



**Univerzitet u Novom Sadu
Prirodno-matematički fakultet
Department za fiziku**



MSc Predrag Kuzmanović

Korelacija radioloških i strukturnih karakteristika građevinskih materijala

- Doktorska disertacija -

Novi Sad, septembra 2020.

Zahvaljujem se na velikoj pomoći tokom izrade doktorske disertacije i objavljivanja radova u međunarodnim časopisima kao i tehničkoj podršci:

Mentoru prof. dr Nataši Todorović, komentoru dr Bojanu Miljeviću, dr Sofiji Forkapić, prof. dr Dušanu Mrđi, prof. dr Laposavi Filipović Petrović, dr Igoru Čelikoviću, prof. dr Vanji Radoliću, prof. dr Dušanu Lazaru, prof. dr Jovani Nikolov, prof. dr Ištvanu Bikitu, Jovani Knežević, prof. dr. Janji Ranogajec, dr Janu Hansmanu, Igoru Miklavčiču.

Najveću zahvalnost dugujem čitavoj Katedri za nuklearnu fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu na podršci i pomoći svih njenih profesora na izradi ove obimne studije. Zahvalnost dugujem takođe i Odseku za medicinske i poslovno-tehnološke studije Akademije strukovnih studija Šabac, čiji sam i ja deo. Zahvaljujem se Katedri za inženjerstvo materijala Tehnološkog fakulteta u Novom Sadu na ustupanju opreme za sprovođenje dela istraživanja u okviru Laboratorije za ispitivanje materijala u kulturnom nasleđu. Zahvalnost dugujem Laboratoriji za nuklearnu i plazma fiziku Instituta za nuklearne nauke Vinča i Odjelu za fiziku Sveučilišta Josipa Jurja Strossmayera iz Osijeka, Hrvatska na sprovođenju jednog dela istraživanja ove doktorske disertacije.

Zahvaljujem sa rukovodstvu fabrike keramičkih pločica “Zorka Keramika” iz Šapca i građevinske opeke “Zorka Opeka” iz Donjeg Crniljeva na dostavljanju uzoraka za potrebe analiza u ovoj doktorskoj disertaciji.

Predrag Kuzmanović, juna 2020.

Publikacije proistekle iz ove doktorske disertacije:

1. Kuzmanović, P. , Todorović, N., Forkapić, S., Filipović Petrović, L., Knežević, J., Nikolov, J., Miljević B., 2020. <i>Radiological characterization of phosphogypsum produced in Serbia</i> . Radiat. Phys. Chem. 166, 108463. https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.108463	M21
2. Knezević, J., Kuzmanović, P. , Mrdja, D., Todorović, N., Bikit, I., Hansman, J., 2020. Estimation of absorbed gamma dose rate from granite by Monte Carlo simulation approach. J. Radiol. Prot. 40, 596–611. https://doi.org/10.1088/1361-6498/ab8c22	M21
3. Kuzmanović, P. , Todorović, N., Nikolov, J., Hansman J., Vraničar A., Knežević J., Miljević B., 2019. <i>Assessment of radiation risk and radon exhalation rate for granite used in the construction industry</i> . J. Radioanal. Nucl. Chem., 321(2), 565-577. https://doi.org/10.1007/s10967-019-06592-9	M22
4. Kuzmanović, P. , Todorović, N., Mrđa, D., Nikolov, J., Knežević, J., Hansman J., 2019. <i>Radiation exposure to zircon minerals in Serbian ceramic industries</i> , J. Radioanal. Nucl. Chem., 322(2), 949–960. https://doi.org/10.1007/s10967-019-06743-y	M22
5. Kuzmanović, P. , Todorović, N., Miljević, B., Nikolov, J., Knežević, J., Vraničar, A., Hansman, J. 2020. <i>Natural radioactivity in ceramic tiles used in Serbian buildings</i> . Rom. J. Phys. 65, 804, (2020).	M22
6. Kuzmanović, P. , Todorović, N., Nikolov, J., Knežević, J., Miljević, B., 2020. <i>Radiological, structural and chemical characterization of raw materijals and ceramic tiles in Serbia</i> , J. Radioanal. Nucl. Chem., 323(2), 861–874. https://doi.org/10.1007/s10967-019-06987-8	M22
7. Kuzmanović, P. , Todorović, N., Filipović Petrović, L., Mrđa, D., Forkapić, S., Nikolov, J., Knežević, J., 2020. <i>Radioactivity of building materijals in Serbia and assessment of radiological hazard of gamma radiation and radon exhalation</i> , J. Radioanal. Nucl. Chem., 324, 1077–1087. https://doi.org/10.1007/s10967-020-07130-8	M22
8. Todorović, N., Nikolov, J., 2020. Radionuclides Properties, Behavior and Potential Health Effects, Chapter 6: Kuzmanović, P. , Todorović, N., Forkapić, S., Nikolov, J., Mrđa, D., Knežević, J., 2020. <i>Activity concentrations of ²²⁶Ra, ²³²Th and ⁴⁰K in building materijals in Serbia, radon exhalation rate and assessment of radiological impact</i> , Nova Science Publishers, 97-132. New York. ISBN: 978-1-53617-379-6	M14
9. Nikolov, J., Kuzmanović, P. , Todorović, N., Knežević, J., Forkapić, S., Filipović Petrović, L., 2019. <i>Radioactivity measurements of phosphogypsum produced in Serbia</i> . Book of Abstracts, 5 th International Conference on Environmental Radioactivity Variations of Environmental Radionuclides – ENVIRA, 2019. ID57.	M34
10. Kuzmanović, P. , Todorović, N., Nikolov, J., Knežević, J., Hansman, J., Vraničar, A., 2019. <i>Assessment of radiation risk for building materijals in Serbia</i> , VI International Congress “Engineering, Environment and Materijals in Processing Industry“ EEM – Congress 2019, Jahorina, March 11 th -13 th 2019, Republic of Srpska, Bosnia and Herzegovina.	M33
11. Kuzmanović, P. , Todorović, N., Forkapić, S., Filipović Petrović, L., Knežević, J., Hansman, J., Vraničar, A., Miljević B., 2019. <i>Radijacioni aspekti primene fosfogipsa u građevinarstvu</i> . Zbornik radova XXX Simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Divčibare 2-4.10.2019, p. 155-161, ISBN 978-86-7306-154-2, Beograd, Srbija.	M63
12. Kuzmanović, P. , Todorović, N., Forkapić, S., Knežević, J., Filipović Petrović, L., Nikolov, J., Miljević B., 2019. <i>Određivanje emanacije ²²²Rn iz prirodnog gipsa i fosfogipsa</i> . Zbornik radova XXX Simpozijuma Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, Divčibare 2-4.10.2019, p. 251-257, ISBN 978-86-7306-154-2, Beograd, Srbija.	M63

Sadržaj:

<i>Predgovor</i>	8
<i>Spisak skraćenica</i>	12
1 TEORIJSKI DEO	13
1 Prirodna radioaktivnost	14
1.1 Istorijat	14
1.2 Izvori jonizujućeg zračenja	15
1.3 NORM materijali	16
1.3.1 Radonuklidi u građevinskim materijalima	17
1.3.2 Radioaktivna ravnoteža	21
2 Efekti jonizujućeg zračenja na ljudski organizam	25
3 Radon	29
3.1 Emanacija i ekshalacija radona	32
3.2 Transport i ekshalacija radona iz građevinskih materijala	34
3.2.1 Akumulacija radona u mernoj komori	41
3.2.2 Koeficijent emanacije radona	44
3.2.3 Koeficijent difuzije radona	45
3.3 Metode merenja radona	48
3.3.1 Aktivne tehnike merenja radona	50
3.3.1.1 Alfa spektrometar RAD7	50
3.3.1.2 Radon monitor AlphaGuard PQ 2000 PRO	51
3.3.1.3 Uređaj AlphaE	51
3.3.1.4 Uređaj RTM1688-2	52
3.3.2 Pasivna merna tehnika merenja radona kanisterima sa aktivnim ugljem	53
4 Merenje nivoa radioaktivnosti	55
5 Metode strukturne karakterizacije građevinskih materijala	59
5.1 Rendgensko zračenje	59
5.2 Rendgenska strukturna analiza (XRD)	60
5.3 Rendgenska fluorescentna analiza (XRF)	63
5.4 Određivanje teksturalnih karakteristika građevinskih materijala	65

5.4.1	Metode apsorpcije vode	67
5.4.2	Živina porozimetrija	69
6	Procena radijacionog rizika od gama zračenja i radona iz građevinskih materijala	71
6.1	Hazard indeksi i doze zračenja	73
6.1.1	Spoljašnji hazard indeksi	74
6.1.1.1	Gama indeks (I_γ)	74
6.1.1.2	Radijumski ekvivalentni indeks aktivnosti (Ra_{eq})	75
6.1.1.3	Spoljašnji hazard indeks (H_{ex})	75
6.1.1.4	Jačina apsorbovane doze (D)	76
6.1.1.5	Godišnja efektivna doza (E)	76
6.1.1.6	Merenje jačine doze	78
6.1.1.7	Rizik od nastanka kancera tokom života ($ELCR$)	78
6.1.2	Unurašnji hazard indeksi	78
6.1.2.1	Alfa indeks (I_α)	78
6.1.2.2	Unutrašnji hazard indeks (H_{in})	79
6.1.2.3	Alfa dozni ekvivalent (H_α)	79
6.1.2.4	Godišnja efektivna doza (D_{Rn})	79
6.2	Monte Karlo simulacije	80
2	EKSPERIMENTALNI DEO	81
7	Prikupljanje i priprema uzoraka	82
8	Sirovine i građevinski materijali sa povećanim nivoom radioaktivnosti	84
8.1	Granit	84
8.1.1	Procena jačine apsorbovane doze korišćenjem Monte Karlo simulacija	94
8.2	Fosfogips i prirodni gips	102
8.3	Sirovinski materijali u keramičkoj industriji	114
8.3.1	Keramička i opekarska glina	114
8.3.2	Feldspat	121
8.3.3	Kvarcni pesak	123
8.3.4	Cirkonijumski minerali	129
8.4	Keramičke pločice	137
8.4.1	Strukturna i hemijska karakterizacija keramičkih pločica proizvedenih u Srbiji	145
8.4.2	Merenje ekshalacije radona iz keramičkih pločica	147

9	Sirovine i građevinski materijali opšte upotrebe.....	155
10	Upotreba fosfogipsa u proizvodnji opeke	166
11	Varijacije koeficijenta emanacije radona	185
12	Uticaj strukture materijala na emanaciju radona.....	205
13	Zaključak	227
14	Prilozi	235
14.1	Prilog A.....	235
14.2	Prilog B	238
14.3	Prilog C	240
15	Reference.....	243
16	Biografija autora.....	265
	Ključna dokumentacijska informacija.....	266

Predgovor

Opštepoznato je da u istoriji prirodnih nauka, verovatno ni jedan fenomen nije izazvao toliko istraživanja, nesuglasica i strahova kao jonizujuće zračenje i njegovi efekti. Iako je veliki interes bio često motivisan željom da se reše akutni društveni problem, ne može se poreći da je poznavanje izvora i razumevanje ponašanja radionuklida u biosferi, kao i razjašnjavanje efekata i rizika od jonizujućeg zračenja veoma bitan element u opštoj slici o prirodi i neophodan uslov za adekvatnu radiološku zaštitu.

Predmet istraživanja ove doktorske disertacije je ispitivanje radioloških svojstava, strukture i teksture građevinskih materijala dostupnih u Srbiji, u cilju sveobuhvatne studije o izloženosti ljudi jonizujućem zračenju u zatvorenom prostoru (kako stanovništva, tako i profesionalno izloženih lica), sa akcentom na izloženost stanovništva. Jonizujuće zračenje kojem je čovek izložen (gama zračenje i radon) u zatvorenom prostoru potiče iz tla kao i manjim delom iz građevinskih materijala. Ukoliko građevinski materijali sadrže povećan nivo radioaktivnosti oni mogu u znatnoj meri doprineti izloženosti ljudi zračenju u zatvorenom prostoru iznad propisanih granica datih u zakonskim regulativama i međunarodnim protokolima. Ljudi pri radu sa građevinskim materijalima koji imaju povećan nivo radioaktivnosti mogu takođe biti izloženi radijacionom riziku od gama zračenja i radona koje mogu uneti u svoj organizam direktno udisanjem prašine iz vazduha.

Pojedini građevinski materijali sadrže povećan nivo radijuma (npr. fosfogips kao NORM materijal, granit, sirovine u keramičkoj industriji, pepeo i dr.) te je potrebno ograničiti njihovu upotrebu jer njihovo korišćenje u građevinarstvu može predstavljati potencijalnu radijacionu opasnost od izloženosti gama zračenju i radonu.

Radon je plemeniti gas, bez boje ukusa i mirisa, koji se u prirodi pojavljuje u sva tri radioaktivna niza (uranijumovom, torijumovom i aktinijumovom nizu). Pri monitoringu izloženosti stanovništva radonu od najvećeg značaja je njegov radioizotop ^{222}Rn , koji nastaje alfa raspadom izotopa ^{226}Ra . Procene ukazuju da gotovo polovina godišnje doze koju čovek primi potiče od izloženosti radonu i njegovim potomcima. Iz tog razloga posebna pažnja se posvećuje merenju radona i njegovih potomaka u vazduhu. Najveći doprinos izmerenim koncentracijama radona potiče od radona iz zemljišta (pri čemu se iznos razlikuje u zavisnosti od geološkog područja), dok je značajno manji doprinos od radona iz građevinskog materijala. Iako je doprinos radona iz građevinskog materijala znatno manji od doprinosa radona iz zemljišta, u pojedinačnim slučajevima on ne može biti zanemaren, te koncentracije aktivnosti radona u domaćinstvima mogu biti izuzetno visoke ukoliko je za gradnju korišćen materijal sa visokim sadržajem ^{226}Ra . Prekomerna izloženost radonu može dovesti do oboljevanja od raka pluća usled udisanja radona i njegovih potomaka.

Bitna činjenica je ustanoviti glavni izvor radona u zatvorenom prostoru kako bi usledile adekvatne mere u cilju smanjenja njegove koncentracije. U prostorijama sa povećanom koncentracijom radona nakon sprovedenih merenja i procene radijacionog rizika mogu se primeniti adekvatne mere remedijacije. Pri proceni koncentracije aktivnosti radona koja potiče od

građevinskih materijala u obzir treba uzeti i stepen provetrenosti prostorije (podrumi, dnevne sobe i sl.).

U svetu je veliki broj naučnih radova publikovan iz oblasti radioloških svojstava građevinskih materijala i *NORM*-a, što govori da je problematika veoma važna i značajna u više naučnih oblasti, fizici, zaštiti životne sredine, radioekologiji, hemiji i drugim. Čitanjem dostupnih naučnih publikacija može se uočiti da iako postoji značajan broj naučnih radova ova oblast još uvek nije sasvim ispitana jer se radovi uglavnom baziraju na statističkoj obradi podataka u pogledu radioaktivnosti građevinskih materijala, kao i proceni ekshalacije radona. Prva značajna istraživanja iz ove oblasti objavljena su još u drugoj polovini 20. veka, gde su postavljene značajne osnove za dalji razvoj istraživanja. Sedamdesetih godina prošlog veka postavljene su osnovne teorije i teze za procenu radijacionog rizika od izloženosti gama zračenju i radonu. Devedesetih godina prošlog veka objavljen je značajan broj naučnih publikacija koji razmatra metode merenja ekshalacije radona iz građevinskih materijala. Uviđaju se nedeostaci i ukazuju na mane korišćenih metoda merenja. Razvijene metode zadržale su se do danas sa daljim razvojem i usavršavanjem.

Poslednjih godina i u Srbiji, je poraslo interesovanje za ovom problematikom. Od 2010. godine u Srbiji je publikovan značajan broj naučnih radova koji se obično zasnivaju na merenju unutrašnjih koncentracija radona bez ispitivanja doprinosa od samih građevinskim materijala. Radovi se takođe obično zasnivaju na proceni ambijentalnog doznog ekvivalenta, prema propisanoj odnosno važećoj zakonskoj regulativi. U Srbiji je 2018. godine donet pravilnik o dozvoljenim vrednostima koncentracija aktivnosti radona u zatvorenim postorijama koji je usklađen sa preporukama datim od strane Evropske Komisije 1999. godine. Pravilnik koji obuhvata izloženost ljudi gama zračenju iz građevinskih materijala takođe je donet 2018. godine i u potpunosti usklađen sa EURATOM direktivom donetom 2014. godine.

U svetu mali broj radova razmatra i daje sveobuhvatnu studiju o izloženosti zračenju iz građevinskih materijala, uz adekvatnu procenu radijacionog rizika. Radovi se obično baziraju na procenama ekshalacije radona iz građevinskih materijala, ali uglavnom bez procene radijacionog rizika od izloženosti radonu i njegovim potomcima što podrazumeva i procenu godišnjih efektivnih doza. Ovo je veoma bitno i važno zbog minimiziranja prekomerne izloženosti ljudi zračenju, ako se uzme u obzir da pojedinac provede oko 7000 h godišnje u zatvorenom prostoru i oko 800 h na radnom mestu pri radu sa nekim od sirovinskih materijala u građevinskoj industriji.

S obzirom da je problematika ekshalacije radona ali i emisije gama zračenja iz građevinskih materijala veoma sofisticiran problem, potrebna su opsežna istraživanja radi procene njihovog uticaja na zdravlje ljudi, s obzirom da je reč o jonizujućem zračenju. Uzimajući u obzir da Svetska zdravstvena organizacije radon svrstava kao veliki zdravstveni hazard, posle pušenja, ispitivanje radona u zatvorenom prostoru koje potiče iz građevinskih materijala postaje potpuno finansijski opravdano i šta više potrebno, kako bi se unutrašnja izloženost ljudi zračenju svela na minimum. Potrebno je naglasiti da zaštita od ovih vrsta zračenja nije moguća, ali procena radijacionog rizika usled izloženosti može dovesti do uspostavljanja adekvatnih mera remedijacije i preporuka za smanjenje izloženosti. Radiološkom i strukturnom karakterizacijem građevinskih materijala može se doći do egzaktnih rezultata povezanosti strukture i tekture samog građevinskog materijala sa emanacijim i ekshalacijom radona. Tada bi bilo moguće dizajnirati novi građevinski materijal sa karakterističnim strukturnim osobinama, takvim da se radonska propustljivost svede što je moguće manju meru.

