. I. Davila, J. E. Oliva, R. J. Speakman and M. D. Glascock, *Microchem. J.*, 2011, **99**, 20–25.
- 14 F. Mireles, J. I. Davila, J. L. Pinedo, E. Reyes, R. J. Speakman and M. D. Glascock, *Microchem. J.*, 2012, **103**, 158–164.
- 15 L. Janković Mandić, R. Dragović and S. Dragović, *J. Geochem. Explor.*, 2010, **105**, 43–49.
- 16 B. J. B. Nyarko, S. B. Dampare, Y. Serfor-Armah, S. Osae, D. Adotey and D. Adomako, *Int. J. Environ. Pollut.*, 2008, **32**, 467–476.
- 17 D. C. Adriano, *Trace Elements in the Terrestrial Environment*, Springer-Verlag, New York, 1986.
- 18 M. Barać, B. G. Nikolić and Z. Barać, *Tehnika*, 2003, **54**, 7–14.
- 19 Northern Kosovska Mitrovica, North Kosovska Mitrovica Municipality, OSCE-Profile of Kosovska Mitrovica, 2010, 1011_en.pdf.
- 20 M. Barać, S. Stanisić, M. Parlić, Z. Bukumirić, N. Vitas and P. Manojlović, *Local ecological action plan – Northern Kosovska Mitrovica*, Kosovska Mitrovica, 2010.
- 21 Ministry of Environment and Spatial Planning Republic of Serbia, *Geological Atlas of Serbia*, 2008.
- 22 M. D. Dimitrijevic, *Geology of Yugoslavia*, Geol. Inst. GEMINI, Belgrade, 1997.
- 23 L. Borgna, L. A. Di Lella, F. Nannoni, A. Pisani, E. Pizzetti, G. Protano, F. Riccobono and S. Rossi, *J. Geochem. Explor.*, 2009, **101**, 137–146.
- 24 *Soil sampling for environmental contaminants*, IAEA-TECDOC-1415, IAEA, Vienna, 2004.
- 25 UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), Vol. I, Annex B: Exposure of the public and workers from various sources of radiation, United Nations, New York, 2008.
- 26 S. Dragovic and A. Onjia, *J. Environ. Radioact.*, 2006, **89**, 150–158.
- 27 G. Dugalic, D. Krstic, M. Jelic, D. Nikezic, B. Milenkovic, M. Pucarevic and T. Zeremski-Skoric, *J. Hazard. Mater.*, 2010, **177**, 697–702.
- 28 N. Q. Huy and T. V. Luyen, *Radiat. Prot. Dosim.*, 2006, **118**, 331–336.
- 29 J. Beretka and P. J. Mathew, *Health Phys.*, 1985, **48**, 87–95.
- 30 C. Papastefanou, S. Stoulos and M. Manolopoulou, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 2005, **266**, 367–372.
- 31 H. Heinrich, B. Schultz-Dobrick and K. J. Wedepohl, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1980, **44**, 1519–1532.
- 32 H. Aubert and M. Pinta, *Trace elements in soils*, Elsevier, Amsterdam, 1977.
- 33 H. J. M. Bowen, A. M. Ure and M. L. Berrow, *Environmental Chemistry*, 1982, **2**, 94–204.
- 34 N. Celik, U. Cevik, A. Celik and B. Kucukomeroglu, *J. Environ. Radioact.*, 2008, **99**, 1349–1354.
- 35 L. Jankovic-Mandic and S. Dragovic, *Proceedings of XXVI DZZSCG Symposium*, 2007, 63–67.
- 36 E. Van der Stricht and R. Kirchmann, *Radioecology, radioactivity and ecosystems*, Oupeye, Belgium, 2001, p. 405.
- 37 O. Baykara and M. Dogru, *Radiat. Meas.*, 2006, **41**, 362–367.
- 38 S. M. Ullrich, M. H. Ramsey and E. Helios-Rybicka, *Appl. Geochem.*, 1999, **14**, 187–196.
- 39 R. Oyarzun, J. Lillo, J. A. Lopez-Garcia, J. M. Esbri, P. Cubas, W. Llanos and P. Higuera, *J. Geochem. Explor.*, 2011, **109**, 113–124.
- 40 Soil Remediation Circular, Ministry of Housing, Spatial Planning and Environment Directorate-General for Environmental Protection (Dutch Guidelines), 2009.

INDOOR RADON MAPPING: A SURVEY OF RESIDENTIAL HOUSES OF KOSOVO AND METOHİJA*

GORDANA MILIC¹, LJILJANA GULAN^{1,*}, PETER BOSSEW², BILJANA VUCKOVIC¹
and ZORA S. ZUNIC³

- ¹ Faculty of Natural Sciences, University of Pristina, Lole Ribara 29, 38200 Kosovska Mitrovica, Serbia, E-mail: gmgordanamilic@gmail.com, ljgulan@gmail.com, biljanavuck@gmail.com
² Bundesamt für Strahlenschutz (German Federal Office for Radiation Protection), Köpenicker Allee 120-130, 10318 Berlin, Germany, E-mail: pbossew@bfs.de
³ Institute of Nuclear Sciences “Vinca”, University of Belgrade, PO Box 522, 11000 Belgrade, Serbia, E-mail: zzunic@verat.net

Received November 15, 2012

A first step in mapping indoor radon concentration in Kosovo and Metohija was taken by carrying out 153 measurements in residential houses. About 21% of the territory of these areas was covered by mapping. Dosimeters with CR-39 detectors were used to measure indoor ²²²Rn concentration, all deployed on the ground floor of typical houses. The arithmetic mean (AM) over AMs within 10 km x 10 km grid cells is 202 Bqm⁻³ and geometric mean (GM) is 148 Bqm⁻³. The data for mapping are arranged according to recommendations made by the Joint Research Centre (JRC) of the European Commission (EC) in 2006. This paper presents the status of the survey of natural radioactivity in Kosovo and Metohija.

Key words: indoor radon, mapping, CR-39 detectors, residential houses, Kosovo and Metohija.

1. INTRODUCTION

The UNSCEAR report states/remarks that the inhalation of short-lived decay products of radon gas ²²²Rn₈₆ accounts for about half of the effective dose equivalent which man receives from all natural sources of radiation requires the investigations of radon presence in the residential areas [1]. Since 1995 the radon measurements were conducted in rural and urban communities, municipalities and mines of Kosovo and Metohija by the Faculty of Natural Sciences at the University of Pristina. Subsequently, Vinca Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, with technical and methodological support from foreign countries, joined the activity in 1996. The results presented here are part of continuous radon investigations of

* Paper presented at the First East European Radon Symposium – FERAS 2012, September 2–5, 2012, Cluj-Napoca, Romania.

residential houses in rural communities. The investigations were made in two series of measurements: 43 measurements in 7 settlements during the 1990s and 110 measurements in 39 settlements during the 2000s [2, 3, 4]. In each series of measurements new locations and houses were included in these areas, in order to identify radon-prone areas and to make a radon risk map.

As a gaseous product of disintegration in uranium the ^{238}U series, the inert gas radon ^{222}Rn with a half-life of 3.82 days, could be found far away from its source. Indoor radon investigations were started however in houses of Gornja Stubla, which is located in a terrain with a known uranium-thorium anomaly [5]. On the same geological unit radon levels vary widely between seemingly identical buildings made of different building materials [2]. Because of that, no map can predict the radon level in an individual building. Alternatively, maps can provide estimates of the mean radon levels in buildings on a reference grid. In this paper radon levels are shown on maps with a grid cell resolution of 10 km x 10 km. Out of 132 cells in total, 23 are non-empty cells that represent annual or estimated annual values of radon concentrations in living rooms or bedrooms in individual ground-floor houses. The choice of ground floor is in accordance with the real lifestyle in typical residential houses of Kosovo and Metohija.

2. EXPERIMENTAL WORK

All measurements of indoor radon concentrations were made using a passive method with application of CR-39 solid-state nuclear track detectors. Characteristics of the measurements are shown in Table 1. Etching and alpha-track counting were conducted in the laboratory of Physics at the University Priština in Kosovska Mitrovica for the first 17 measurements (Table 1).

Applied dosimeters came from Jozef Stefan Institute, Ljubljana (JSI in Table 1) [6]. SSI/NRPB (Swedish Stockholm Institute designed diffusion chamber, intercalibrated in National Radiological Protection Board, Oxon, UK) dosimeters were used to measure 26 radon concentrations [3]. Measurements of ^{222}Rn and ^{220}Rn with passive discriminative radon/thoron CR-39 detectors commercially known as RADUET (analyzed by Japanese collaborators) started in 2007 [7].

2.1. AVAILABLE DATA

Out of 46 settlements located in 13 municipalities, 153 measurements of indoor radon concentration are available (43 results obtained during the 1990s in 7 settlements and 110 in the 2000s in 39 settlements) (Table 2). The measurements were performed either in living rooms or in bedrooms of a rural type, individual ground-floor houses. However the measurements were carried out in different

rooms, and the radon concentrations were averaged over each house. The old and new houses were included in the investigations. The density of measurements was differed, being higher in locations with higher indoor radon concentration. The exposure periods of the detectors in the houses differed. Annual measurements with four replacements of detectors for all seasons showed the highest indoor radon concentrations in autumn, and the lowest in summer. Radon accumulates in houses, because they are poorly ventilated in the autumn. Also, its exhalation is higher in the autumn, rather than in the winter from the frozen soil [8]. A half year of measurements did not show seasonal variations in period winter-spring or summer-autumn. The difference of means values is insignificant (t-test for independent samples; the two-tailed P value equals 0.95), so the half year measurements are appropriate (adequate) to annual. The character of indoor radon seasonal variation with minimum in warm and maximum in cold seasons is likely to be associated with a determinant contribution of convection type of radon entry and soil radon as primary source of indoor radon [9].