Ova doktorska disertacija razmatra izloženost ljudi i profesionalno izloženih radnika kako gama zračenju tako i radonu od *NORM* materijala i građevinskih materijala opšte upotrebe, čime daje sveobuhvatnu studiju o radiološkoj karakterizaciji građevinskih materijala dostupnih za korišćenje u Srbiji.

Izvršena je analiza ukupno 348 uzoraka građevinskih materijala, od čega 222 uzorka poreklom iz drugih zemalja sveta i 126 uzoraka koji imaju poreklo iz Srbije. Odabir uzoraka je izvršen pre svega od onih građevinskih materijala koji se mogu naći u komercijalnoj prodaji u Republici Srbiji. Pojedini uzori keramičkih pločica uzeti su direktno iz proizvodnje jedne od najvećih srpskih fabrika keramičkih pločica „Zorke Keramike“ iz Šapca. Komponente koje ulaze u sastav grube opeke (kompozit) za pravljenje novog materijala sa fosfogipsom uzete su iz rudnika kaolinitno-ilitne gline firme „Zorka Opeka“ iz Donjeg Crniljeva, SO Koceljeva. Otpadni fosfogips kao NORM materijal je uzet sa odlagališta jedne od hemijskih industrija u Srbiji. Uzorci cementa, peska, šljunka, crepa, cigle, gipsa, i dr. građevinskih materijala su pribavljeni iz lokalnih građevinskih firmi u okolini Šapca, Srbija. Uzorci su takođe selektovani i pri uvozu u Republiku Srbiju tokom dozimetrijskih i gama spektrometrijskih kontrola. Nakon izvršenih prikupljanja i selekcije materijala po grupama sprovedeni su glavni ciljevi ove doktorske disertacije:

1. Ispitivanje nivoa radioaktivnosti u uzorcima građevinskih materijala i sirovina koje se koriste za njihovu proizvodnju u Srbiji, kao i praćenje distribucije radionuklida u pojedinim sirovinama,
2. Ispitivanje emanacije i ekshalacije radona iz građevinskih materijala korišćenjem različitih aktivnih mernih tehnika,
3. Razvoj daljih metoda merenja ekshalacije radona kao i uočavanje njihovih nedeostatata,
4. Merenje koncentracija radona u zatvorenom prostoru aktivnim i pasivnim mernim tenikama i procena doprinosa radona iz pojedinih građevinskih materijala ukupnoj unutrašnjoj koncentraciji radona u prostoriji,
5. Procena radijacionog rizika od upotrebe različitih tipova građevinskih materijala, koji se uvoze ili proizvode u Srbiji,
6. Procena radijacionog rizika od potencijalne upotrebe fosfogipsa kao NORM sirovine u građevinskoj industriji, kao dodatka prirodnom gipsu, kako u pogledu gama zračenja tako i u pogledu ekshalacije radona,
7. Valorizacija i iskorišćenje pojedinih NORM materijala kao što je fosfogips u proizvodnji opeke. Radiološka i strukturna karakterizacija dobijenih materijala. Procena radijacionog rizika od upotrebe dobijenih materijala u građevinarstvu,
8. Upotreba Monte Karlo pristupa u proceni jačina apsorbovanih doza gama zračenja, uočavanje nedostatata teorijskog modela, kao i predlozi za njegovo podoljšanje,
9. Minerološka, hemijska i teksturalna karakterizacija finalnih građevinskih materijala koji se koriste u enterijeru (beton, košuljica, keramičke pločice, granit, mermer i dr.),
10. Uspostavljanje korelacionih svojstava među varijablama koje karakterišu radiološke i strukturne osobine građevinskih materijala koji se koriste u Srbiji,
11. Poznavanjem mehanizama transporta kroz građevinske materijale, povezivanje sa samim strukturnim osobinama kao što su poroznost, mineraloški i hemijski sastav selektovanih uzoraka građevinskih materijala koji se koriste za oblaganje podnih površina u stambenim objektima.

Ciljevi ovog istraživanja su sprovedeni sledećim mernim tehnikama:

1. Merenje sadržaja radionuklida u uzorcima građevinskih materijala metodom gama spektrometrije,
2. Merenje masene i površinske ekshalacije radona i određivanje koeficijenta emanacije za selektovane građevinske materijale aktivnim uređajima RAD7, RTM 1688-2, Alpha Guard i AlphaE,

3. Merenje koncentracije aktivnosti radona u vazduhu zatvorenih prostorija pasivnom mernom tehnikom pomoću ugljenih kanistera, kao i aktivnim uređajima RAD7 i RTM 1688-2,
4. MInerlaoška analiza metodom rendgenske strukturne analize na polikristalnom prahu (XRD),
5. Hemijska analiza selektovanih uzoraka građevinskih materijala metodom rentgenske fluorescentne analize (XRF),
6. Ispitivanje poroznosti materijala metodom apsorpcije vode i metodom živine porozimetrije.
7. Korelacija radioloških i strukturnih osobina građevinskih materijala.

Na osnovu dobijenih, odnosno izmerenih vrednosti izvršeno je poređenje sa preporučenim i dozvoljenim vrednostima za građevinske materijale prema međunarodnim i domaćim direktivama. Upoređivanje dobijenih vrednosti vršice se i sa rezultatima za slična istraživanja građevinskih materijala u svetu.

Ova doktorska disertacija predstavlja proizvod intenzivne saradnje Katedre za nuklearnu fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu, Katerde za inženjerstvo materijala Tehnološkog fakulteta, Univerziteta u Novom Sadu, Odseka za medicinske i poslovno-tehnološke studije Akademije strukovnih studija Šabac, Laboratorije za nuklearnu i plazma fiziku Instituta za nuklearne nauke Vinča i Odjela za fiziku Sveučilišta Josipa Jurja Strossmayera u Osijeku, Hrvatska.

Rezultati koji nastanu u ovoj doktorskoj disertaciji daće jedinstven pregled radioloških i strukturnih osobina reprezentativnih građevinskih materijala koji se koriste u Srbiji. Publikovani rezultati u međunarodnim časopisima će zasigurno dati doprinos daljem razvoju problematike emanacije i ekshalacije radona iz građevinskih materijala. Razvijene metode merenja ekshalacije radona iz građevinskih materijala služiće za dalja merenja i razvoj na Departmanu za fiziku u Novom Sadu.

Rezultati će predočiti radiološke mogućnosti upotrebe otpadnog fosfogipsa kao jednog od *NORM* materijala i dodatka u proizvodnji opeke sa procenom radijacionog rizika na izloženost ljudi u zatvorenom prostoru.

Novoproducen materijal opeke sa fosfogipsom i dobijenim radiološkim i strukturnim karakteristikama može imati svoju potencijalnu praktičnu primenu u građevinarstvu kao i standardna opeka. Upotreba fosfogipsa kao dodatka prirodnom gipsu uz procenu radijacionog rizika može imati praktičnu primenu pri proizvodnji gips-karton ploča koje se sve više upotrebljavaju u građevinarstvu u tzv. "suvoj gradnji". Ovim bi se ostvario i ekološki i ekonomski benefit. Izmerene vrednosti nivoa radioaktivnosti u analiziranim uzorcima fosfogipsa mogu se dalje koristiti u studijama procene uticaja na životnu sredinu.

02.06.2020.
U Novom Sadu

MSc Predrag Kuzmanović, dipl. prof.

Spisak skraćenica

NORM, *Naturally Occurring Radioactive Materijals*

IAEA, *International Atomic Energy Agency*

UNSCEAR, *United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation*

ICRP, *International Commission on Radiological Protection*

WHO, *World Health Organization*

EURATOM, *European Atomic Energy Community*

PG, *Phosphogypsum*

NG, *Natural Gypsum*

GB, *Gypsum Board*

XRD, *X-ray Powder Diffraction*

XRF, *X-ray fluorescence*

1 TEORIJSKI DEO

1 Prirodna radioaktivnost

1.1 Istorijat

Radioaktivnost je prvi put detektovao i opisao 1896. godine Bekerel (*Antoine Henri Becquerel* (1852-1908.)) ubrzo nakon otkrića rendgenskih zraka od strane Rendgena (*Wilhelm Conrad Röntgen* (1845-1923.)) 1895. godine. Radioaktivnost je slučajno otkrivena pomoću efekta stvaranja ekspozicije na fotografskoj ploči minerala koji sadrži uran – „*pitchblende*“, kada je umotan u crni papir i zadržan u mraku. Ubrzo nakon fundamentalnih otkrića, Pjer Kiri (*Pierre Curie* (1859-1906.)) je zajedno sa suprugom Marijom Kiri (*Maria Skłodowska-Curie* (1867-1934.)) izdvojio dva nova izvora radioaktivnosti iz smeša - radijuma i polonijuma. Raderford (*Ernest Rutherford* (1871-1937.)) je 1898. godine ustanovio da postoje najmanje dve komponente zračenja koje emituju ti elementi. 1899. godine isti fizičar razlikuje alfa i beta čestice. Sledeće godine, Vilarđ (*Paul Villard* (1860-1934.)) je otkrio i opisao gama zrake koje emituje radijum. Nemački fizičar Dorn (*Friedrich Ernst Dorn* (1848-1916.)) 1900. godine otkriva radioaktivni gas radon-222 (Tykva and Berg, 2004).

1919. godine Raderford je izvršio prvu veštačku transmutaciju jednog elementa u drugi. U svojim eksperimentima, mogao je proizvesti stabilan kiseonik ^{17}O i ^1H bombardovanjem stabilnog azota ^{14}N sa alfa česticama. Početkom tridesetih godina 20. veka druga važna otkrića znatno su doprinela saznanjima o radioaktivnosti. Neutron je 1932. otkrio Čedvik (*James Chadwick* (1891-1974.)), pozitron iste godine Anderson (*Carl Carl Anderson* (1905-1991.)) i deuterijum (^2H) 1933. naučnik Juri (*Harold C. Urey* (1893-1981.)) (Tykva and Berg, 2004).

Još jedan značajan korak u istraživanju radioaktivnosti sastojao se u otkriću veštačkih radionuklida od strane Frederika Žolio (*Frederic Joliot* (1900-1958.)) i Irene Kiri (*Irène Joliot-Curie* (1897-1956.)) 1934. godine. Oni su bombardovali bor i aluminijum sa alfa česticama iz polonijuma i dobili radioaktivni azot (^{13}N) i fosfor (^{30}P), respektivno. Ove dve reakcije mogu se predstaviti jednostavno kao $^{10}\text{B}(\alpha, n)^{13}\text{N}$ i $^{27}\text{Al}(\alpha, n)^{30}\text{P}$. Ubrzo nakon otkrivanja veštačke radioaktivnosti, naučnici su počeli da bombarduju praktično svaki element periodnog sistema elemenata sa ubrzanim protonima, deutronima i alfa česticama - koristeći rane *Cockcroft-Valton* akceleratora, akceleratora *Van de Graaff* i ciklotrone. Na ovaj način su uspeli da proizvedu i identifikuju stotine novih radionuklida. Upotreba elektronskog linearnog akceleratora daje dodatnu mogućnost stvaranja novih radionuklida (Tykva and Berg, 2004).

Trenutno je poznato i identifikovano negde oko 2600 nuklida: 260 stabilnih nuklida, 25 veoma dugotrajnih prirodnih radionuklida, i više od 2300 veštačkih radionuklida. Nedavni napredak u akceleratorima čestica, nuklearnoj instrumentaciji i eksperimentalnim tehnikama doveli su do povećane sposobnosti za proizvodnju novih nuklida (Tykva and Berg, 2004). Ovo je dovelo i do njihove ubrzane praktične primene u medicini i drugim naučnim disciplinama.

Prirodna radioaktivnost je stara koliko i sama planeta Zemlja. Još i u vremenu starog Rima ona je bila primenjivana u lečenju, glavni primer jesu bile mineralne vode u banjama, za koje se po otkriću radioaktivnosti krajem 19. veka ustanovilo da te vode sadrže povećane koncentracije aktivnosti radioaktivnih elemenata. U nekim zemljama se do danas zadržao duh verovanja da radioaktivni npr. pesak brazilskih plaža ili visoka koncentracija radioaktivnog gasa radona u starim rudnicima mogu blagotvorno uticati na ljudski organizam, pa čak ilečiti pojedine bolesti (Eisenbud and Gesell, 1997).

Određena količina informacija o radioaktivnosti životne sredine bila je dostupna već pre Drugog svetskog rata, ali se te informacije nisu daleko širile, jer je bilo malo specijalizovanih laboratorija za merenje radioaktivnosti. Između 1940. i 1962. godine započela je serija testova nuklearnog oružja u atmosferi, prvo u Sjedinjenim Američkim državama, a zatim i u Sovjetskom Savezu, Ujedinjenom Kraljevstvu, Francuskoj, Indiji i Kini. Ovom prilikom u životnu sredinu je emitovana velika količina veštačke radioaktivnosti, gde su emitovani radionuklidi kontaminirali zemljište i prehrambene lance. Iz ovog razloga javila se sve veća potreba za monitoring radioaktivnosti u životnoj sredini i formiranje sve većeg broja usko specijalizovanih laboratorija za merenje nivoa radioaktivnosti u životnoj sredini kao i praćenje uticaja na ljudsku populaciju. Tako je 1955. godine formiran naučni komitet Ujedinjenih nacija koji se bavi efektima atomskog zračenja UNSCEAR (Eisenbud and Gesell, 1997). kao i druge međunarodne organizacije koje se bave ovim problemima.

1.2 Izvori jonizujućeg zračenja

Jonizujuće zračenje čine teške i lake naelektrisane čestice i elektromagnetno zračenje. Naziv jonizujuće zračenje je proisteklo od efekta koji to zračenje izaziva pri kontaktu sa materijom. Kada ovo zračenje interaguje sa ljudskim organizmom npr. u vremenu kraćem od jedne sekunde dolazi do interakcije sa atomima sredine i formiranja pozitivno naelektrisanih jona odnosno procesa jonizacije.

Izvori jonizujućeg zračenja u odnosu na čoveka i okolni živi svet mogu biti spoljašnji i unutrašnji, a prema svom poreklu mogu se podeliti na:

1. Prirodne izvore zračenja:

- a. Kosmičko zračenje;
- b. Kosmogeni radionuklidi, ^7Be , ^{14}C , ^3H ;
- c. Radionuklidi zemaljskog porekla:
 - Radionuklidi iz serija ^{238}U , ^{235}U i ^{232}Th ;
 - Ostali prirodni radionuklidi izvan serija: ^{40}K , ^{87}Rb , ^{115}In , ^{138}La ;

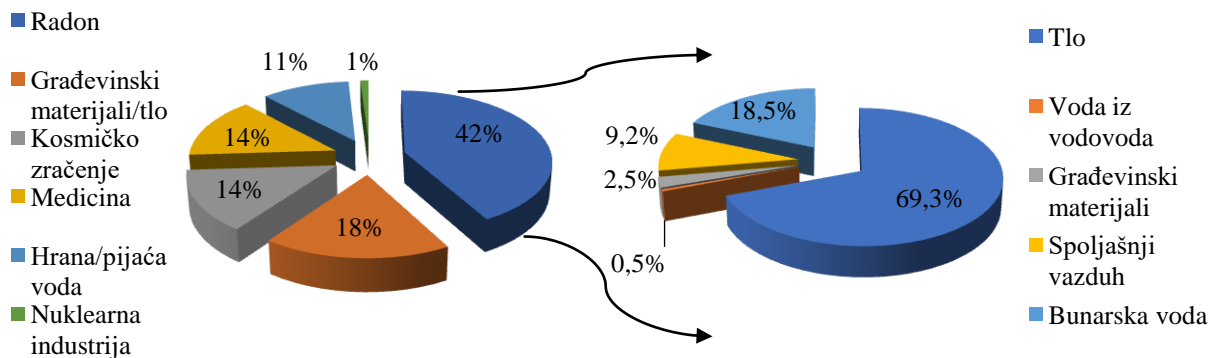
2. Izazvane ljudskom delatnošću i NORM materijale:

- a. Kosmičko zračenje u aerotransportu;
- b. Radionuklidi iz sagorevaja uglja, nafte i gasa;
- c. Radionuklidi koji se redistribuiraju građevinskim materijalom i rudarskom delatnošću;
- d. Radionuklidi u veštačkim đubrivima;
- e. Radionuklidi u koncentrovanim produktima veterinarskog nadzora (stočnom hranivu, mleku u prahu i dr.);
- f. Radionuklidi u predmetima široke potrošnje;
- g. Radionuklidi u zatvorenim prostorijama (radon i zračenje iz građevinskih materijala).

3. Proizvedene izvore zračenja:

- a. Radionuklidi poreklom iz nuklearnih eksplozija (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{95}Zr);
- b. Nuklearni objekti i postrojenja;
- c. Izvori zračenja u medicinskoj radiologiji (radiodijagnostika, radioterapija i nuklearna medicina);

- d. Izvori zračenja u industriji (keramička industrija, industrija veštačkih đubriva i dr);
- e. Izvori jonizujućeg zračenja u javnoj upotrebi (radioaktivni gromobrani; detektori dima, časovnici i dr.) (Čonkić, 1997).



Slika 1.1 Izvori jonizujućeg zračenja (levo) i radona (desno) kojima je čovek izložen (Seo et al., 2018).

Na Slici 1.1 dat je pregled udela izloženosti različitih izvora zračenja u ukupnoj izloženosti čoveka tokom godine. U izveštaju UNSCEAR-a iz 2008. godine, rezimirano je da prosečna godišnja efektivna doza od izloženosti prirodnim izvorima zračenja iznosi 2,4 mSv a veštačkih 0,6 mSv (UNSCEAR, 2008). Među svim izvorima zračenja najveći doprinos daje udisanje radona (oko 1,26 mSv godišnje), što je oko 42% ukupne godišnje doze od 3,0 mSv, Slika 1.1. Glavni izvor radona u zatvorenom prostoru je uglavnom tlo i geološka podloga ispod tla (Porstendörfer, 1994; Tan and Xiao, 2013). Ukupna izloženost jonizujućem zračenju od građevinskih materijala i tla je oko 18%, dok je izloženost radonu iz građevinskih materijala oko 2,5%.

1.3 NORM materijali

Svi građevinski materijali sadrže prirodne radioizotope u većoj ili manjoj meri. Nivo prirodne radioaktivnosti u građevinskim materijalima u određenim uslovima može biti radiolški hazard po ljudsko zdravlje. Iz ovog razloga je potrebno ispitivati nivo prirodne radioaktivnosti u različitim građevinskim materijalima i vršiti procenu radijacionog rizika (Gupta and Chauhan 2011; Alali et al., 2018).

Građevinska industrija je jedna od industrija u kojoj se kao sirovine koriste materijali koji u sebi sadrže prirodne radioizotope – NORM materijali (eng. *Naturally Occurring Radioactive Materijals*). Radioaktivnost građevinskog materijala zavisi od minerala koji se koriste za njihovu proizvodnju (Markkanen, 1995). Građevinski materijali mogu da sadrže povišene nivoe radionuklida ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , te je važno odrediti koncentracije aktivnosti ovih radionuklida u tim materijalima kako bi se smanjio potencijalni radiološki rizik po ljudsko zdravlje (Joshua et al., 2009; Abbasi, 2013).

Ostaci od rudarstva i mlevenja uranijumskih ruda kao i iz mnogih drugih industrija za vađenje resursa (na primer, fosfogips iz industrije fosfata i ostaci iz prerade mineralnih sirovina i iz

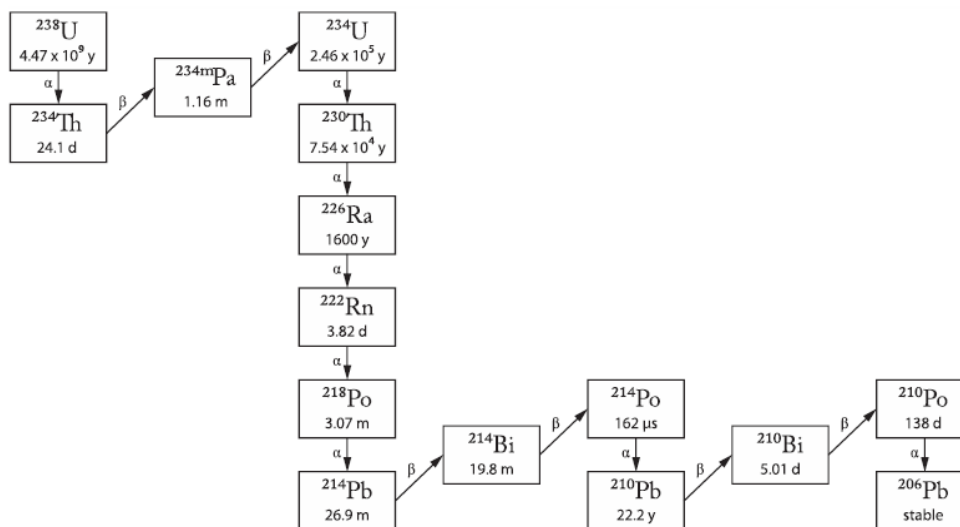
industrije nafte, gasa i uglja) mogu sadržati uranijumsku ili torijumsku seriju radionuklida ili obe i zbog toga se smatraju prirodno radioaktivnim materijalima (NORM). Jedna bitna činjenica o radiološkom uticaju koji nastaje iz NORM ostataka je emisija gama zračenja kao i izotopa radona u atmosferu odnosno zatvoren prostor. Pored toga, merenje ekshalacije radona iz ovakvih materijala je veoma bitno radi uspostavljanja adekvatnih remedijacionih tehnika, ako je postojeći materijal već ugrađen u enterijeru ili zbog minimiziranja radijacionog uticaja na ljude i životnu sredinu u potencijalnoj upotrebi (IAEA 474, 2013).

Gubitak energetskih resursa i primarnih sirovina dovodi do traženja alternativnih puteva za proizvodnju građevinskih materijala. U razvoju novih sintetičkih građevinskih materijala upotreba nus-proizvoda iz nekoliko industrijskih sektora postaje sve veća potreba u svetu čime se generišu sve veće količine ovako stvorenih NORM materijala koji zahtevaju procene radijacionog rizika pre same upotrebe u građevinarstvu (Schroeyers, 2017).

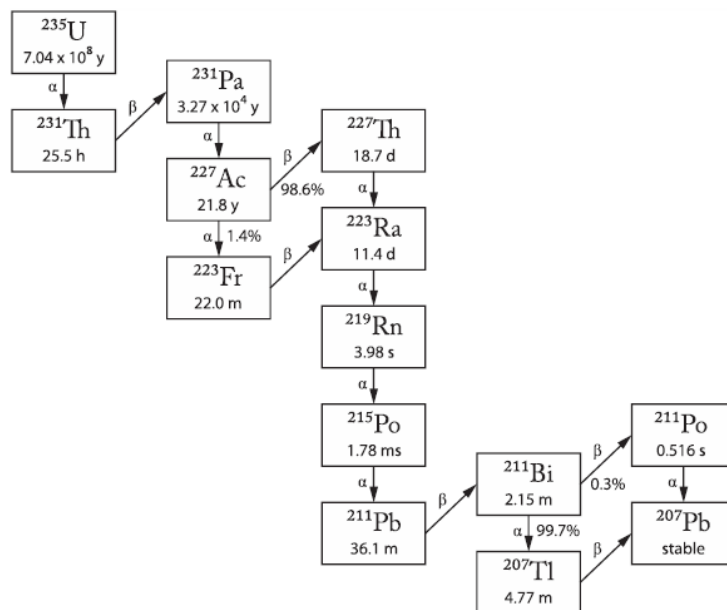
Ranije se za materijale dobijene iz različitih tehnoloških postupaka, a koju u sebi sadrže prirodne radioisotope (fosfogips, leteći pepeo, šljaka iz visokih peći i dr.) koristio izraz TENORM (eng. *Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materijal*) ali se prema novijim klasifikacijama od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju ovaj izraz prestao koristiti, i svi materijali koji u sebi sadrže prirodne izotope označeni su kao NORM.

1.3.1 Radonuklidi u građevinskim materijalima

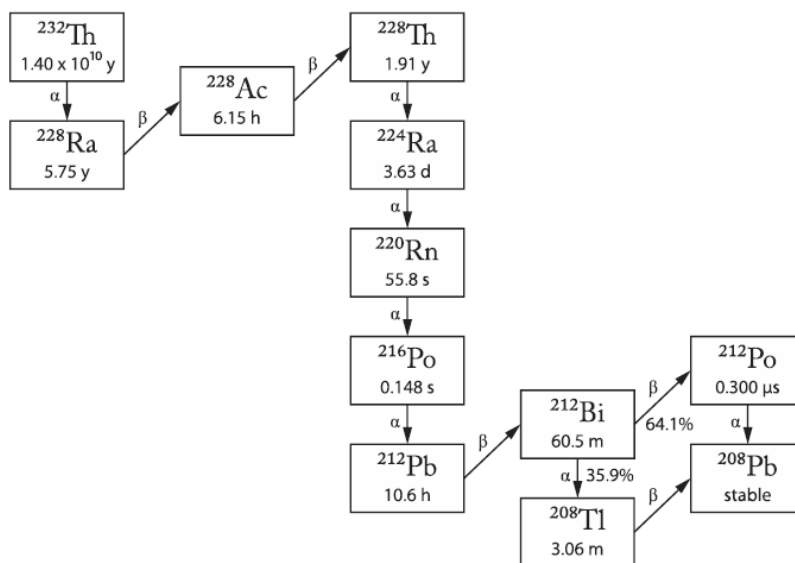
Radiouklidi zemaljskog porekla koji se javljaju u prirodi, prisutni su u različitim koncentracijama u životnoj sredini, uključujući i ljudsko telo. Samo oni radionuklidi sa poluživotom uporedivim sa starošću planete Zemlje i njihovi produkti raspada postoje u dovoljnoj količini da značajno doprinesu izloženosti stanovništva (UNSCEAR, 2008). Prema podacima UNSCEAR (1993, 2000) Zemljina kora sadrži između 2 ppm i 20 ppm torijuma, i između 0,5 i 5 ppm uranijuma. Maseni odnos izoropa ^{235}U i ^{238}U je oko 0,0073 i odnos aktivnosti oko 0,046.



Slika 1.2 Serija raspada primordijalnog radionuklida ^{238}U (IAEA 474, 2013).



Slika 1.3 Serija raspada primordijalnog radionuklida ^{235}U (IAEA 474, 2013).



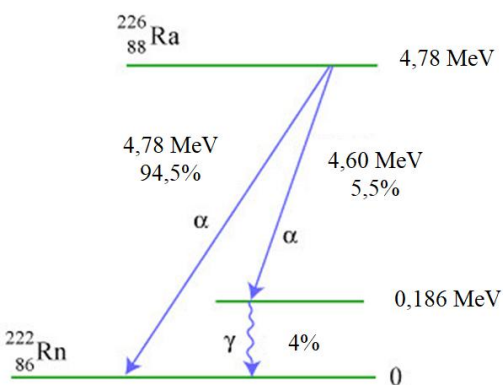
Slika 1.4 Serija raspada primordijalnog radionuklida ^{232}Th (IAEA 474, 2013).

U prirodi se može naći određen broj izotopa (više od 60) koji su nestabilni i raspadaju se. U prirodi postoje tri radioaktivna elementa kojima je period poluraspada toliko dug da nisu uspeli u potpunosti da se raspadnu u poslednjih 4,5 milijardi godina na koliko je procenjena starost planete Zemlje. Reč je o uranijumovim izotopima ^{238}U , ^{235}U i izotopu torijuma ^{232}Th čiji se periodu poluraspada $4,5 \cdot 10^9$, $7,1 \cdot 10^8$ i $1,4 \cdot 10^{10}$ godina, respektivno. Izotop ^{238}U se nakon emisije alfa čestice transformiše u ^{234}Th , koji se dalje raspada i nakon beta raspada prelazi u metastabilno jezgro $^{234\text{m}}\text{Pa}$. Ovaj izotop se dalje raspada beta raspadom tako da se proces raspada odvija preko niza elemenata dok se kao krajnji produkt raspada ne stvori stabilni izotop olova ^{206}Pb . Ovakav

raspad u kojim se sukcesivnim transformacijama (alfa raspadom i beta raspadom praćeni gama zračenjem) dobijaju nestabilni izotopi koji se završavaju nekim od stabilnih izotopa olova ostvaruje radioaktivni niz. Na Slikama 1.2-1.4 prikazani su prirodni radioaktivni nizovi ^{238}U (uranijumov niz), ^{235}U (aktinijumski niz) i ^{232}Th (torijumov niz) (IAEA 474, 2013; Krmar, 2013).

Ono što je potrebno naglasiti je da se svi izotopi iz ova tri niza u prirodi ne mogu naći izvan samog niza, već isključivo kao njegov deo. U prirodni postoje neki od radioaktivnih izotopa koji se mogu naći u prirodi, a ne pripadaju ni jednom od radioaktivnih nizova. Najpoznatiji je ^{40}K čiji je period poluraspada $1,4 \cdot 10^9$ godina. Radioaktivni elementi mogu nastati u pri interakciji atoma u višim slojevima atmosfere sa kosmičkim zračenjem. Takvi izotopi su ^7Be i ^{14}C koji takođe nisu članovi ni jednog radioaktivnog niza.

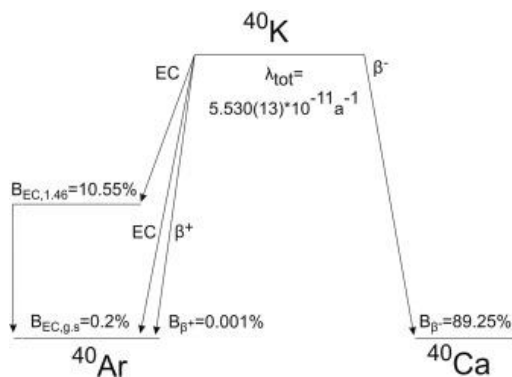
Prirodni uranijum uglavnom sadrži ^{238}U , čija je šema raspada prikazana na Slici 1.2. Kao što je prikazano na ovoj slici, svaki član ove serije je nestabilan i raspada se ili alfa ili beta raspadom dok se ne formira stabilan izotop ^{206}Pb . Pored ^{238}U , prirodni uranijum sadrži 0,73% ^{235}U . Ovaj izotop je takođe predek serije raspada koja se završava stabilnim izotopom ^{207}Pb . ^{238}U je najčešći izotop uranijuma koji se nalazi u prirodi. Oko 99,284% prirodnog uranijuma predstavlja ^{238}U . Uranijum se javlja u brojnim mineralima kao što su uraninit, karnotit, autunit, uranofan, davidit i tobernit. Takođe se nalazi u pesku fosfata, lignita i monazita, i može se komercijalno izvući iz ovih izvora. Tragovi uranijuma (kao i torijuma ^{232}Th) mogu se naći u praktično svim mineralnim sirovinama koje se koriste za proizvodnju betona i drugih građevinskih cementnih proizvoda. Jedan od značajnijih članova niza ^{238}U je radijum-226 (^{226}Ra) koji je zemnoalkalni element sa periodom poluraspada od 1620 godina, čijim alfa raspadom nastaje radon-222 (^{222}Rn) kome će biti posvećena naročita pažnja u ovoj studiji. Šema raspada ^{226}Ra data je na Slici 1.5. Ovaj radionuklid alfa raspadom prelazi u ^{222}Rn emitujući alfa česticu energije 4,78 MeV (94,5%) ili emitujući alfa česticu energije 4,60 MeV (5,5%) uz emisiju gama fotona energije 0,186 MeV (4%) prelazi u stabilnije stanje ^{222}Rn (L'Annunziata, 2012).



Slika 1.5 Šema raspada ^{226}Ra .

Uranijum i radijum se pojavljuju u litosferi u različitim geološkim objektima: stenama, rudama kao i samom tlu. U najvećim koncentracijama se pojavljuju u rudama, u sopstvenim rudnim ležištima ili pak kao primese u rudama fosfata i drugim sirovinama; u stenama se značajno koncentrišu, zbog svog geohemijskog karaktera, u kiselim magmatskim stenama i škriljcima. Istraživanja su pokazala da su najviše koncentracije ^{226}Ra uzmerene u granitnim stenama, kao i NORM materijalima fosfogipsu, šljaci iz visokih peћи kao i pepelu od sagorevanja uglja (Al-Jarallah, 2001; EC, 1999; Todorović et al., 2014).

Torijum-232 (^{232}Th), je prirodni radionuklid koji se javlja u mineralima toritu i torijanitu. Njegove količine u tragovima nalaze se i u većini građevinskih materijala mineralnog porekla, uključujući beton. Lanac raspada ^{232}Th prikazan je na Slici 1.4. Jedan od izotopa ovog lanca je radioaktivni gas radon-220 (^{220}Rn), nazvan toron.



Slika 1.6 Šema raspada ^{40}K .

Kalijum-40 (^{40}K) je radioaktivni izotop prirodnog porekla koji se javlja samostalno van tri osnovna radioaktivna niza (kalijum predstavlja oko 2,4% težine Zemljine kore). Šema raspada ^{40}K prikazana je na Slici 1.6 gde se može uočiti da se dezintegracija kod ovog nuklida odvija β^- raspadom u stabilni ^{40}Ca (89, 25%) kao i putem elektronskog zahvata (10,55%) nakon čega se odvija β^+ raspad u stabilni ^{40}Ar koji se deekscituje emitujući gama liniju energije 1460,82 keV. Od prirodnih radionuklida ^{40}K je najrasprostranjeniji u Zemljinoj kori. Procenjuje se da je njegova masena zastupljenost i do 10.000 puta veća od uranijuma i torijuma. Postoje dva stabilna (neradioaktivna) izotopa kalijuma, ^{39}K i ^{41}K . ^{39}K sadrži većinu (oko 93%) prirodnog kalijuma, a ^{41}K čini uglavnom sve ostalo. Radioaktivni ^{40}K sadrži veoma mali udeo (oko 0,018%) kalijuma koji se nalazi u prirodi. Pošto ^{40}K predstavlja 0,018% prirodnog kalijuma, njegova koncentracija u Zemljinoj kori je oko 1,8 mg/kg ili 480 Bq kg $^{-1}$. Masena zastupljenost K u stenama u Zemlji je 10 4 puta veća od ^{232}Th i ^{238}U (Antović and Antović, 2018; Slivka et al., 2000).

Prema naznakama Evropske Komisije (EC, 1999) radionuklidi koji najviše doprinose jačini apsorbovane doze gama zračenja i čije se koncentracije aktivnosti obično određuju prilikom monitoringa radioaktivnosti građevinskih materijala su ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K . Prosečne koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za građevinske materijale u svetu iznose 50 Bq kg $^{-1}$, 50 Bq kg $^{-1}$ i 500 Bq kg $^{-1}$, respektivno (UNSCEAR, 1993).

Ljudi su svakodnevno izloženi gama zračenju kao i radonu i njegovim potomcima koji potiču iz građevinskih materijala, jer provedu čak 80% životnog veka u zatvorenom prostoru (UNSCEAR, 2000). Izloženost zračenju od prirodne radioaktivnosti građevinskih materijala može predstavljati zdravstveni hazard (ICRP, 1990; Iwaoka et al., 2015; Lu et al., 2014). Neka od istraživanja navode da izloženost zračenju iz građevinskih materijala predstavlja oko 10% od doze zračenja koju čovek primi u toku jedne godine (Uosif, 2013). Radionuklidi u građevinskim materijalima čijim je zračenju čovek izložen potiču iz serija ^{238}U , ^{232}Th i primordijalnog radionuklida ^{40}K (Cazula et al., 2015; Lu et al., 2014; Madruga et al., 2018). Još sedamdesetih godina prošlog veka Savezna Republika Nemačka obavila je istraživanje sa 30 000 stanova i utvrdila da je, u proseku, spoljašnja izloženost zračenju bila veća za 33% unutar stanova nego na otvorenom. Stoga, iako građevinski materijali apsorbuju zračenje koje potiče izvan zgrade,

izloženost unutar zgrade više je nego nadoknađeno prisustvom radionuklida u građevinskom materijalu (Cazula et al., 2015; Eisenbud and Gesell, 1997).