Table 2 shows the estimated percentage of values above 100 Bq m^{-3} (thresholds have been proposed, *e.g.* a “reference level” of 100 Bq m^{-3} by WHO (2009)) [10] and 400 Bq m^{-3} (the level above which mitigation is recommended for individual houses by the EC (1990) [11]). The measurement characteristics for all houses, mean values of measurements in the settlements, municipalities and cells are shown in Table 3.

Table 1

Characteristics and number of measurements

Dosimeter type	Number of measurements	Measurements time (days)	Measurement season
JSI	17	62	winter-spring
SSI/NRPB	26	one year	all seasons
RADUET	61	69-82	winter-spring or summer-autumn
RADUET	49	149-155	Winter and spring

Table 2

Characteristics of indoor radon concentrations (Bq m^{-3}) by municipalities (settlements)

Municipalities (Settlements)	N	Min Bq m^{-3}	Max Bq m^{-3}	AM Bq m^{-3}	GM Bq m^{-3}	% above 100 Bq m^{-3}	% above 400 Bq m^{-3}
Leposavić (Jarinje, Ostraće, Lešak, Kutnje, Joševik, Leposavić, Ibarska Slatina, Sočanica)		14	533	103	64	33	3

Table 2 (continued)

Zvečan (Žerovnica, Brdani, Grabovac, Žitkovac)	7	30	1017	292	167	68	21
Vučitrn (Priluzje, Gojbulja)	2	176	411	293	269	99	15
Obilić (Plemetina, Babin Most, Miloševo)	6	51	176	89	82	30	1·10 ⁻³
Gračanica (Gračanica, Bađovac, Sušica, Laplje selo, Livade, Donja Gušterica, Preoce)	24	12	1361	354	119	55	21
Lipljan (Lipljan, Radevo, Staro Gracko, Rabovce, Dobrotin, Lepina, Suvi Do)	28	43	1640	531	322	85	42
Štrpce (Štrpce, Sevice, Donje Bitinje, Popovci, Vrbeštica, Gotovuša, Jažince, Ski centar Brezovica, Hotel Narcis)	19	13	88	53	46	8	7·10 ⁻³
Kosovo Polje	2	327	398	363	361	100	15
Prizren	12	64	800	163	117	59	3
Gnjilane (Šilovo)	1	35	35	35	35		
Vitina (Gornja Stubla)	28	81	6010	804	446	92	54
Peć (Goraždevac)	5	29	232	109	87	42	2
Priština (Donja Brnica)	1	36	36	36	36		

Table 3

Characteristics of indoor radon surveys

Group	N	AM Bq m ⁻³	GM Bq m ⁻³	GSD	% above 100 Bq m ⁻³	% above 200 Bq m ⁻³	% above 400 Bq m ⁻³
All houses	153	354	156	4.9	61	44	27
Average by settlements	46	177	103	2.8	51	27	9
Average by municipalities	13	248	162	2.7	68	42	18
Average by cells	23	202	148	2.5	67	37	14

3. DISCUSSION

By the KS test, the data of indoor radon concentration of surveyed houses (153 data) is unlikely to be log-normally distributed: $P = 0.08$ (Figure 1). Basically a log-normal distribution is expected under condition of random selection of

houses for indoor radon measurements and uniform distribution of houses through the investigation area. As can be seen from Table 2, the number of surveyed houses varies over the settlements, and some municipalities may inadequately contribute to the average value. In this case the characteristics obtained by consideration of radon concentrations averaged over settlements, municipalities and 10 km x 10 km cells more adequately characterize the radon problem in the territory. At the same time the averaging reduced the assessment of *Geometric Standard Deviation* (GSD) from 4.9 to 2.5. The population-weighted mean value is 225 Bqm⁻³. Empirical (cumulative) distributions of indoor radon concentration over *Arithmetic Mean* AMs within cells (data for 23 cells) are shown in Figure 2.