Najveću opasnost po zdravlje ljudi predstavlja povećan nivo ^{226}Ra u građevinskim materijalima zbog dvostruke opasnosti od izlaganja gama zračenju i udisanja ^{222}Rn iz okolnog vazduha (Kayakökü et al., 2016; Madruga et al., 2018; Todorović et al., 2014a). Radioaktivnost građevinskih materijala zavisi od radioaktivnosti materijala koji se koriste za njihovu proizvodnju (stene i zemlja) što zavisi od lokalnih geoloških i geofizičkih uslova (Kayakökü et al., 2016; Amin and Naji, 2013, Uosif, 2013; Madruga et al., 2018). Neki od građevinskih materijala kao što su granit, cigla, gips, cement i keramičke pločice mogu proizvesti značajnu dozu zračenja (Madruga et al., 2018). Nivo radioaktivnosti npr. keramičkih pločica može biti povećan usled korišćenja cirkona kao pigmenta u glazuri pri proizvodnji (IAEA, 2003, 2007). Koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u circonijumskim mineralima može dostići vrednost i do 6900 Bq kg^{-1} , izmereno za neke italijanske cirkone (Todorović et al., 2016). U nekim keramičkim pločicama u Jemenu izmerena je koncentracija aktivnosti ^{226}Ra i ^{232}Th oko 550 Bq kg^{-1} i 270 Bq kg^{-1} , respektivno (Amin and Naji, 2013), što može predstavljati značajnu izloženost jonizujućem zračenju.

Da bi se optimizovala izloženost ljudi jonizujućem zračenju, postoji potreba za kontrolom i praćenjem koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u građevinskim materijalima (Todorović et al., 2017). Da bi se merenje ovih radionuklida izvelo na valjan način, sa pouzdanim rezultatima, potrebno je postizanje sekularne radioaktivne ravnoteže.

1.3.2 Radioaktivna ravnoteža

U radioaktivnim nizovima gde se radioizotopi sukcesivno raspadaju sve dok se ne dobije stabilni radioizotop, postavlja se problem određivanja aktivnosti pojedinih radionuklida članova niza, odnosno broja atoma N , ukoliko su poznati period poluraspada $T_{1/2}$ ili konstanta radioaktivnog raspada λ posmatranog radionuklida. Za radioaktivni niz sačinjen od n članova, proces sukcesivne radioaktivne transformacije radionuklida može se opisati sa n diferencijalnih jednačina.

Početni problem se postavlja polazeći od sledećeg slučaja:



Transformacija (1.1) bi se mogla opisati i rečima i glasila bi: N_1 se raspada u N_2 , a ova se vrsta atoma raspada u N_3 koji je stabilan član niza. U ovom nizu se N_1 zove predak, a N_2 potomak, pri čemu su λ_1 i λ_2 konstante radioaktivnog raspada pretka odnosno potomka. Ovakav se radioaktivni proces može opisati sa tri diferencijalne jednačine koje imaju oblike:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad (1.2)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (1.3)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 \quad (1.4)$$

Rešavanjem jednačine (1.3) dobija se broj atoma drugog člana u radioaktivnom nizu. Treba napomenuti da je broj atoma prvog niza N_1 dat jednačinom eksponencijalnog oblika, odnosno zakonom radiaktivnog raspada koji ima oblik:

$$N_1 = N_{01}e^{-\lambda_1 t} \quad (1.5)$$

uvrštanjem relacije (1.5) u (1.3) dobija se:

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01}e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 N_2 \quad (1.6)$$

množenje izraza (1.6) sa $e^{\lambda_2 t}$ i integracijom dobija se izraz:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} + C e^{-\lambda_2 t} \quad (1.7)$$

gde je C konstanta integracije. Ona se određuje iz početnih uslova u trenutku $t=0$ bilo je N_{02} atoma potomka pa se iz toga dobija da konstanta integracije ima vrednost:

$$C = N_{02} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} \quad (1.8)$$

Ako relacija (1.8) uvrsti u (1.7) dobija se:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{02} e^{-\lambda_2 t} \quad (1.9)$$

Poslednja jednačina daje zavisnost broja atoma potomka nastalih radioaktivnim raspadom njegovog pretka N_1 od vremena.

Ako se vrednost N_2 uvrsti u relaciju (1.4) i ova reši, dobija se broj atoma poslednjeg člana niza, koji je stabilan. Ovo rešenje ima oblik:

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 = \lambda_2 \left[\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{02} e^{-\lambda_2 t} \right] \quad (1.10)$$

Sređivanjem relacije i njenom integracijom dobija se rešenje za N_3 koje ima oblik:

$$N_3 = \left\{ \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} - N_{02} \right\} e^{-\lambda_2 t} - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} + D \quad (1.11)$$

gde je D integraciona konstanta. Ona se određuje iz početnih uslova kao malo pre. Neka je u trenutku $t=0$, bilo N_{03} atoma poslednjeg člana niza. Tada se primenom početnih uslova dobija vrednost konstante D koja iznosi:

$$D = N_{01} + N_{02} + N_{03} \quad (1.12)$$

Uvrštanjem D u relaciju (1.11) dobija se vremenska funkcija sledećeg oblika:

$$N_3(t) = N_{03} + N_{02}(1 - e^{-\lambda_2 t}) + N_{01} \left(1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t} \right) \quad (1.13)$$

u praksi se koristi sledeći početni uslov $N_{01} \neq 0$, a $N_{02} = N_{03} = 0$ relacije (1.9) i (1.13) mogu napisati kao:

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} (1 - e^{(\lambda_1 - \lambda_2)t}) \quad (1.14)$$

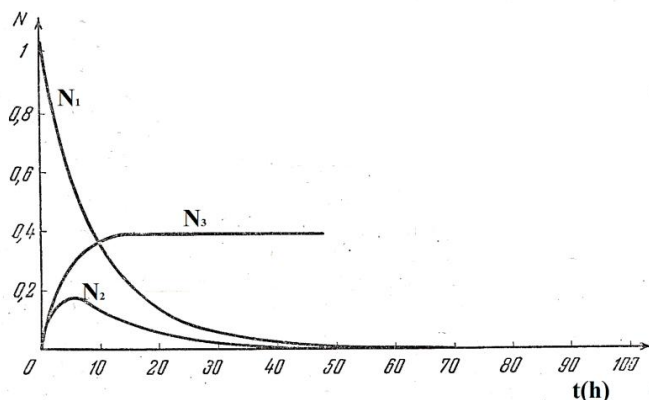
i

$$N_3(t) = N_{01} \left(1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t} \right) \quad (1.15)$$

Rešenja ove tri diferencijalne jednačine predstavljena su grafički na Slici 1.7. Ovaj problem u početku je postavljen sa radioaktivnim nizom od tri člana, čitava problematika se može dati i za niz od n članova, samo što se sistem dosta usložnjava i komplikuje rešavanje samih diferencijalnih jednačina.

Direktno objašnjenje sekularne radioaktivne ravnoteže vezuje se za uslov $\frac{dN}{dt} = 0$. Primenom ovog uslova na članova niza (1.2-1.4) (i tako i za sve više članove od trećeg) pokazuje se da se broj atoma bilo kog člana niza ne menja. To je, u stvari, onaj trenutak vremena kada se raspadne onoliko atoma koliko se stvori.

Strogo matematički, ovi uslovi u potpunosti nikada nisu ispunjeni. Z slučaj $\lambda=0$, podrazumeva se neaktivni materijal, pa govoriti o radioaktivnim ravnotežama tada nema smisla. Međutim, stanja bliska radioaktivnim ravnotežama su moguća. Recimo, to je slučaj kada pored poluraspada pretka $T_{1/2}$ teži beskonačnosti, ili je znatno veći u odnosu na period poluraspada potomka. Takav je primer ^{238}U . Njegov period poluraspada iznosi $T_{1/2}(^{238}\text{U})=4,5 \cdot 10^9$ godina, a period poluraspada njegovog potomka je kraći, te se N_1 može smatrati konstantnim, a $\lambda = \frac{0,693}{T_{1/2}} \rightarrow 0$ čime je, $\frac{dN_2}{dt} = 0$, uslov za radioaktivnu ravnotežu ispunjen.



Slika 1.7 Radioaktivni niz od tri člana. U početku prisutan je samo predak; potomak ima period poluraspada $T_2=5h$, dok je treći član stabilan.

Za ovaj tip radioaktivne ravnoteže može se napisati sledeći uslov:

$$\lambda_1 \ll \lambda_2 \quad (1.16)$$

tada je

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \dots = \lambda_n N_n \quad (1.17)$$

ili

$$\frac{N_1}{t_{1/2}^1} = \frac{N_2}{t_{1/2}^2} = \dots = \frac{N_n}{t_{1/2}^n} \quad (1.18)$$

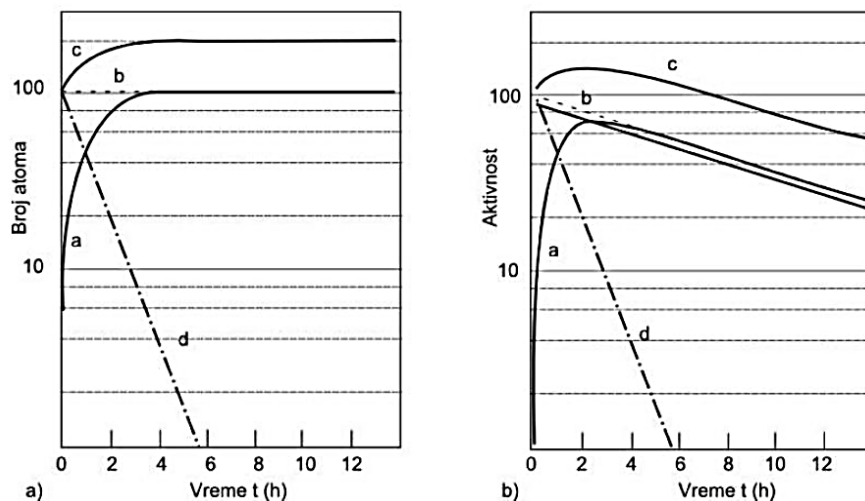
Ove se relacije mogu primeniti za određivanje vremena odnosno perioda poluraspada pretka, kada se period poluraspada potomka zna. Ako je period poluraspada pretka veoma dug, drugih mogućnosti za određivanje sem radioaktivne ravnoteže nema. U slučaju da je poznat odnos broja atoma između urana i radijuma; on iznosi $\frac{N(^{238}\text{U})}{N(^{226}\text{Ra})} = 2,8 \cdot 10^6$, a period poluraspada radijuma kako je navedeno ranije iznosi 1620 godina. Na osnovu ovih podataka period poluraspada urana je određen i iznosi $4,5 \times 10^9$ godina. Ovakav tip ravnoteže naziva se sekularna ili trajna radioaktivna ravnožeža (Marinkov, 2010).

Korišćenjem jednačine (1.14), kao i uslova sekularne radioaktivne ravnoteže (1.16), može se napisati izraz za aktivnost potomka koji glasi:

$$A = \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (1.19)$$

Ova jednačina predstavlja aktivnost potomka u funkciji vremena. Apsolutna aktivnost, međutim, jednaka je sumi aktivnosti pretka i potomka i može se izraziti na sledeći način:

$$A_{\text{tot}} = \lambda_1 N_{01} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} (2 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (1.20)$$



Slika 1.8 Trajna i prelazna ravnoteža (Marinkov, 2010).

- (a) a - Rastuća aktivnost potomka; b - Aktivnost pretka ($T \rightarrow \infty$); c - Totalna aktivnost; d - Raspad potomka (b) a - Narastajuća aktivnost potomka; b - Aktivnost pretka ($T = 8,0$ h); c - Totalna aktivnost; d - Raspad potomka; e - Totalna aktivnost potomka u frakcijama pretka i potomka.

Prema relaciji (1.18), vidi se da aktivnost potomka raste sa vremenom. Posle nekoliko perioda poluraspada potomka, aktivnost potomka će se izjednačiti sa aktivnošću pretka. Apsolutna

aktivnost se uvećava dva puta, što se vidi iz relacije (1.19). Uspostavljanje ovakve radioaktivne ravnoteže dato je na Slici 1.8a pod a) i b).

Drugi tip radioaktivne ravnoteže sledi iz uslova:

$$\lambda_1 < \lambda_2 \quad (1.21)$$

tj. kada konstanta raspada λ_2 nije mnogo veća od konstante λ_1 , ali se znatno razlikuju. To je slučaj kada je period puluraspada pretka veći od perioda poluraspada, odnosno kada je $T_{1/2}^1 > T_{1/2}^2$. U tom slučaju je

$$e^{-\lambda_2 t} < e^{-\lambda_1 t} \quad (1.22)$$

pa se član $e^{-\lambda_2 t}$ u relaciji (1.14) može zanemariti. Pod ovim uslovima broj atoma potomka iznosi:

$$N_2 \simeq \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (1.23)$$

Prema relaciji (1.21) kada je radioaktivna ravnoteža jedanput uspostavljena, apsolutna aktivnost opada sa periodom poluraspada pretka (Marinkov, 2010).

Pošto je $N_1 = N_{01} e^{-\lambda_1 t}$, odnos broja atoma pretka i potomka dat je relacijom:

$$\frac{N_2}{N_1} \simeq \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1}$$

Odnos merenih aktivnosti pri radioaktivnoj ravnoteži ovog tipa dat je kao:

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (1.24)$$

Ovaj tip ravnoteže naziva se tranzitna ili prelazna ravnoteža i prikazana je na Slici 1.8a pod b).

2 Efekti jonizujućeg zračenja na ljudski organizam

Jonizujuće zračenje je zračenje koje ima dovoljno energije da izbije elektrone iz molekula. Slobodni elektroni zauzvrat mogu oštetiti ljudske ćelije. Jedan izazov za razumevanje zdravstvenih efekata radijacije je to što ne postoji opšte svojstvo koje razlikuje efekte radijacije izazvane čovekom od prirodnog zračenja. Još jedna poteškoća je u razlikovanju karcinoma koji nastaju zbog izloženosti zračenju od karcinoma koji nastaju zbog drugih uzroka. Ove su činjenice samo neke od mnogih koje otežavaju okarakterisati štetne efekte jonizujućeg zračenja na niskim nivoima. Naime, postoje značajni dokazi da izlaganje visokom nivou jonizujućeg zračenja može izazvati bolest ili smrt. Dalje, naučnici su otkrili da pored raka, jonizujuće zračenje u velikim dozama

izaziva mentalnu retardaciju kod dece majki izloženih zračenju tokom trudnoće. Podaci preživelih od atomske bombe ukazuju na to da su velike doze povezane i sa drugim zdravstvenim efektima, poput srčanih bolesti i moždanog udara. Odavde se može zaključiti da je jonizujuće zračenje ozbiljna pretnja po zdravlje (Committee, 2006).

Ljudska bića su svakodnevno izložena prirodnom zračenju iz tla, građevinskog materijala, vazduha, hrane, svemira, pa čak i elemenata u svojim telima. U interakciji jonizujućih zračenja sa biološkom materijom dešava se prenos energije koja dovodi do pobuđenja atoma sredine i nastanka jonizacije. Važno je napomenuti da se zbog konstantnog postojanja prirodne radioaktivnosti (fona) kao i veštačkih izvora jonizujućeg zračenja prisutnih u životnoj sredini, ne može reći da postoji situacija “potpune neozračenosti” odnosno nulte doza koja može rezultirati pojavom nultog rizika za čoveka. Za razliku od velikih doza kada mogu nastati tkivna oštećenja i pri manjim dozama zračenja na nivou prirodnog fona mogu nastati neki od stohastičkih efekata (kancer i nasledni efekti). Doze oko prirodnog fona mogu izazvati ćelijska odnosno DNK oštećenja što može da indukuje neki od kancera ili nasledni efekat (Antović and Antović, 2018).

Da bi se izvršila procena rizika od zračenja i dejstva na ljudski organizam potrebno je poznavati doze zračenja kojima čovek potencijalno može biti izložen u određenim uslovima. Poznavanje doza zračenja je veoma značajno sa stanovišta same zaštite od zračenja koje se propisuju domaćim i međunarodnim aktima i protokolima kako za stanovništvo tako i za profesionalno izložena lica (Antović and Antović, 2018).

Izloženost zračenju meri se u odnosu na količinu apsorbovane doze (D) koja je jednaka odnosu energije koja se preda masi izloženog tela ili organa i može se iskazati pomoću relacije (2.1):

$$D = \frac{dE}{dm} \quad \left(\frac{\text{J}}{\text{kg}} = \text{Gy} \right) \quad (2.1)$$

Merna jedinica za apsorbovanu dozu (D) je džul po kilogramu (J kg^{-1}), što je označeno kao Grej (Gy). Jonizujuće zračenje može se sastojati od elektromagnetnog zračenja, poput X-zraka ili gama zraka (γ -zraka), ili od subatomske čestice, poput protona, neutrona i α -čestice. Za rendgenske i γ zrake se kaže da slabo jonizuju, jer stvaraju brze elektrone koji uzrokuju samo nekoliko desetina jonizacija kada prelaze ćeliju. Pošto se brzina prenosa energije po jedinici puta naziva linearni prenos energije ili linearni energijski transfer (LET^1), oni se takođe nazivaju zračenjem niskog LET-a ili zračenja sa niskim LET-om. Suprotno tome, teže čestice (neutron i α -čestice) se nazivaju zračenja visokog LET-a jer prenose više energije po jedinici dužine dok prolaze kroz ćeliju. Zračenja visokog LET-a mogu uzrokovati više štetnih efekata po jedinici apsorbovane doze (Committee, 2006).

Za potrebe zaštite od zračenja koristi se veličina – ekvivalentna doza zračenja (H_T) koja se može iskazati preko apsorbovane doze zračenja relacijom (2.2) kao:

$$H_T = W_R \cdot D_{T,R} \quad (2.2)$$

¹ LET se obično izražava u keV (μm)⁻¹. Ono što je potrebno naglasiti jeste da alfa čestice imaju sposobnost direktne jonizacije sredine kroz koju se prostiru dok neutroni, gama zračenje i rendgensko zračenje pošto ne nose naelektrisanje vrše indirektnu jonizaciju gde sopstvenu energiju prenose na naelektrisane čestice koje dalje vrše jonizaciju (Antović and Antović, 2018).

gde je W_R težinski faktor datog zračenja (radijacioni težinski faktor), a $D_{T,R}$ je apsorbovana doza zračenja tipa – R za vrstu tkiva T . Radijacioni težinski faktor je bezdimenziona veličina, stoga da bi se ekvivalentna doza zračenja razlikovala od apsorbovane doze uvedena je merna jedinica Sv (Sivert) koja je takođe $J\ kg^{-1}$ kao i Gy. Težinski faktor za alfa čestice ima vrednost 20, dok za fotone i elektrone ima vrednost 1, a kod neutronske čestice zavisi od njihove energije (Stabin, 2007).

Za procenu radijacionog rizika korišćenje apsorbovane doze zračenja ne daje značajne informacije ako se u obzir ne uzme distribucija energije u ljudskom telu/organu, vreme izlaganja i radiosenzitivnost ozračenog tkiva ili organa. Iz tog razloga je uvedena efektivna doza zračenja koja ove činjenice uzima u obzir. Efektivna doza se može izraziti pomoću relacije (2.3) kao:

$$E = \sum_T W_T \cdot H_T = \sum_T W_T \sum_R W_R \cdot D_{T,R} \quad (2.3)$$

gde je W_R tkivni težinski faktor koji je takođe bezdimenziona veličina. Ovako definisana doza zračenja postavlja osnove za procenu doze zračenja kojom je izloženo čitavo telo ili određeni organ. Suma svih težinskih faktora za pojedinačne organe u ljudskom telu mora biti 1. Prema izveštaju ICRP iz 1977. godine najveći težinski faktor se pripisuje gonadama (0,25), te se iz toga zaključuje da su gonade najsenzitivnije na dejstvo jonizujućeg zračenja (Antović and Antović, 2018).

Ozračivanje ljudskog organizma može biti spoljašnje i unutrašnje. Spoljašnje ozračivanje je svako ozračivanje koje na organizam deluje spolja, kao što su prirodno izvori zračenja (kosmičko zračenje i prirodni radionuklidi) i veštački izvori u medicini. Unutrašnja izloženost ljudskog organizma zračenju osim medicinskih procedura (nuklearna medicina), uslovljena je činjenicom da se određena količina radionuklida unosi hranom i pićem kao i veliki deo udisanjem radioaktivnih gasova (radona i torona). Respiratorni trakt, gastrointestinalni trakt i koža su organi preko kojih se radioaktivne supstance unose u organizam. Respiratorni trakt može organizmu dati značajnu dozu zračenja udisanjem radioaktivnog gasa ^{222}Rn .

Decenijama je izloženost zračenju bila povezana sa oštećenjem genoma i razvojem karcinoma. Istraživanja o mehanizmima pomoću kojih jonizujuće zračenje može povećati rizik za zdravlje takođe su fokusirana na kardiovaskularne bolesti i imunološke poremećaje. Postoje posebni slučajevi veoma složenih mehanizama koji su uključeni u biološke efekte radioaktivnih izotopa koji ne samo da mogu biti izvor zračenja, već, kao što teški metali, poput uranijuma, mogu ispoljavati i hormonalnu, estrogensku aktivnost (Pacheco-Torgal et al., 2012).

Zdravstveni efekti povezani sa izlaganjem uranijuma i torijuma iz građevinskih materijala mnogo su složeniji nego u slučaju izloženosti radonu. Kao teški metal, uranijum je izvor jonizujućeg zračenja, visoko je toksičan, teratogen i embriotoksičan i ima pripadnost estrogenskim receptorima (endokrini poremećaj) (Pacheco-Torgal et al., 2012).

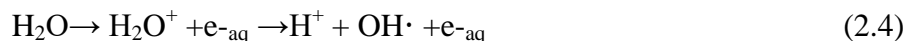
Izloženost torijumu povezana je sa karcinomom gušterače i pluća i respiratornim bolestima. Kako je to težak metal, može se nakupljati u kostima i može izazvati rak kostiju. Kao i uranijum, i torijum imaju sklonost za estrogenske receptore, mada ovaj biološki mehanizam nije istražen (Pacheco-Torgal et al., 2012).

Biološki efekti ozračivanja zavise od radiosenzitivnosti ćelije, ali i organa i organizma u celini, od jačine i ukupne primljene doze, od energije i vrste zračenja kao i od vrste tkiva izloženog organa. Konvencionalna sanjanja o interakciji jonizujućih zračenja sa ljudskim organizmom govore da oštećenja bioloških molekula, posebno DNK, od procesa jonizacije i pobuđenja, na kraju rezultiraju transformacijom ćelije ili ćelijskom smrću. Ćelijska transformacija može biti

fatalna ili može dovesti do izražaja bolesti (obično raka) u kasnijem periodu. Oštećenja na DNK mogu biti direktna (jonizujuća čestica direktno u interakciji sa atomom u DNK uzrokuje nastanak oštećenja) ili indirektna (zračenje u interakciji sa vodom u blizini DNK, formira slobodne radikale na DNK molekulima), (Stabin, 2007).

Većina oštećenja nastaje od stvaranja slobodnih radikala usled jonizacije i pobuđivanja molekula vode imajući u vidu da voda sačinjava po nekad i do 90% ćelijskog sadržaja. Stvoreni radikali prenose se na neko rastojanje, uzajamno deluju sa drugim molekulama, što može biti od biološkog značaja i na kraju prouzrokovati oštećenja ćelijskih struktura, pre svega DNK (Krmar, 2013; Stabin, 2007).

U prvoj fazi indirektno interakcije dešava se radioliza vode gde primarno naelektrisana čestica prolazi kroz elastične i neelastične sudare. Neelastični sudari rezultiraju jonizacijom i ekscitacijom molekula vode, ostavljajući iza sebe jonizovane (H_2O) i ekscitovane (H_2O^*) molekule i nevezane subekscitacijske elektrone ($e_{\text{-sub}}$). Subekscitacijski elektron je onaj čija energija nije dovoljna da proizvede dalje elektronske prelaze. Suprotno tome, neki elektroni proizvedeni u interakciji primarne naelektrisane čestice sa molekulama vode mogu sami imati dovoljnu energiju za proizvodnju dodatnih elektronskih prelaza. Ovi elektroni mogu proizvesti sekundarne strukture (delta zrake) izvan onih koje proizvodi primarna čestica. Sve naelektrisane čestice mogu komunicirati sa elektronima u vodi pojedinačno i zajedno u kondenzovanoj, tečnoj, fazi. Ako je molekul vode jonizovan, to rezultira stvaranjem jonizovanog molekula vode i slobodnog elektrona. Slobodni elektron brzo privlači druge molekule vode, jer blago polarni molekul ima pozitivan i negativan pol, a pozitivni pol privlači elektron. Grupa molekula vode se na taj način sakuplja oko elektrona, koji se naziva „akvatizovani elektron“ ($e_{\text{-aq}}$). Stvaranje akvatizovanog elektrona se odvija prema reakciji (2.4) (Stabin, 2007):



U slučaju ekscitacije, elektron u molekulu se podiže na viši energijski nivo. Ovaj elektron se može vratiti u osnovno stanje ili se molekul može raspasti u $\text{H}\cdot$ i $\text{OH}\cdot$ slobodne radikale koji su veoma reaktivni jer svaki ima visok afinitet za stupanje u hemijske reakcije. Srednje vreme života ovih radikala u vodi je oko 1 μs .



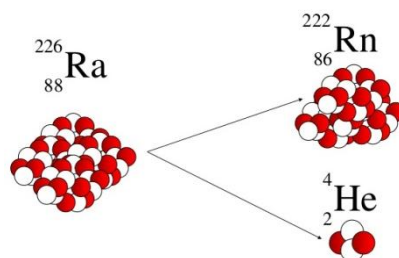
Dakle, kao konačni produkti procesa radiolize vode nastaju akvatizovan electron ($e_{\text{-aq}}$), i slobodni radikali ($\text{H}\cdot$ i $\text{OH}\cdot$), sa relativnim prinosom od 45%, 10% i 45% respektivno. Ono što je važno naglasiti jeste da ukoliko je ozračeno tkivo ili organ dobro snabdeveno kiseonikom, posledice bivaju višestruko veće jer kod tkiva siromašnih kiseonikom može se desiti i radiorezistentnost na određeno zračenje (Krmar, 2013).

Svaka DNK se sastoji od azotnih baza vezanih labavim vodoničnim vezama, pentoznog šećera i fosfatne grupe koji su uvnuti u dvolančanu antiparalelnu zavojnicu. Uočena su tri osnovna načina oštećenja DNK lanca do kojih dolazi pri interakciji sa stvorenim slobodnim radikalima: oštećenje azotne baze, prekid jednog ili oba lanca. Oštećenje azotnih baza se obično ogledaju u raskidu labavih vodoničnih veza među lancima. Oštećenja nastala na molekulu DNK ukoliko se ne oporave, ili se pogrešno poprave, nastaju mutacije ili hromozomske aberacije (Antović and Antović, 2018; Krmar, 2013).

3 Radon

Radon je plementiti gas, bez boje, mirisa i ukusa, 7,5 puta gušći od vazduha. Svaki od tri navedena radioaktivna niza sadrži po jedan radonov izotop:

1. U uranijumovom nizu (^{238}U) alfa raspadom ^{226}Ra nastaje ^{222}Rn čiji je period poluraspada 3,8232(8) dana (Slika 3.1). ^{222}Rn predstavlja najznačajniji radonov izotop zbog zastupljenosti u prirodi i pod terminom „radon“ obično se misli na ovaj izotop.
2. U torijumovom nizu (^{232}Th) nastaje ^{220}Rn , koji se naziva "toron". Ovaj radioizotop ima period poluraspada 55,8(3) s.
3. U aktinijumovom nizu (^{235}U) nastaje ^{219}Rn , koji se često naziva "aktinon". Period poluraspada aktinona je 3,98(3) s, vrlo malo je zastupljen u prirodi (zbog malog sadržaja izotopa urana ^{235}U) i njegov doprinos ozračenju ljudi je zanemarljiv (IAEA 474, 2013).



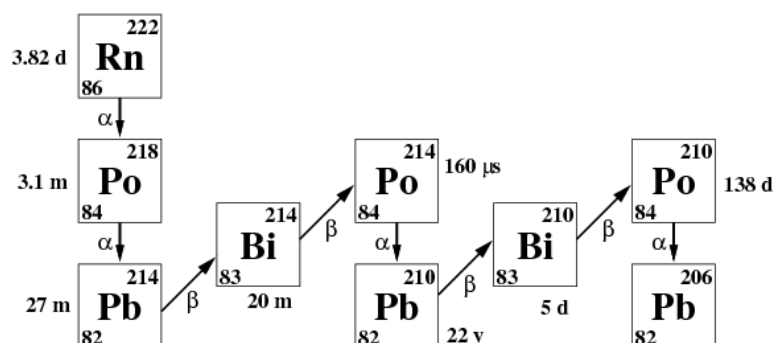
Slika 3.1 Šematski prikaz alfa raspada ^{226}Ra pri čemu nastaje radioaktivni gas ^{222}Rn .

Osnovne karakteristike ova tri radioizotopa date su u Tabeli 3.1. Od najvećeg značaja pri monitoringu izloženosti stanovništva radonu je njegov radioizotop ^{222}Rn , koji nastaje raspadom izotopa ^{226}Ra . Posljednjih godina se sve veća pažnja posvećuje izotopu toronu koji nastaje raspadom izotopa radijuma ^{224}Ra u torijumovom nizu, ^{220}Rn (Forkapić et al., 2019). Brojne studije su pokazale da najveći doprinos sveukupnog izlaganja radioaktivnom zračenju potiče upravo od radona i njegovih potomaka, najvećim delom kroz inhalaciju radona, ali delimično i njegovom ingestijom.

Tabela 3.1 Glavne karakteristike izotopa radona iz tri radioaktivna niza (Baskaran, 2016; L'Annunziata, 2012).

Parametar	^{222}Rn	^{220}Rn	^{219}Rn
Period poluraspada ($T_{1/2}$)	3,8232(8) d	55,8(3) s	3,98(3) s
Konstanta radioaktivnog raspada (λ)	$2,0984 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$	$1,242 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$	$1,74 \times 10^{-1} \text{ s}^{-1}$
Energija alfa čestice (MeV)	5,49 ($I_\alpha=99,92\%$) 4,99 ($I_\alpha=0,08\%$)	6,29 ($I_\alpha=99,93\%$) 5,75 ($I_\alpha=0,07\%$)	6,81 ($I_\alpha=81\%$) 6,55 ($I_\alpha=11,5\%$) 6,52 ($I_\alpha=0,12\%$) 6,42 ($I_\alpha=7,5\%$)
Prosečna energija uzmarka (E_T)	86 Kev	103 keV	104 keV
Difuzioni koeficijent u vazduhu (D_v)	$1 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$	-	-
Difuzioni koeficijent u vodi (D_w)	$1 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$	-	-

Izotop ^{222}Rn spada u alfa emitere, sa energijom alfa čestica od $E_{\alpha 1} = 5,49 \text{ MeV}$ ($I_{\alpha 1} = 99,92 \%$) i $E_{\alpha 2} = 4,99 \text{ MeV}$ ($I_{\alpha 2} = 0,08 \%$) (L'Annunziata, 2012) što su vrednosti energija dovoljne da se izvrši jonizacija nekoliko hiljada atoma. Sa stanovišta medicinske fizike, bitne osobine radona su: vreme polueliminacije iz pluća koje iznosi 30 minuta, a iz ostalih tkiva 15 minuta. Raspadom radona nastaju kratkoživeći potomci koji su alfa i beta emiteri (Slika 3.2) i koji se kao pozitivno naelektrisani čvrsti joni pripajaju za aerosole u vazduhu i kao takvi prilikom udisanja mogu da se zadrže u organizmu i talože, kako na ulasku u respiratorni sistem, tako i u samim plućima (Porstendörfer, 1994).



Slika 3.2 Deo uranijumog radioaktivnog niza koji pokazuje raspad ^{226}Ra u kom nastane radioaktivni gas ^{222}Rn . Raspadom radona nastaju potomci u čvrstom stanju koji su alfa emiteri sa periodom poluraspada dovoljno dugim da se zadrže u ljudskom organizmu.

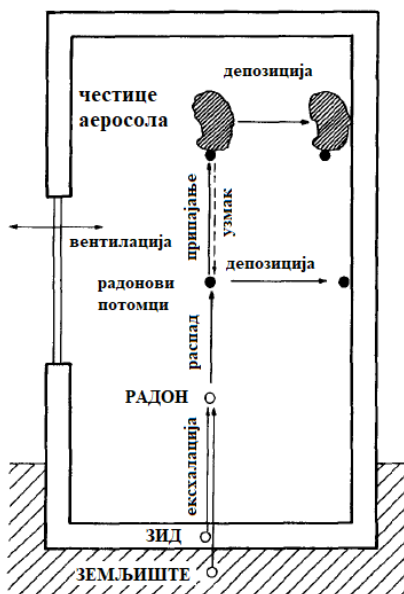
Kao što se može videti na Slici 3.2, raspadom radona nastaju kratkoživeći potomci ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po i dugoživeći potomak ^{210}Pb sa periodom poluraspada od 22,3 godine. Alfa raspadom radona, sa energijom alfa čestice 5,49 MeV, nastaje ^{218}Po . Polonijum je metal čiji se joni lepe za čestice prašine ili se talože na površinama sa kojima dođe u kontakt, kao što su zidovi prostorija, nameštaj, ali i unutrašnjost pluća. Nastali polonijum ima kratak period poluraspada od 3,05 minuta, a zatim se alfa raspadom raspada na nestabilan izotop ^{214}Pb . Emitovana alfa čestica ima energiju od 6,0 MeV. ^{214}Pb je u čvrstom agregatnom stanju sa periodom poluraspada 26,8 minuta i raspada se emisijom beta čestice i gama zraka na ^{214}Bi . ^{214}Bi je takođe u čvrstom agregatnom stanju i beta emiter sa periodom poluraspada od 19,8 minuta i njegovim raspadom nastaje ^{214}Po . Ovaj izotop polonijuma ima period poluraspada samo 164 milisekunde i predstavlja alfa emiter, sa energijom emitovane alfa čestice od 7,69 MeV². Raspada se na nestabilan izotop olova, ^{210}Pb , koji je dugoživeći radioizotop sa periodom poluraspada od 22,3 godine.

Dakle, opasnost po ljudsko zdravlje od radona proizlazi iz udisanja njihovih kratkotrajnih produkata raspada koji se mogu taložiti na plućno tkivo i oštetiti ga emisijom čestica alfa iz njegovih potomaka ^{218}Po i ^{214}Po .