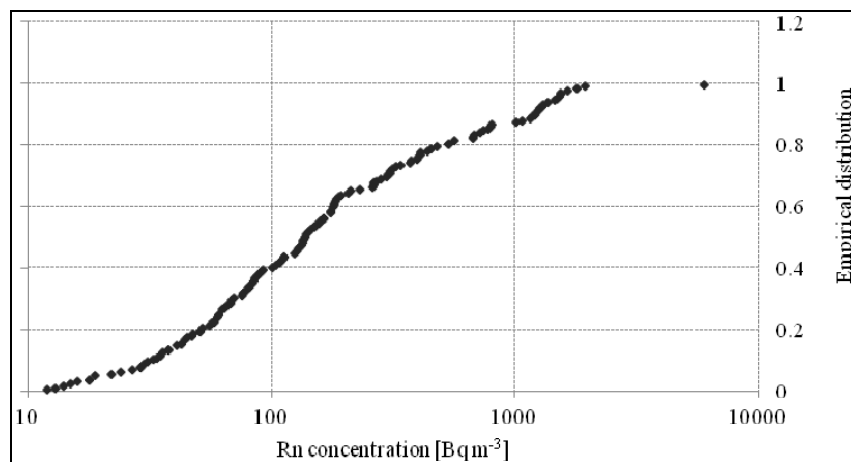


Fig. 1 – Empirical (cumulative) distribution of indoor radon concentration of the 153 measurements.

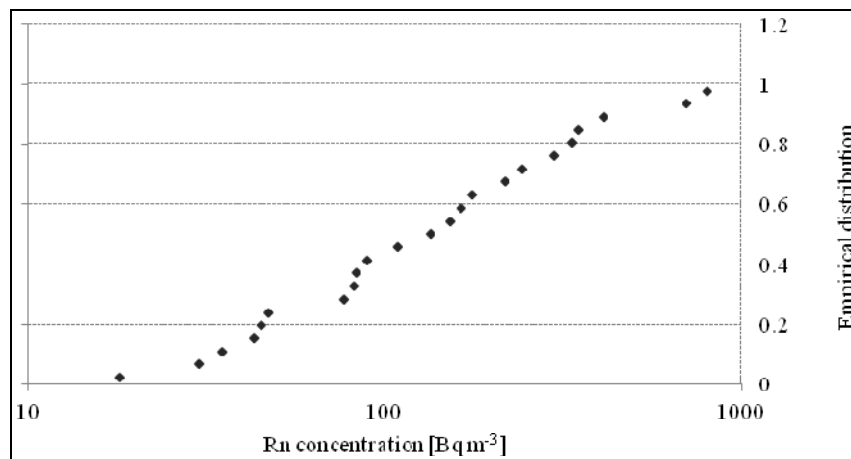


Fig. 2 – Empirical (cumulative) distribution of indoor radon concentration over the AMs within 23 cells: (KS finds that the data are consistent with a log normal distribution: $P = 1.00$).

Possible seasonal variations are avoided by measuring either in winter-spring or summer-autumn. Contributing to the uncertainties of the result are great time intervals between measurements, different exposure time of detectors and different calibration of dosimeters.

Table 4 provides descriptive statistics for the data set on which the indoor radon map is based. Percentages are relative to the number of cells with an appropriate concentration.

Table 4

Descriptive statistic of the data set on which the indoor radon map is based

Number of non-empty cells	23
Measurements per cell	6.65 ±5.92
Min/Max. no. of measurements per cell	1/28
Total number of measurements	153
Cell mean, AM ±CV%	202 ±103%
MED±MAD	134±89
Percentage > 400 Bqm ⁻³	13
Percentage > 200 Bqm ⁻³	34.8
Percentage >100 Bqm ⁻³	56.5
GSD	2.7

CV, coefficient of variation; MAD, mean absolute deviation

Arithmetic means and number of measurements inside the 10 km x 10 km cells of indoor radon concentration in ground floor rooms in residential houses across Kosovo and Metohija are shown on Figure 3. The map has 132 cells in total, of which 23 non-empty cells with data based on 153 measurements. An administrative map with municipalities and larger settlements is shown on Figure 4 in order to clarify the sampling density of measurements with population density.

The map reveals a spatial trend in indoor radon concentration, *i.e.* regions with lower and higher concentrations. In the Southeastern part of Kosovo and Metohija (Gornja Stubla), high levels of radon concentrations are influenced by geology and building materials used for house construction from that terrain with known, high content of uranium in underlying rocks. On the opposite, no correlation between indoor radon and geology was found in Central part of Kosovo and Metohija (Gračanica, Lipljan municipalities) (results are not published yet). The average specific activity (and the derived quantities) of natural radionuclides in soil was found to be lower than the worldwide average values (for ²²⁶Ra, ²³²Th and ⁴⁰K are 32, 45 and 412 Bq kg⁻¹, respectively) [12]. Although the highest indoor radon concentration and the highest radium specific activity in soil were measured in the same location (Susica), the indoor radon levels appear to be more affected by parameters other than the radium content in soil (results not yet published). Also, in some settlements in North part of Kosovo and Metohija (Joševik, Grabovac, Brđani settlements) higher indoor radon concentrations than average were measured,

together with higher estimated values of radium activity concentration in soil. A reason for that could be geological causality.