Radonovi potomci koji nastanu nakon ulaska radona u zatvoren prostor su hemijski su vrlo aktivne pozitivno naelektrisane ili neutralne čestice koje vrlo brzo reaguju sa gasovima u tragovima i vazдушnim isparavanjima, stvarajući ultrafine čestice, nazvane klasterima ili "nepripojenom" frakcijom. Pored stvaranja klastera, ovi radionuklidi se vežu na postojeće čestice aerosola i prašinu u atmosferi, formirajući radioaktivni aerosol ili "pripojenu" frakciju. Ovaj radioaktivni aerosol može se ukloniti iz vazduha u zatvorenom prostorijem, tj. taloženjem na

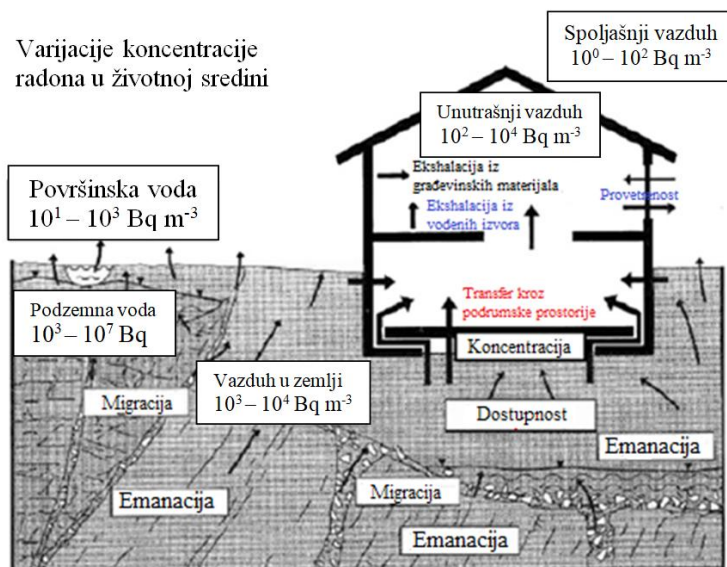
²Različite energije alfa čestica radona i njegovih potomaka omogućavaju detekciju raspada radona alfa spektrometrijskom metodom, kao i razdvajanje "novog" od "starog" radona tokom procesa merenja.

unutrašnjim površinama (depozicija), provetravanjem, uređajem za čišćenje vazduha ili radioaktivnim raspadom, Slika 3.3 (Forkapić et al., 2020; Porstendörfer, 1994).



Slika 3.3 Osnovni procesi koji utiču na ravnotežu radona u zatvorenom vazduhu i mehanizmi uklanjanja.

Pedesetih godina prošlog veka dovedeni su u vezu radon i njegovi potomci sa povećanjem incidence raka pluća kod rudara. 1879. godine *Härting i Hesse* su dijagnostifikovali povećan trend oboljenja od raka pluća kod rudara, što je postalo poznato pod imenom "*Schneeberger Bergkrankheit*" (*planinska bolest*). 45 godina kasnije, *Ludewig i Lorenzer* (1924.) predlažu da povećana pojava raka pluća može da se pripiše visokoj koncentraciji radona (od 10^3 do $5 \cdot 10^4$ Bq m^{-3}). Nakon toga je još 30 godina trebalo da se prepozna da je glavni uzročnik raka pluća ne radon, već njegovi kratkoživeći potomci – ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po (Porstendörfer, 1994).



Slika 3.4 Koncentracije radona u životnoj sredini i putevi ulaska u zatvoren prostor (Baskaran, 2016).

Radon iz tla doprinosi sa oko 69% izloženosti radonu, dok se doprinosu izloženosti iz građevinskih materijala pripisuje svega 2,5% (Baskaran, 2016; Seo et al., 2018). U unutrašnjosti zatvorenih prostora vlada nešto niži unutrašnji pritisak vazduha u poređenju sa onim u tlu ispod. To je obično dovoljno da radonski gas iz tla uđe u zgradu. Radon može da uđe u zgradu pomoću mnogih mehanizama, ali najznačajniji je difuzija i protok usled razlike pritisaka u zgradi i zemlji ispod nje - advekcija, pod uslovom da su dostupni odgovarajući putevi za ulazak: pukotine na podovima (i zidovima u podrumskim prostorijama), praznine oko cevi i kablova. U većini stanova sa povišenim koncentracijama radona u zatvorenom prostoru, protok pod pritiskom prepoznat je kao dominantan način ulaska (Todorović et al., 2014a; Tan and Xiao, 2013). Na Slici 3.3 date su tipične koncentracije aktivnosti radonskog gasa kao i putevi njegovog ulaska u zatvoren prostor. Tipične koncentracije radona u tlu se kreću u opsegu od 4 – 40 kBq m⁻³ i nekoliko redova veličine su veće u odnosu na vrednosti na opvorenom prostoru (Eisenbud and Gesell, 1997).

Koncentracija radona u zatvorenom prostoru do drugog sprata ima dominantan uticaj iz tla, dok je za gornje spratove značajan uticaj građevinskog materijala koji je korišćen pri gradnji odnosno ugrađen u zidove ili podove. Važni faktori su i kvalitet gradnje, provetrenost i klimatski parametri (vlažnost vazduha, temperatura, vazdušni pritisak) (Tan and Xiao, 2013; Todorović et al., 2014a). Pri proceni i merenju koncentracije radona u zatvorenom prostoru treba imati na umu postojanje sezonskih varijacija koncentracija radona, kao i varijacija na dnevnom nivou usled varijacije pritiska i temperature (Ćurguz et al., 2013; Porstendörfer, 1994; Tchorz-Trzeciakiewicz et al., 2018), što može biti uzrok u neslaganjima između dobijenih rezultata različitim mernim tehnikama. Maksimalne koncentracije radona primećene su u ranim časovima, a najniže vrednosti u kasnim popodnevним satima, kada su koncentracije otprilike jedna trećina jutarnjih maksimuma. Tokom godine, nivoi radona imaju tendenciju da dostignu vrhunac u jesenjim ili zimskim mesecima i imaju minimum u proleće (Eisenbud and Gesell, 1997).

Za procenu doze koja potiče od radona i njegovih potomaka, mora se poznavati količina i mesto depozicije u plućima inhaliranih radonovih i toronovih potomaka. Za proračune su neophodna tri parametra (Porstendörfer, 1994):

- koncentracija potomaka;
- koncentracija nepripojenih potomaka;
- distribucija aktivnosti u zavisnosti od veličine čestica radioaktivnih aerosola.

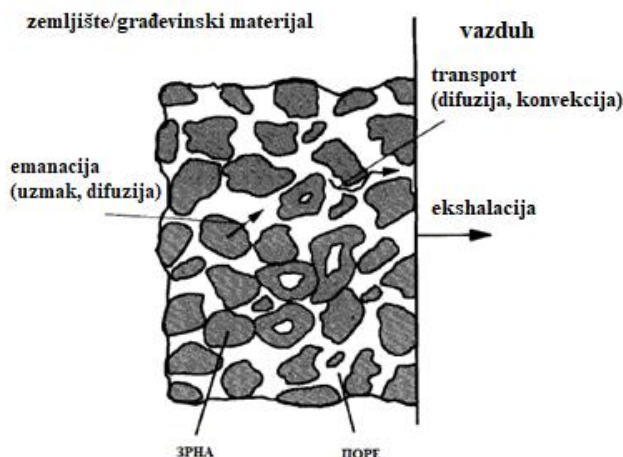
Ova tri parametra su pod uticajem brojnih procesa koji se odvijaju u nižim delovima atmosfere i u vazduhu prostorije (Porstendörfer, 1994):

- mehanizmi emanacije radona, kao i transport kroz zemljište i građevinski materijal;
- formiranje radioaktivnih aerosola pripajanjem potomaka česticama aerosola;
- depozicija radonovih i toronovih potomaka na površinu zemlje i površine prostorije;
- turbulentna difuzija u otvorenoj atmosferi i razmena vazduha u prostoriji (provetrenost).

3.1 Emanacija i ekshalacija radona

Radon dospeva u atmosferu najvećim delom emanacijom iz zemljišta ili građevinskih materijala sa visokim sadržajem radijuma, ali postoji i mali doprinos drugih izvora kao što su podzemne vode i prirodni gasovi. Zbog toga što zemljište i većina građevinskih materijala (poreklom od sirovina iz

Zemljine kore) imaju $10^3 - 10^4$ puta veće koncentracije radona nego u atmosferi, postoji veliki gradijent koncentracije radona/torona između takvog zemljišta ili materijala i vazduha. Gradijent koncentracije je najvećim delom određen koncentracijama aktivnosti uranijuma i torijuma koji su odgovorni za kontinuirani fluks radonovih izotopa (Porstendörfer, 1994).



Slika 3.5 Mehanizmi emanacije i ekshalacije radona iz tla i građevinskog materijala.

Odavanje radonskog gasa sa jedinične površine/mase u jedinici vremena naziva se brzina ekshalacije radona, dok se pod terminom emanacije radona podrazumeva sposobnost izlaska radona iz zrna u pore datog materijala usled uzmaka jezgra i difuziju kroz materijal, Slika 3.5. Prema redosledu procesa prvo se dešava emanacija u materijalu koja podrazumeva i transport radona do površine materijala sa koje radon ekshalira u okolnu atmosferu. Iz ovog razloga se prilikom tumačenja rezultata nagomilavanja radona u mernim komorama iz praškastih uzoraka isključivo meri emanacija radona iz celokupne mase, dok se kod čvrstih realnih uzoraka meri ekshalacija sa površine. U literaturi postoji opšta neusklađenost između ovih pojmova, te će ova studija nastojati da ih u potpunosti razjasni i razdvoji ove pojmove eksperimentalnim merenjima.

Na proces emanacije radonskog gasa utiču mnogi faktori kao što su: veličina i oblik čestica, sadržaj vlage i mineraloški aspekti poput strukture rešetke, poroznosti i elementarnog sastava (Forkapić et al., 2020).

Tla koja sadrže mali procenat vlage imaju veću ekshalaciju od potpuno suvog tla; međutim, ako vlažnost prelazi 8%, ekshalacija se smanjuje. Ova pojava se objašnjava povećanjem udela vode u porama, gde je uočeno da vlažnost negativno utiče na koeficijent difuzije. Povećanje temperature tla uzrokuje porast ekshalacije. Ako postoji razlika u pritisku sa slobodne površine tla u odnosu na dublje slojeve, dolazi do povećanja ekshalacije radona (Porstendörfer, 1994; Forkapić et al., 2020).

Koncentracija radona u otvorenoj atmosferi je određena sadržajem radijuma u materijalu, brzinom ekshalacije i meteorološkim uslovima (kao što su atmosferski procesi). Tri procesa određuju fluks (brzinu ekshalacije) radona iz poroznog materijala (Slika 3.5):

1) Emanacija – generisanje i otpuštanje radona iz zrna (čvrstih delova) u pore ispunjene vazduhom usled raspada ^{226}Ra . Atomi radona koji se uspeli migrirati u pore materijala se nazivaju slobodnim radonom, dok oni atomi koji se nalaze u čvrstoj fazi nazivaju se vezanim radonom;

2) Transport atoma radona do površine materijala usled procesa difuzije kroz pore materijala ispunjene vazduhom i

3) Ekshalacija atoma radona koji su transportovani na površinu materijala i kao takvi izlaze u okolnu atmosferu (IAEA, 474, 2013; Porstendörfer, 1994; Schroeyers, 2017).

3.2 *Transport i ekshalacija radona iz građevinskih materijala*

Pretpostavlja se da je građevinski materijal homogeni porozni medijum, a da se transport radona kroz materijal odvija kroz sistem pora koje su ispunjene vazduhom. Transport radona se javlja kao odgovor na dve različite pokretačke sile: razlike u koncentracijama radona u materijalu i okolnom prostoru i razlika u pritiscima. Usled gradijenta u koncentraciji radona nastaje difuzioni transport atoma radona kroz pore materijala; a pridruženi transportni koeficijent je efektivni koeficijent difuzije radona za dati materijal. Vazduh u sistemu pora kreće se kao odgovor na razliku pritisaka i ako je prisutan radon, on se kreće zajedno sa vazduhom. Pridruženi koeficijent transporta je koeficijent propustljivosti materijala za vazduh. Pored ovih transportnih koeficijenata, koji su jedinstveni za svaki građevinski materijal, dve druge konstante materijala, koje se unose u jednačine transporta radona, su poroznost (odnos količine pora prema ukupnoj zapremini) i količina slobodnog radona koji se kreće kroz pore materijala. Mnogi kvalitativni aspekti migracije radona iz tla, opisani su i razvijeni u literaturi i mogu se preneti na diskusiju o transportu radona u građevinskim materijalima (Colle et al., 1981).

Prema preporukama Međunarodne komisije za zaštitu od zračenja (ICRP, 2006) model procene godišnjih efektivnih doza koje potiču od spoljašnjeg izlaganja građevinskom materijalu treba da bude konzervativan, ali razumljiv i održiv. Kako je ranije naglašeno, najveća doza zračenja koju pojedinac primi tokom jedne godine potiče upravo od udisanja radonu u vazduhu i njegovih potomaka. Procena koncentracije radona u vazduhu zatvorenih prostorija zahteva poznavanje njegove brzine ekshalacije iz upotrebljenog građevinskog materijala (Abdullahi et al. 2019). Glavni izvor radona u višim zgradama su upravo građevinski materijali, te je određivanje brzine ekshalacije radona iz datog građevinskog materijala najvažniji faktor za procenu radijacionog rizika (Tan and Xiao, 2013).

Brzina ekshalacije (E) se u literaturi često koristi sa pojmovima površinske (E_S) (eng. *surface exhalation rate*) i masene (E_m) brzine ekshalacije (eng. *mass exhalation rate*) (Schroeyers, 2017; Awhida et al., 2016; Porstendörfer, 1994). Ekshalacija radona iz građevinskog materijala direktno zavisi od (IAEA 474, 2013):

- 1) Koncentracije aktivnosti radijuma u materijalu (A_{Ra});
- 2) Gustine matrice (ρ);
- 3) Koeficijenta emanacije radona (ε);
- 4) Koeficijenta difuzije radona (D_e);
- 5) Debljine korišćenog građevinskog materijala (d).

U ovom poglavlju biće objašnjeni mehanizmi koji utiču na ekshalaciju radona u okolni prostor, kao i načini predikcije koncentracije radona u okolnom (zatvorenom) prostoru, što treba kao konačno da rezultira procenom rizika od izloženosti radonu u eksperimentalnom delu ove studije.

Nakon što se formira u zrnima materijala, radon biva otpušten u pore materijala, te se kao takav mora transportovati kroz pore do površine materijala, pre nego što se raspadne u okolnoj atmosferi.

Dva osnovna mehanizma transporta radona u materijalu su:

1. difuzija – protok radona usled gradijenta koncentracije duž x ose koji se opisuje prvim *Fick*-ovim zakonom difuzije na osnovu relacije (3.1):

$$J(x) = -D_e \frac{dC(x)}{dx} \quad (3.1)$$

gde je $J(x)$ fluks radona duž vertikalne ose x unutar materijala, odnosno broj atoma radona koji protekne kroz jedinicu površine u jedinici vremena, izražena u $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$, D_e je efektivni koeficijent difuzije radona za dati građevinski materijal izražen u $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ i $C(x)$ je funkcija distribucije koncentracije slobodnog radona duž vertikalne ose x u balk materijalu u m^{-3} . Relacija (3.1) data je za najjednostavniji slučaj transporta radona kroz dati građevinski materijal, duž jednodimenzionalne vertikalne ose x . Znak minus ispred izraza proizilazi iz činjenice da radon difunduje od visoke ka niskoj koncentraciji (IAEA, 474, 2013).

2. advekcija – protok radona koji se javlja usled postojanja razlike u pritiscima, a opisuje se *Darcy*-jevim zakonom datim relacijom (3.2):

$$v_d = -\frac{K'}{\mu} \cdot \frac{dp}{dx} \quad (3.2)$$

gde je v_d brzina protoka radonskog gasa po površini poprečnog preseka, K' je permeabilnost materijala, μ je dinamički koeficijent viskoznosti u vazduhu i dp/dx je gradijent pritiska duž x ose.

Ukupan fluks radona $J(x)$ u materijalu se može izraziti kao zbirni doprinos ova dva mehanizma transporta u materijalu:

$$J(x) = D_e \cdot \frac{dC(x)}{dx} + v_d \cdot C(x) \quad (3.3)$$

Ako se uzmu u obzir granični uslovi dati u relaciji (3.4) na gornjoj i donjoj granici sloja može se pretpostaviti da je koncentracija radona u okolnom vazduhu izrazito mala u poređenju sa koncentracijom radona u datom građevinskom materijalu:

$$C(x = d) = 0; \quad C(x = 0) = 0 \quad (3.4)$$

Na osnovu relacije (3.5), brzina površinske ekshalacije radona (E_S) predstavlja vrednost koncentracije radonovih atoma koje otpušta (ekshalira) materijal sa jedinice površine u jedinici vremena:

$$E_S = -D_e \cdot \frac{dC(x)}{dx} \Big|_{x=0} \quad (3.5)$$

Da bi se dobila površinska ekshalacija radona (E_S) koja predstavlja vrednost koncentracije radonovih atoma koju materijal otpušta (ekshalira) sa jedinice površine u jedinici vremena, potrebno je primeniti drugi *Fick*-ov zakon koji se odnosi na promenu koncentracije radona u jedinici vremena:

$$\frac{dC(x, t)}{dt} = \frac{d^2C(x, t)}{dx^2} - \frac{d(v_d(x)C(x, t))}{dx} - \lambda C(x, t) + \lambda C_m \quad (3.6)$$

gde je λ konstanta radioaktivnog raspada radona, a C_m maksimalna koncentracija radona u materijalu na velikoj dubini (slučaj $x = \infty$) i može se izraziti pomoću relacije (3.7).

U ovom slučaju protok radona se odvija kroz beskonačni vodoravni sloj homogenog građevinskog materijala, što je u skladu sa debljinom betonske ploče u rasponu od 0,1 do 0,3 m i širine ne manje od 1 m. Koncentracija radona koja se odaje sa jedinice površine homogenog građevinskog materijala u jedinici vremena $C(x,t)$ se dobija rešavanjem prethodnih jednačina pod uslovom stabilne ravnoteže:

$$\frac{D_e}{P_{\text{eff}}} \cdot \frac{d^2 C(x,t)}{dx^2} - \frac{1}{P_{\text{eff}}} \cdot \frac{d(v_d C(x,t))}{dx} - \lambda C(x,t) + \lambda C_m = 0 \quad (3.7)$$

gde je P_{eff} efektivna poroznost datog građevinskog materijala, , a C_m maksimalna koncentracija radona u materijalu na velikoj dubini (slučaj $x = \infty$) i može se izraziti pomoću relacije (3.8):

$$C_m = \frac{\varepsilon \cdot A_{Ra} \cdot \rho}{P_{\text{eff}}} \quad (3.8)$$

gde je ε koeficijent emanacije radona, A_{Ra} koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u datom građevinskom materijalu, ρ gustina materijala i P_{eff} efektivna poroznost analiziranog uzorka građevinskog materijala. (Awhida et al., 2016; Porstendörfer, 1994; Schroeyers, 2017).

Prilikom određivanja ekshalacije radona iz homogenog građevinskog materijala, samo zbog unutrašnjeg izvora radona, advektivna komponenta se ne uzima u obzir. Advektivni proces u ovakvim ispitivanjima je obično minimiziran (Schroeyers, 2017).

Pretpostavljajući da se transport radona vrši isključivo difuzijom i da je početna koncentracija radonskog gasa sa obe strane zida d zanemarljiva ($C_0(0)=C_0(d)=0$) brzina površinske ekshalacije radona može se predstaviti relacijom (3.9) (Porstentörfer, 1994):

$$E_S = C_m \cdot \frac{1 - \cosh\left(-\frac{d}{L}\right)}{\sinh\left(-\frac{d}{L}\right)} \cdot L \cdot \lambda \cdot P_{\text{eff}} \quad (3.9)$$

gde je L dužina difuzije radona (m), koja je merilo srednjeg rastojanja koje atomi radona pređu u matrici pre njihovog radioaktivnog raspada. Ova veličina može se predstaviti relacijom (3.10) (Awhida et al., 2016; IAEA 474, 2013; Lopez-Coto et al., 2009; Kumar and Chauhan, 2014):

$$L = \sqrt{\frac{D_e}{\lambda}} \quad (3.10)$$

gde je D_e efektivni koeficijent difuzije radona izražen u $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$, λ je konstanta radioaktivnog raspada radona. Koeficijent difuzije radona je povezan sa strukturom pora u materijalu, temperaturom i vlažnošću vazduha. Obično se koristi za opisivanje sposobnosti radona da migrira u poroznim sredinama i njegova vrednost utiče na brzinu ekshalacije radona (Ye et al., 2018). Vrednosti difuzione dužine dobijene za neke uzorke betona se kreću u intervalu od 14,4 cm do 25,6 cm (Renken and Rosenberg, 1995). U istraživanju (Kumar and Chauhan, 2014) određene su

vrednosti ove veličine 22,5 cm za beton i 19,5 cm za granit uz vrednosti poroznosti od 22,3 % i 1,9%, respektivno dok su u radu (Narula et al., 2010) određene su dužine difuzije za gips, granit i tlo koje iznose 1,1 mm, 17 cm i 88 cm, respektivno.

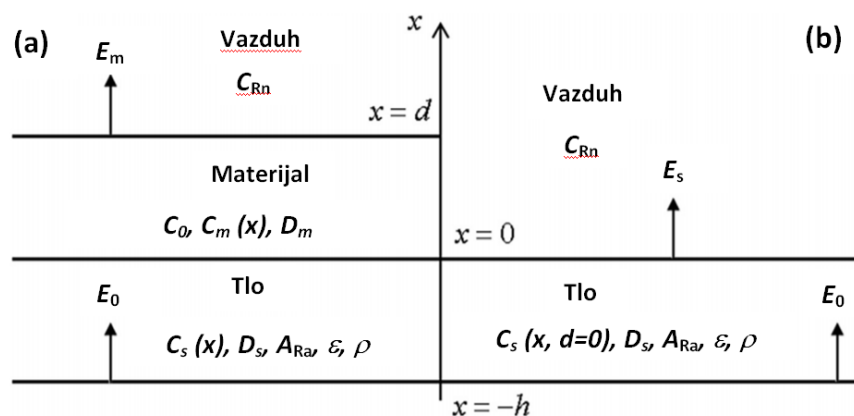
Pri proceni brzine površinske ekshalacije radona (E_S) treba imati na umu da u zavisnosti od vrednosti koeficijenta difuzije radona (D_e) i dimenzija samog građevinskog materijala, nisu svi slobodni atomi radona sposobni da migriraju u pore sa vazduhom. Kada je procenat migriranog radona u okolni vazduh u rasponu od (85 – 90) % može se grubo pretpostaviti da je sav radon nastao u datom građevinskom materijalu migrirao u okolni vazduh. U ovom slučaju uz uslov $L \gg d$, brzina površinske ekshalacije radona (E_S) iz datog građevinskog materijala se može proceniti korišćenjem relacije (3.11) (Anjos et al., 2011; Schroeyers, 2017; Porstendörfer, 1994).

$$E_S = C_m \cdot \lambda \cdot P_{\text{eff}} \cdot \frac{d}{2} = \frac{\varepsilon \cdot A_{\text{Ra}} \cdot \rho \cdot \lambda \cdot d}{2} \quad (3.11)$$

gde je A_{Ra} koncentracija aktivnosti ^{226}Ra izražena u Bq kg^{-1} , λ konstanta radioaktivnog raspada radona, ε koeficijent emanacije radona, ρ gustina, a d debljina datog građevinskog materijala.

Tipične vrednosti brzine površinske ekshalacije se kreću u intervalu $E_S = 3 \cdot 10^{-5} - 2,5 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ (Porstendörfer, 1994). Dakle, relacija (3.11) se zasniva na činjenici da je dužina difuzije radona drastično veća u odnosu na debljinu građevinskog materijala.

Slična se teorija može primeniti i za transport radona iz tla kroz dati materijal ako se transport radona najvećim delom odvoja procesom difuzije. Biće razmotrena 2 jednodimenziona slčaja prikazana na Slici 3.6.



Slika 3.6 (a) Difuzija radona iz tla kroz građevinski materijal debljine d ; **(b)** difuzija radona iz tla debljine h .

Slika 3.6a razmatra slučaj difuzije radona kroz materijal do okolnog vazduha, uzimajući u obzir da je glavni izvor radona iz podloge odnosno tla ispod. Transport radona kroz materijal se može opisati relacijom (3.12):

$$D_m \cdot \frac{d^2 C_m(x)}{dx^2} - \lambda C_m(x) + \lambda C_0 = 0; \quad 0 \leq x \leq d \quad (3.12)$$

gde ja D_m efektivni koeficijent difuzije materijala, $C_m(x)$ je udeo koncentracije radona koji uspe difundovati kroz materijal i C_0 je koncentracija radona stvorena iz samog građevinskog materijala

koja zavisi od koncentracije ^{226}Ra u materijalu, gustine materijala i koeficijenta emanacije materijala, kao i poroznosti materijala, prema relaciji (3.8).

Na Slici 3.6b prikazana je samo difuzija radona iz tla. Difuzija radona iz tla se može predstaviti relacijom (3.13) (Tsapalov and Kovler, 2016):

$$D_s \cdot \frac{d^2 C_s(x)}{dx^2} - \lambda C_s(x) + \lambda C_{s0} = 0; \quad -h \leq x \leq 0 \quad (3.13)$$

gde je D_s koeficijent difuzije radona kroz tlo, C_s je koncentracija radona koji uspe difundovati kroz tlo, C_{s0} je koncentracija radona koja se konstantno stvara u porama tla, koja takođe zavisi od koncentracije ^{226}Ra u tlu, gustine tla, koeficijenta emanacije, kao i poroznosti, prema relaciji (3.8). Uz granične uslove:

$$C_m(x = d) = C_{Rn}; \quad C_m(x = 0) = C_s(x = 0) \quad (3.14)$$

i prema Fikovom zakonu važi:

$$D_m \frac{dC_m(x)}{dx} \Big|_{x=0} = D_s \frac{dC_s(x)}{dx} \Big|_{x=0} \quad (3.15)$$

Brzina ekshalacije radona iz tla na dubini h se može prikazati relacijom difuzije (3.16):

$$E_0 = -D_s \frac{dC_s(x)}{dx} \Big|_{x=-h} \quad (3.16)$$

A brzina ekshalacije radona (E_s) ispod površine materijala debljine (d), u graničnoj ravni $x=0$:

$$E_s = -D_s \frac{dC_s(x, d = 0)}{dx} \Big|_{x=0} \quad (3.17)$$

Brzina ekshalacije radona na gornjoj površini građevinskog materijala debljine d uključujući difundovanu koncentraciju radona iz tla ($C_m(x)$) i koncentraciju radona stvorenu u samom građevinskom materijalu (C_0), se može prikazati relacijom (3.18):

$$E_m = -D_m \frac{d(C_m(x) + C_0)}{dx} \Big|_{x=d} \quad (3.18)$$

Dakle, ukupna ekshalacija radona (E_m) se može analizirati kao transport ukupne koncentracije radona ($C_m + C_0$) nastalih usled difuzije kroz materijal, kao i difuzije iz samog analiziranog građevinskog materijala.

Treba napomenuti da je pređašnje razmatranje izvršeno za ekshalaciju radona u slučaju da je i sam materijal dodatan izvor radona, zatim da je difuzija dominantan proces transporta radona koja se isključivo odvija duž x ose normalne na ravan tla i materijala. Razmatranje takođe obuhvata i pretpostavku da je tlo homogena sredina, kao i to da materijal u potpunosti naleže na tlo, bez vazdušnog prostora u kom bi se radon nagomilavao, što isključuje postojanje bili kakvih šupljina i pukotina (Tsapalov and Kovler, 2016).

Unutrašnja koncentracija aktivnosti radona (C_{Rn}) u zatvorenom prostoru u jedinici vremena (t) može se predstaviti kao funkcija brzine protoka vazduha (relacija (3.19)) uz pretpostavku da su građevinski materijali izvori radona zajedno sa tlom ispod podloge u zatvorenom prostoru (Anjos et al., 2011; Al-Azmi et al., 2018; Pacheco-Torgal et al., 2012):

$$\frac{dC_{Rn}}{dt} = E_S \frac{S}{V} + C_0 \lambda_V - C_{Rn}(\lambda + \lambda_V) + C_S \lambda_V \quad (3.19)$$

gde je E_S brzina površinske ekshalacije radona za dati građevinski materijal data u ($\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$), C_0 spoljašnja koncentracija radona (Bq m^{-3}) C_S je koncentracija radona iz tla ispod podloge u prizemnoj prostoriji, λ_V brzina provetrevanja u prostoriji izražena u h^{-1} i za normalnu provetrenost obično se uzima vrednost $\lambda_V=0,5 \text{ h}^{-1}$ dok se za lošu provetrenost uzima vrednost od $\lambda_V=0,1 \text{ h}^{-1}$ i λ is konstanta radioaktivnog raspada radona (Aykamis et al., 2013). Prvi član u relaciji (3.19) ukazuje na doprinos radona od ekshalacije iz građevinskog materijala, drugi član daje doprinos od spoljašnje koncentracije radona, treći član daje doprinos od konstantnog generisanja radona u prostoriji koji se raspada tokom vremena i četvrti član daje doprinos radona iz tla. Uz pretpostavku radioaktivne ravnoteže, ravnotežna (maksimalna) koncentracija radona u prostoriji se može dobiti izjednačavanjem leve strane relacije (3.19) sa nulom:

$$\left. \frac{dC_{Rn}}{dt} \right|_{t \rightarrow 40 \text{ dana}} = 0 \quad (3.20)$$

Te se koncentracija radona u prostoriji može proceniti korišćenjem relacije (3.21) (Anjos et al., 2011; Janik et al., 2015; Pacheco-Torgal et al., 2012):

$$C_{Rn} = \frac{E_S S}{V(\lambda + \lambda_V)} + \frac{(C_0 + C_S) \cdot \lambda_V}{(\lambda + \lambda_V)} \quad (3.21)$$

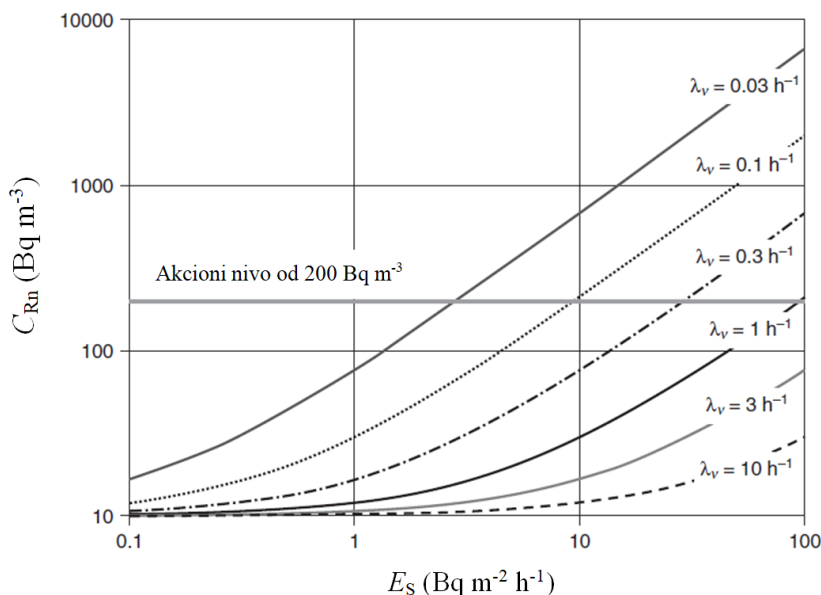
gde je S površina prostorije prekrivena datim građevinskim materijalom; V je zapremina vazduha u prostoriji; E_S je brzina površinske ekshalacije radona iz građevinskog materijala izražena u $\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$; λ je konstanta radioaktivnog raspada radona koja iznosi $7,6 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}$; C_0 je spoljašnja koncentracija radona data u Bq m^{-3} (tipična vrednost iznosi 10 Bq m^{-3}), a C_S koncentracija radona u prostoriji poreklom iz tla, koja je obično u mnogome veća u odnosu na vrednost spoljašnje koncentracije radona C_0 , i λ_V je brzina provetrevanja prostorije (Anjos et al., 2011; Pacheco-Torgal et al., 2012). Prvi deo relacije (3.21) ukazuje na doprinos ekshalacije radona iz građevinskog materijala u prostoriji dok drugi deo daje doprinos spojašnje koncentracije i koncentracije radona iz tla ispod podloge.

Često se spoljašnja koncentracija aktivnosti radona u relaciji (3.21) zanemaruje u procenama radona od građevinskog materijala zbog relativno malog doprinosa (Aykamis et al., 2013; Abdullahi et al., 2019) jer je raspon njegovog doprinosa $1 - 5 \text{ Bq m}^{-3}$ za normalnu i lošu provetrenost prostorije, respektivno. Na Slici 3.7 prikazana je zavisnost unutrašnje koncentracije aktivnosti radona (C_{Rn}) od brzine provetrevanja prostorije, gde se jasno uočava da provetrenost prostorije igra veoma bitnu ulogu u proceni koncentracije aktivnosti radona, te za velike provetrenosti $> 1 \text{ h}^{-1}$ radon praktično nema naročito radijacionog uticaja na ljude, jer je daleko ispod preporučenih vrednosti od strane Svetske zdravstvene organizacije (WHO, 2009).

Ukoliko se analizira isključivo doprinos ukupnoj koncentraciji radona iz građevinskih materijala korišćenih za zidove i podove u prostoriji, relacija (3.21) ima oblik:

$$C_{Rn} = \frac{E_S S}{V(\lambda + \lambda_V)} \quad (3.22)$$

gde se doprinos spoljašnje koncentracije radona, kao i radona iz tla ne uzima u razmatranje.



Slika 3.7 Zavisnost koncentracije aktivnosti radona (C_{Rn}) od brzine površinske ekshalacije radona i brzine provetravanja prostorije (λ_V) (Pacheco-Torgal et al., 2012).

Ukoliko je unutrašnja koncentracija aktivnosti radona iznad propisanog akcionog nivoa (eng. *action level*) posebno je preduzeti mere u cilju njegovog smanjenja kako bi se minimizirao uticaj za zdravlje ljudi (Ravikumar and Somashekar, 2013). Američka agencija za zaštitu životne sredine (EPA) iz ovog razloga navodi primer da ukoliko je osoba izložena koncentraciji radona od oko 148 Bq m^{-3} (4 pCi l^{-1}), verovatnoća nastanka karcinoma pluća je 20-62 osoba ukoliko su osobe pušači ili 2-7 ukoliko osobe nisu pušači na 1000, što nije zanemarljiv broj. Izloženost koncentraciji radona od 740 Bq m^{-3} (20 pCi l^{-1}) dovodi se u vezu kao pušenje jednog pakovanja cigareta dnevno, gde je rizik od nastanka kancera uočen kod 260 osoba na 1000 (USEPA, 2016). Iz ovoga razloga EPA je postavlja donju granicu od 148 Bq m^{-3} kao referentnu i kao prihvatljive označila sve one koncentracije radona ispod ove vrednosti (USEPA, 2016).

Evropska Komisija 1999. godine postavlja akcioni nivo ograničenja na 200 Bq m^{-3} za novu gradnju i 400 Bq m^{-3} za staru gradnju (EC, 1999). Svetska zdravstvena organizacija 2009. uvodi prihvatljive (preporučene) granice izloženosti ljudi radonu u rasponu od $(100 - 300) \text{ Bq m}^{-3}$ (WHO, 2009), što je prihvatila i Evropska Unija u svojoj direktivi iz 2014.godine (EU, 2014). Prema Pravilniku Republike Srbije preporučene vrednosti koncentracije aktivnosti radona u zatvorenom prostoru su u rasponu od 200 Bq m^{-3} za novoizgrađene objekte do 400 Bq m^{-3} za postojeće stambene objekte (Sl. Glasnik RS 86/2011 i 50/2018, 2018).

Tipične koncentracije aktivnosti radona u zatvorenom prostoru koje potiču od građevinskih materijala su u opsegu $(10 - 20) \text{ Bq m}^{-3}$, što je samo 5-10% od projektovane vrednosti od 200 Bq m^{-3} koje je Evropska Komisija dala kao preporuku za novu gradnju (EC, 1999).

Kako se navodi u izveštaju UNSCEAR, 2006 nivoi koncentracija aktivnosti radona u zatvorenom prostoru se dosta razlikuju kako u zemljama tako i među zemljama, pri čemu srednje

geometrijske koncentracije radona u zatvorenom vazduhu kreću se od manje od 10 Bq m^{-3} na Bliskom Istoku do više od 100 Bq m^{-3} u nekoliko evropskih zemalja (UNSCEAR, 2006).