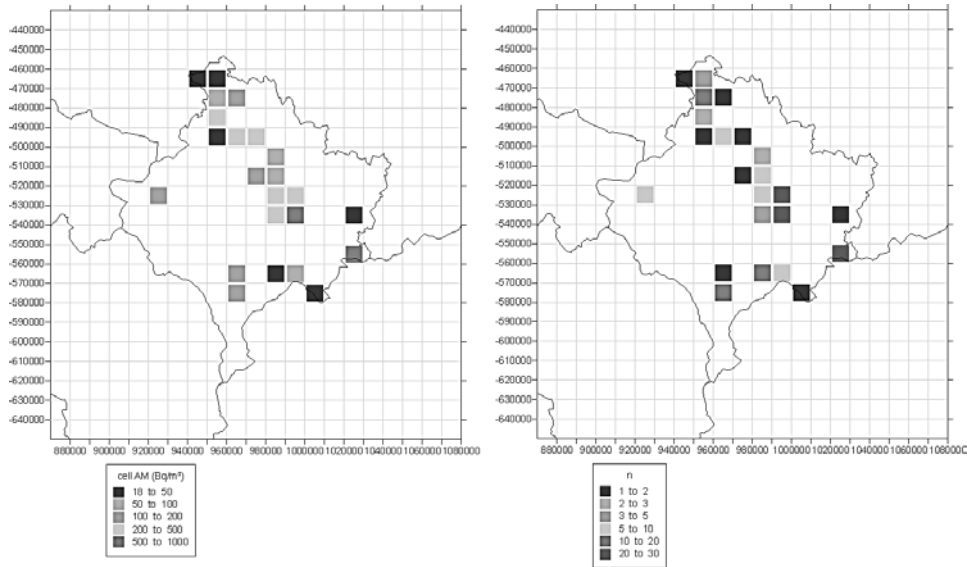


Fig. 3 – Indoor radon map. Arithmetic means of indoor radon concentrations in 10 km x 10 km cells and number of measurements per cell. Axis units: [m].



Fig. 4 – An administrative map of Kosovo and Metohija with municipalities.

Furthermore, one important parameter is building material which is of local origin, and another is absence of concrete slabs as a protection against radon penetration from the ground in older houses.

4. CONCLUSIONS

More than half (59%) of the non-empty cells in the map has AMs above 100 Bqm⁻³, and 12% above 400 Bqm⁻³. The arithmetic mean of indoor radon concentration (AM) over AMs cells is 202 Bqm⁻³, which is more than twice of the AM of all non-empty cells in the European Indoor Radon Map (99 Bqm⁻³) [13]. The measured indoor radon concentration in the surveyed houses ranged from 12 to 6010 Bqm⁻³, with an arithmetic mean for all houses of 354 Bqm⁻³. Based on the results of the applied measurements, the following percentages are estimated: 61% of the houses with indoor radon concentration greater than 100 Bqm⁻³ and 27% with indoor radon concentration greater than 400 Bqm⁻³.

Some regions in Kosovo and Metohija, where houses are built from stone with a relatively high uranium concentration, could be classified as radon prone areas. One confirmation of geological causality between indoor ²²²Rn and ²²⁶Ra in soil is the highest indoor radon and radium activity concentrations in soil obtained at some locations. Through mapping, areas with the average indoor radon concentration became visible. That could be used as a recommendation when building houses and for doing the proper protection and taking all other measures in order to reduce the presence of radon.

FUNDING. This work was supported by the projects P 41028 and P43002 of the Ministry of Education and Science of the Republic of Serbia.

Acknowledgments. The authors highly appreciate the kind cooperation of the owners of the houses where the detectors were deployed.

REFERENCES

1. United Nations. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Report to the General Assembly, with scientific annexes*. United Nations sales publication E.94.IX.2. United Nations, New York, 1993.
2. Jakupi, B., Krstić, G., Tonić, M. and Ilić, R. *Radon in mines and dwellings in Kosovo and Metohija*. *Radiation Measurement* **28** 1–6, 691–694, 1997.
3. Zunic, Z.S., Fujimoto, K., Mc Laughlin, J.P. and Birovljev, A. *Field Experience of Indoor Thoron Gas Measurements in a Stable Rural Community in Yugoslavia*. IRPA 10, 10th International Congress of The International Radiation Protection Association “Harmonization of Radiation, Human Life and the Ecosystem”, International Conference Center Hiroshima, May 14–19, 2000, Hiroshima, Japan, Proceedings, CD-ROM, P-1b-15/1-5, 2000.

4. Milić G., *Indoor distribution of radon in some regions of Kosovo and Metohija*. PhD dissertation, Kosovska Mitrovica, 2003.
5. Jakupi, B., Bytyçi M., Todorović Ž. and Antanasijević R., *Prospect for uranium using solid state nuclear track detector*. Proc. 1st.Yugoslav Symp. on Solid State Nuclear Track Detectors, Belgrade, 1988.
6. Šutej T, Ilić R, Najžer M., *Response of track-etch dosimeters to environmental radon*. Nucl. Tracks Radiat. Meas. 15 (1-4): 547–550, 1988.
7. Tokonami S, Takahashi H, Kobayshi Y, Zhuo W, Hulber E., *Up-to-date radon-thoron discriminative detector for a large scale survey*. Rev. Sci Instrum. 76: 113505, 5 pages, 2005.
8. Milic G., Yarmoshenko I.V., Jakupi B., Kovacevic M., Žunic Z.S., *Indoor radon measurement in Kosovo and Metohija over the period 1995–2007*. Radiation Measurements, **46**, 141–144, 2011.
9. Arvela H., *Seasonal variation in radon concentration of 3000 dwellings with model comparison*. Radiation Protection Dosimetry 59 (1) pp. 33-42, 1995.
10. World Health Organization. WHO Handbook on Indoor Radon: A Public Health Perspective. WHO, ISBN 97892 4 1547673, http://www.who.int/ionizing_radiation/env/radon/en/index1.html, 2009.
11. European Commission, *Commission Recommendation of 21 February 1990 on the protection of the public against indoor exposure to radon*. Official Journal L 080, 90/143/Euratom, 1990.
12. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) Vol. I, Annex B: *Exposure of the public and workers from various sources of radiation*, United Nations, New York, 2008.
13. Tollefsen T., Gruber V., Bossew P. and De Cort M.. *Status of the European Indoor Radon Map*. Radiation Protection Dosimetry, Vol. 145. No. 2–3, pp. 110–116, 2011.

Биографија

Љиљана Гулан (девојачко Чолић) је рођена 04. јуна 1973. године у Приштини. Основну школу завршила је са одличним успехом, као носилац дипломе “Вук Стефановић Караџић”. Након тога уписује гимназију природно-математичког смера „Иво Лола Рибар“ у Приштини и завршава је одличним успехом. Природно-математички факултет у Приштини, студијска група физика, завршила је 08.09.1998. године са просечном оценом 8.10 и стекла стручно звање професор физике. Исте године уписује магистарске студије на Институту за физику Природно-математичког факултета у Крагујевцу, смер Радијациона физика, а школске 2007/08 године прелази на програм докторских академских студија.

Од 1999. године ради као асистент-приправник на Природно-математичком факултету у Приштини. Од 2008. године Љиљана Гулан ради у звању асистента за научну област Експериментална физика на Природно-математичком факултету у Приштини са привременим седиштем у Косовској Митровици. Ангажована је на научном пројекту Министарства за образовање, науку и технолошки развој Републике Србије.

Живи са супругом и троје деце у Београду.

Листа објављених радова кандидата

Радови из области докторске дисертације:

1. **Lj. Gulan**, G. Milic, P. Bossew, Y. Omori, T. Ishikawa, R. Mishra, YS Mayya, Z. Stojanovska, D. Nikezic, B. Vuckovic, Z. S. Zunic: *Field experience on indoor radon, thoron and their progenies with solid state detectors in a survey of Kosovo and Metohija (Balkan region)*

Radiation Protection Dosimetry (2012) Vol. 152(1-3):p 189-197

ISSN 0144-8420

DOI:10.1093/rpd/ncs221

[Импакт Фактор **0.909**-2012; 16/34; Subject Category: Nuclear Science & Technology] [M22]

2. **Ljiljana Gulan**, Francesco Bochicchio, Carmela Carpentieri, Gordana Milic, Jelena Stajic, Dragana Krstic, Zdenka Stojanovska, Dragoslav Nikezic and Zora S. Zunic *High annual radon concentration in dwellings and natural radioactivity content in nearby soil in some rural areas of Kosovo and Metohija (Balkan region)*

Nuclear Technology and Radiation Protection (2013) Vol. 28(1):60-67

ISSN 1451-3994

[Импакт Фактор **1.000**-2012; 14/34; Subject Category: Nuclear Science & Technology] [M22]

3. Gordana Milic, **Ljiljana Gulan**, Peter Bossew, Biljana Vuckovic and Zora S. Zunic *Indoor radon mapping: a survey of residential houses of Kosovo and Metohija*

Romanian Journal of Physics (2013) Vol. 58: S180–S188

ISSN 1221-146X

[Импакт Фактор **0.526**-2012; 68/83; Subject Category: Physics, Multidisciplinary] [M23]

4. **Ljiljana Gulan**, Biljana Milenkovic, Jelena Stajic, Biljana Vuckovic, Dragana Krstic, Tijana Zeremski, Jordana Ninkov, *Correlation between radioactivity levels and heavy metal content in the soils of North Kosovska Mitrovica environment*

Environmental Science: Processes & Impacts (2013) Vol. 15: 1735-1742

ISSN: 1464-0325

DOI:10.1039/c3em00208j

[Импакт фактор: **2.085**-2012; 84/209; Subject Category: Environmental Sciences] [M22]

Остали радови из Радијационе физике:

5. Biljana Vuckovic, **Ljiljana Gulan**, Gordana Milic, Feriz Adrovic, Dragan Radovanovic, *Overview of radon concentrations in air and in water in Serbia*
Proceedings of Second East European Radon Symposium *SEERAS 2014*, 39-42, 27–30 May, 2014, Niš, Serbia ISBN 978-86-6125-101-6 [M-33]

Радови у научним часописима националног значаја

6. B. Vučković, **Lj. Gulan**, G. Milić, F. Adrović, P. Manojlović, *Istraživanje koncentracije aktivnosti radona u zatvorenim prostorijama*
Medicinska praksa, vol.35, pp.19-23, 2011 ISSN 0350-2945 [M-53]
7. Biljana Vučković, **Ljiljana Gulan**, Gordana Milić, Aleksandra Arsić, Feriz Adrović, *Detekcija radona u mineralnim vodama nekih banjskih centara Srbije*
Medicinska praksa, vol.36, pp.7-12, 2012 ISSN 0350-2945 [M-53]

Саопштења на међународним научним конференцијама:

8. **Lj. Gulan**, D. Nikezic, G. Milic, J. Stajic, Z. S. Zunic, C. Carpentieri, F. Bochicchio and D. Krstic: *Assessment of radiological impact of indoor radon and radioactivity in soil on human population in Kosovo and Metohia, Serbia*
Symposium on the natural radiation exposures and low dose radiation epidemiological studies - NARE 2012, Book of abstracts, P-161, Hirosaki University, Japan, 29.02-03.03.2012 [M-34]
9. **Lj. Gulan**, P. Bossew, G. Milic, Y. Omori, T. Ishikawa, R. Mishra, Y. S. Mayya, B. Vuckovic and Z. S. Zunic: *Field experience with SSNTDS (CR-39 and LR115) in Kosovo survey on indoor radon, thoron, its progeny and some mapping*
Symposium on the natural radiation exposures and low dose radiation epidemiological studies - NARE 2012, Book of abstracts, P-175, Hirosaki University, Japan, 29.02-03.03.2012 [M-34]
10. Gordana Milic, **Ljiljana Gulan**, Peter Bossew, Biljana Vuckovic and Zora S. Zunic, *Indoor radon mapping: survey in residential houses over Kosovo and Metohija*

First East European Radon Symposium *FERAS 2012*, P-21, September 2nd – 5th, 2012, Cluj-Napoca, Romania [M-34]

11. Biljana Vuckovic, **Ljiljana Gulan**, Gordana Milic and Feriz Adrovic, *Measurements radon activity concentration in mineral waters in Serbian spas*

First East European Radon Symposium *FERAS 2012*, P-38, September 2nd – 5th, 2012, Cluj-Napoca, Romania [M-34]

12. **Ljiljana Gulan**, Gordana Milić, Zora S. Žunić, Biljana Vučković, Peter Bossew, Dragoslav Nikezić, Dragana Krstić, *First step mapping of indoor thoron concentration in the residential houses of Kosovo and Metohija*

Book of Abstracts, Second East European Radon Symposium *SEERAS 2014*, P-18, 27–30 May, 2014, Niš, Serbia ISBN 978-86-6125-100-9 [M-34]

13. Biljana Vuckovic, **Ljiljana Gulan**, Gordana Milic, Feriz Adrovic, Dragan Radovanovic, *Overview of radon concentrations in air and in water in Serbia*

Book of Abstracts, Second East European Radon Symposium *SEERAS 2014*, P-66, 27–30 May, 2014, Niš, Serbia ISBN 978-86-6125-100-9 [M-34]

Радови на домаћим конференцијама

14. **Lj. Gulan**, C. Carpentieri, Z.S. Zunić, G. Milić, B. Vučković, F. Bochicchio, *Merenja koncentracije aktivnosti radona u stambenim prostorijama u ruralnim sredinama na Kosovu i Metohiji*

XXVI Simpozijum društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Zbornik radova, pp.169-173, Tara, 12-14 oktobar 2011 ISBN: 978-86-7306-105-4 [M63]

15. G. Milić, B. Vučković, **Lj. Gulan**, I. Čeliković, Z.S. Zunić, *Raspodela koncentracije aktivnosti radona i torona u kućama na Kosovu i Metohiji*

XXVI Simpozijum društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Zbornik radova, pp.150-154, Tara, 12-14 oktobar 2011 ISBN: 978-86-7306-105-4 [M63]

16. **Ljiljana Gulan**, Biljana Milenković, Jelena Stajić, Biljana Vučković, Dragana Krstić, Gordana Milić i Dragoslav Nikezić, *Sadržaj prirodnih i veštačkih radionuklida u uzorcima zemljišta Kosovske Mitrovice*

XXVII Simpozijum DZZSCG, Zbornik radova, Vrnjačka Banja, 2013, 101-105

ISBN: 978-86-7306-115-3 [M63]

17. Biljana Vučković, **Ljiljana Gulan**, Gordana Milić, Feriz Adrović, *Radon u zatvorenim prostorijama u severozapadnom delu Kosova i Metohije*

XXVII Simpozijum DZZSCG, Zbornik radova, Vrnjačka Banja, 2013, 139-142

ISBN: 978-86-7306-115-3 [M63]

1. Мерење радионуклида у тлу и радона у затвореним просторијама на Косову и Метохији

2. Љиљана Гулан

3. Универзитет у Крагујевцу
Природно-математички факултет,
Крагујевац, Србија

УДК 539.163

Радионуклиди, радон, торон, ефективна доза, корелација

MEASUREMENT OF RADIONUCLIDES IN SOIL AND INDOOR RADON ON KOSOVO AND METOHIJA

SUMMARY

In this study, the specific activities of radionuclides ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K and ^{137}Cs in 104 soil samples collected from 74 locations of Kosovo were determined by gamma ray spectrometry; the mean values were found: 33, 35, 608 and 48 Bq kg^{-1} , respectively. The mean value of absorbed dose rate in the air due to natural sources of ionizing radiation from the soil is 61.5 nGy h^{-1} and it is similar to the values obtained in the neighboring countries. The contribution to the effective dose from natural radionuclides is 87% ($75.4 \text{ } \mu\text{Sv y}^{-1}$), while the contribution to the dose that comes from ^{137}Cs is 13% ($11.6 \text{ } \mu\text{Sv y}^{-1}$); mean value of external hazard index is 0.35. The measured activities and the estimated parameters indicate that there is no significant risk to the population of Kosovo and Metohija due to external exposure to ionizing radiation from the soil. A strong positive correlation exists between natural radionuclides, indicating their geochemical relation; it has been shown that there is no correlation between natural radionuclides and artificial radionuclide ^{137}Cs .

The thesis presents the results of measurements indoor radon, indoor thoron and their progenies using passive integration method with track detectors (CR-39 and LR115) at 113 locations in Kosovo and Metohija. According to the average indoor radon concentration in two rooms of dwellings (129 Bq m^{-3}), the mean annual effective dose from exposure to radon and its progenies amounts 3.25 mSv y^{-1} . Locations with an increased risk from exposure to indoor radon were identified; cause of the high content of radionuclides in the soil. The mean annual effective dose from exposure to thoron and its progenies is 4 times higher than the world average values.

Equilibrium equivalent concentration of radon (EERC) and thoron (EETC) were directly measured for the first time and from them certain equilibrium factors for radon and thoron of indoor atmospheres were calculated and they are 0.47 and 0.021, respectively. Weak positive correlation of ^{226}Ra and ^{232}Th with radon isotope ^{222}Rn were found; there is no correlation between the other radionuclides and radon isotopes. The correlation between the measured concentration of radon and thoron ($R^2 = 0.032$) were analyzed and discussed and also correlation between the responses of different detector types

Dissertation supervisor: Dr. D. Nikezić

Commission for the dissertation acceptance:

Prof. dr. D. Nikezić, Dr. Zora S. Žunić, Doc. dr. Gordana Milić, Doc. dr. Dragana Krstić

Title	Measurement of radionuclides in soil and indoor radon on Kosovo and Metohija
Author	Ljiljana Gulan
Key words	Radionuclides, indoor radon, indoor thoron, effective dose, correlation
Pages	172
Figures	37
Tables	39
References	198
Kragujevac	2014