Sprečavanje prodora radona iz tla u stambeni prostor tokom izgradnje podzemnog dela zgrade postiže se upotrebom izolacionih materijala za zgradu. Da temeljna ploča ne pruža dovoljnu radonsku zaštitu zgrade, ili da takva ploča nema sposobnost sprečavanja prenošenja radona kroz materijal određuje se njenom debljinom i koeficijentom difuzije radona. Opšteprihvaćeno je da materijal sa radonskom zaštitom obezbeđuje pouzdanu zaštitu zgrade od radona iz tla, ako je ispunjen uslov (Tsapalov and Kovler, 2016):

$$d \geq 3 \cdot L \quad (3.23)$$

gde je d debljina materijala (m), a L je dužina difuzionog puta radonskog gasa.

Istraživanja su pokazala da građevinski materijal ne predstavlja glavni izvor ^{222}Rn u prostoriji, ali može doprineti povećanju ukupne doze zračenja koju pojedinac primi tokom godine (Gijbels et al., 2018). U novijim istraživanjima rađenim o uticaju korišćenja npr. fosfogipsa kao građevinskog materijala za proizvodnju gips ploča, došlo se do rezultata da korišćenje fosfogipsa kao NORM-a sa koncentracijom aktivnosti ^{226}Ra od oko 400 Bq kg^{-1} , koncentraciju aktivnosti radona od oko 100 Bq m^{-3} (Maduar et al., 2011), što može predstavljati zdravstveni rizik za stanovništvo, ako se uzme u obzir da je glavni izvor radona u tlu ispod podloge (Porstendörfer, 1994).

3.2.1 Akumulacija radona u mernoj komori

Primenom relacije postavljene za ekshalaciju radona iz građevinskih materijala u prostoriji, (relacija (3.19)) slična teorijska osnova se može primeniti i prilikom merenja akumulacije radona tokom vremena u mernoj komori određene zapremine, posmatranjem merne komore kao “male prostorije” za ekshalaciju radona. Za komoru određene zapremine u kojoj se vrši emanacija (ekshalacija), proces akumulacije radona u vremenu se može predstaviti relacijom (3.24) (Abo-Elmagd, 2014; Lopez-Coto et al., 2009; Ye et al., 2018):

$$\frac{dC_{\text{Rn}}}{dt} = E_S \frac{S}{V_{\text{eff}}} + C_0 \lambda_l - C_{\text{Rn}} \lambda_{\text{eff}} \quad (3.24)$$

gde je V_{eff} efektivna zapremina merne komore u kojoj se vrši akumulacija radona (ukupna zapremina komore (merna komora+plastične cevi+aktivna zapremina detektora) umanjena za zapreminu samog uzorka u komori izražena u m^3), C_0 je početna koncentracija radona u mernoj komori, a λ_{eff} je efektivna konstanta raspada radona i može se predstaviti relacijom (3.25) (Janik et al., 2015; Ujić et al., 2008; Tuccimei et al., 2006):

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda + \lambda_b + \lambda_l \quad (3.25)$$

gde je λ konstanta radioaktivnog raspada radona. λ_b je koeficijent povratne difuzije i λ_l je konstanta curenja merne komore (mernog sistema) izražene u h^{-1} . Neki od autora ne uzimaju u obzir poslednja dva koeficijenta (λ_b i λ_l) (Kardos et al., 2015; Sola et al., 2014; Turhan et al., 2018) što

može imati uticaj na lošu procenu brzine površinske/masene ekshalacije i koncentracije aktivnosti radona. Ovo predstavlja još jednu u nizu od neusklađenosti postojeće literature.

U radu autora (Tuccimei et al., 2006) se navodi da uticaj efekta curenja kao i povratne difuzije mogu dovesti do uspostavljanja rane radioaktivne ravnoteže između ^{222}Rn i ^{226}Ra za oko 20 dana, isti efekat je uočen i u istraživanju autora (Chao et al., 1997).

U istraživanjima autora (Samuelsson, 1990) se ukazuje na to da se efekat povratne difuzije radona može minimizirati, odnosno zanemariti u samoj postavci eksperimenta gde je potrebno da je analiziranog građevinskog materijala oko 10 puta manja od efektivne zapremine merene komore, što će biti uzeto u obzir prilikom tumačenja dobijenih rezultata za analizirane građevinske materijale u ovoj studiji i tome pridodat poseban značaj. Iz ovoga sledi da se korišćenjem većih mernih komora ovaj efekat može zanemariti.

Oduzimaje zapremine samog uzorka unutar komore u kojoj se vrši akumulacija radona prilikom procene efektive zapremine mernog sistema mnogi autori ne uzimaju u obzir ili barem ne naglašavaju u svojim istraživanjima (Awhida et al., 2016; Bikit et al., 2011; Kardos et al., 2015; Lopez-Coto et al., 2009; Narloch et al., 2019; Sola et al., 2014; Turhan et al., 2018), dok drugi autori ovome striktno pridaju značaj (Gijbels et al., 2020; Hassan et al., 2013; Janik et al., 2015), što pravi neusklađenost u literaturi, i može uticati na dobijene rezultate naročito ako je zapremina uzorka približna samoj zapremini merne komore. Za akumulaciju radona autori koriste različite zapremine mernih komora od onih malih zapremina, (0,6 – 5) l (Bikit et al., 2011; Gijbels et al., 2020; Lopez-Coto et al., 2014; Narloch et al., 2019), preko srednjih zapremina od 30 l (Awhida et al., 2016), 50 l (Hassan et al., 2013), do velikih zapremina od 70 l (De With et al., 2017) pa čaki i 101, 150 i 220 l (Al-Azmi et al., 2018; Janik et al., 2015; Lopez-Coto et al., 2009). Ovo istraživanje će dati odgovor na ispravnost korišćenja manjih mernih komora u poređenju sa većim za akumulaciju i merenje ekshalacije radonskog gasa.

Nakon uspostavljenе radioaktivne ravnoteže ($t=40$ dana), ravnotežna koncentracija radona u mernoj komori se može dobiti iz relacije 3.24 uz uslov $\frac{dC_{Rn}}{dt} \Big|_{t \rightarrow 40 \text{ dana}} = 0$ koja ima oblik:

$$C_{eq} = \frac{SE_S}{\lambda_{eff}V_{eff}} + \frac{C_0\lambda_1}{\lambda_{eff}} \quad (3.26)$$

S obzirom da se nakon uspostavljenе radioaktivne ravnoteže u mernoj komori tokom vremena nalazi ravnотena koncentracija radoan (C_{eq}) umanjena za raspad tokom vremena, te se primenom zakona radioaktivnog raspada uz uslov ($C_{Rn}(t=0)=C_0$), ukupna promena koncentracije aktivnosti radona u mernoj komori tokom vremena $C_{Rn}(t)$ može iskazati pomoću relacije (3.27) (De With et al., 2017; Tan and Xiao, 2013):

$$C_{Rn}(t) = C_0e^{-\lambda_{eff}t} + C_{eq} - C_{eq}e^{-\lambda_{eff}t} \quad (3.27)$$

odnosno:

$$C_{Rn}(t) = C_0e^{-\lambda_{eff}t} + C_{eq}(1 - e^{-\lambda_{eff}t}) \quad (3.28)$$

Može se videti da promeni ukupne koncentracije radona tokom vremena doprinose dva člana u poslednjoj relaciji. Prvi član ($C_0e^{-\lambda_{eff}t}$) se odnosi na raspad početne (laboratorijske) koncentracije radona u mernoj komori, dok se drugi član ($C_{eq}(1 - e^{-\lambda_{eff}t})$) odnosi direktno na uspostavljenу ravnotežnu koncentraciju radona i njen raspad tokom vremena t . Za slučaj da je laboratorijska

koncentracija radona dovoljno niska da se može zanemariti, uz uslov $C_{Rn}(t=0)=C_0=0$, relacija (3.28) ima oblik (Awhida et al., 2016; Janik et al., 2018; Lopez-Coto et al., 2009):

$$C_{Rn}(t) = C_{eq}(1 - e^{-\lambda_{eff}t}) \quad (3.29)$$

gde je C_{eq} ravnotežna koncentracija aktivnosti radona, a λ_{eff} je efektivna konstanta raspada radona. Prema relaciji (3.27) akumulacija radona u komori raste eksponencijalno sa vremenom i teži nekoj ravnotežnoj vrednosti. Nakon uspostavljanja ravnoteže, koncentracija aktivnosti radona stvorena u porama materijala, data relacijom (3.26) jednaka je onoj izmerenoj u komori (Tuccimei et al., 2006), te se uz zanemarivanje početne koncentracije radona (C_0) ravnotežna koncentracija radona može predstaviti relacijama (3.30 i 3.31):

$$C_{eq} = \frac{SE_S}{\lambda_{eff}V_{eff}} \quad (3.30)$$

ili

$$C_{eq} = \frac{mE_m}{\lambda_{eff}V_{eff}} \quad (3.31)$$

$$E_m = A_{Ra} \cdot \lambda_{eff} \cdot \varepsilon \quad (3.32)$$

gde je E_S brzina površinske ekshalacije radona data relacijom (3.5), S je površina uzorka sa koje se vrši akumulacija radona u mernoj komori (m^2), m je masa uzorka izražena u kg, E_m je masena brzina ekshalacije radona izražena u $Bq \text{ kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$ i data relacijom (3.32) (gde je ε koeficijent emanacije radona, a A_{Ra} koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u građevinskom materijalu), (Aykamis et al., 2013; Chowdhury et al., 1998),

Eksperimentalnim snimanjem zavisnosti koncentracije aktivnosti radona ($y(t)$) u zavisnosti od vremena (t) prema relaciji (3.33) i fitovanje u odgovarajućem softverskom paketu u obliku (Seo et al., 2018; Tuuccimei et al., 2006; Ye et al., 2018):

$$y(t) = a(1 - e^{-bt}) \quad (3.33)$$

gde je a ravnotežna koncentracija aktivnosti radona (C_{eq}), a b je efektivna konstanta raspada radona (λ_{eff}). Iz ovoga sledi da se brzina površinske ekshalacije radona (E_S) može odrediti na osnovu relacije (3.34) kao:

$$E_S = \frac{a\lambda_{eff}V_{eff}}{S} \quad (3.34)$$

Pošto je pozadinska koncentracija radona u komori obično oko nule, na početku merenja inicijalni nagib krive (eng. *initial slope*) ne zavisi od efekta povratne difuzije. Pod pretpostavkom da je curenje u komori u početnim trenucima merenja zanemarljivo povećanje koncentracije radona se može aproksimirati lineranom funkcijom³ (ISO, 11665-7, 2012) uz uslov da je proizvod $\lambda_{eff}t \ll 1$ u relaciji (3.29) (Al-Azimi et al., 2018). Za praćenje površinske ekshalacije radona iz građevinskog materijala u nekom kraćem vremenskom intervalu (na početku merenja) u

³Za slučaj da početna koncentracija radona nije nula, odsečak na y-osi linerane funkcije predstavlja upravo tu početnu koncentraciju radona.

standardnim radonskim komorama njegova akumulacija tokom vremena se može aproksimirati linearnom funkcijom oblika (Al-Azimi et al., 2018; ISO, 11665-7, 2012; Kumar and Chauhan et al., 2014; Seo et al., 2018):

$$C(t) = \frac{E_S \cdot S}{V_{\text{eff}}} \cdot t \quad (3.35)$$

te se fitovanjem funkcije oblika:

$$y(t) = k \cdot t \quad (3.36)$$

iz koeficijenta pravca k može odrediti brzina površinske ekshalacije radona (E_S) kao:

$$E_S = \frac{k \cdot V_{\text{eff}}}{S} \quad (3.37)$$

gde je S (m^2) površina uzorka sa kog se vrši ekshalacije radona, a V_{eff} efektivna zapremina mernog sistema.

3.2.2 Koeficijent emanacije radona

Opšte je prihvaćeno da radon izlazi iz zrna kao rezultat uzmarka kada se njegov predak radijum raspada. Pošto je opseg uzmarka jezgra u čvrstim supstancama mali, obično manji od $0,05 \mu\text{m}$, većina uzmarknutih atoma ostaje unutar rešetke mineralnog zrna. Dalje kretanje atoma iz rešetke ne doprinosi značajno oslobađanju radona zbog vrlo malog koeficijenta difuzije kroz minerale, (10^{-25} – 10^{-27}) $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$. Ako se uzmak jezgra završi u otvorenim porama, radon je u stanju da migrira, Slika 3.5 (IAEA 474, 2013).

Udeo radona formiranog u zrnima materijala koji biva otpušten u pore naziva se emanaciona moć ili koeficijent emanacije (ε).

Koeficijent emanacije radona uključuje dve komponente:

- 1) uzmark i
- 2) difuziju.

Zbog male vrednosti difuzionog koeficijenta gasova u zrnima, pretpostavlja se da najveći doprinos emanacionom koeficijentu potiče od uzmarka jezgra. Nakon alfa raspada radijumovih izotopa, radon poseduje kinetičku energiju od 86 keV . U zrnastim materijalima oni prelaze dužine od $0,04$ – $0,06 \mu\text{m}$, dok je u vazduhu ta vrednost $60 \mu\text{m}$ (Porstendörfer, 1994).

Koeficijent emanacije radona se može proceniti dvema metodama: kombinacijom merenja radijuma i radona i gama spektrometrijom u različitim uslovima (IAEA 474, 2013). Koeficijent emanacije radona (ε) može se eksperimentalno odrediti (uvrštavanjem relacije (3.32 u 3.31)), za pojedinačni građevinski materijal korišćenjem relacije (3.38) (Del Claro et al., 2017; Hassan et al., 2013):

$$\varepsilon(\%) = \frac{C_{eq} V_{\text{eff}}}{A_{Ra} M} \cdot 100 \quad (3.38)$$

gde je C_{eq} ravnotežna koncentracija radona u $Bq\ m^{-3}$ nakon vremena od $t \approx 40$ dana, pošto je uspostavljena sekularna radioaktivna ravnoteža između ^{222}Rn i ^{226}Ra ; V je zapremina komore u kojoj se meri ekshalacija odnosno emanacija radona; A_{Ra} je izmerena koncentracija aktivnosti ^{226}Ra metodom gama spektrometrije data u $Bq\ kg^{-1}$ i M je masa uzorka data u kg (Hassan et al., 2013; Bikit et al., 2011). Primenom relacije (3.30) za ravnotežnu koncentraciju radona (C_{eq}) na relaciju (3.38) dobija se:

$$\varepsilon(\%) = \frac{SE_s}{A_{Ra}M\lambda_{eff}} \cdot 100 \quad (3.39)$$

ili primenom relacije (3.31) na relaciju (3.38):

$$\varepsilon(\%) = \frac{E_m}{A_{Ra}\lambda_{eff}} \cdot 100 \quad (3.40)$$

Iz poslednje dve relacije se može zaključiti da koeficijent emanacije direktno zavisi od brzine površinske odnosno masene ekshalacije radona, kao i efektivne konstante raspada radona. Sa povećanjem efektivne konstante raspada, odnosno efekta curenja ili difuzije, dolazi do smanjenja koeficijenta emanacije radona. Dakle, veća vrednost efektivne konstante raspada radona ukazuje na brži efektivni raspad radonskog gasa, što dovodi do smanjenja koeficijenta emanacije radona. Uticaj efektivne konstante raspada radona na vrednosti emanacionog koeficijenta biće diskutovano u ovoj studiji u eksperimentalnom delu, što je jedan od predmeta istraživanja.

Koeficijent emanacije (ε) obično se kreće u rasponu od 1% do 30% i zavisi od vrste građevinskog materijala koji se ispituje, njegove poroznosti, gustine, veličine zrna kao i od spoljašnjih uslova: temperature, atmosferskog pritiska, procenta vlage u vazduhu i drugih fizičkih faktora (Bikit et al., 2011; Gijbels et al., 2018). Uticaj temperature je mali, ali postoje rezultati koji ukazuju na uticaj vlage. Moguće objašnjenje uticaja vlage je da je zaustavni put radona veći u vazduhu nego u vodi (Porstendörfer, 1994).

3.2.3 Koeficijent difuzije radona

Smatra se da je svaki građevinski materijal homogena i porozna sredina, te se transport radona kroz ovakav materijal odvija kroz sistem vezanih pora ispunjenih vazduhom. Polazeći od Fikovog zakona iskazanog relacijom (3.1) uvedena je veličina difuzionog koeficijenta, koja karakteriše svaki građevinski materijal, te je njeno poznavanje veoma značajno.

Kao što je ranije naglašeno transport radonskog gasa putem difuzije značajno doprinosi unošenju radona u zatvoreni prostor. Difuzija radona u stambenim prostorijama je proces koji se određuje gradijentom koncentracije aktivnosti radona kroz dati građevinski materijal između izvora radona i okolnog vazduha. Difuzija je proces koji dovodi do izjednačavanja koncentracije u posmatranom sistemu, što znači da u ovom slučaju postoji kretanje čestica (gas) iz oblasti veće u oblast manje koncentracije. Difuzija radona i transport kroz različite sredine je složen proces i na njega utiče nekoliko faktora. Parametri kao što su: poroznost, propustljivost i koeficijent difuzije za bilo koji materijal mogu da ometaju protok radonskog gasa. Povećanje poroznosti obezbediće više vazdušnog prostora unutar materijala za radon koji putuje, smanjujući na taj način otpornost na transport radonskog gasa. Propustljivost materijala opisuje sposobnost da deluje kao barijera za

kretanje gasa kada postoji gradijent pritiska preko njega i usko je povezan sa poroznošću materijala. Koeficijent difuzije radona u materijalu kvantifikuje sposobnost radonskog gasa da se kreće kroz njega kada je gradijent koncentracije pokretačka snaga. Ovaj parametar je proporcionalan poroznosti i propustljivosti datog građevinskog materijala (Narula et al., 2009).

Pod pretpostavkom da se radon transportuje isključivo duž aksijalnog pravca x i da su pore homogeno distribuirane u materijalu, difuzija radona za dati građevinski materijal tokom vremena se može izraziti pomoću relacije (3.41) (Kumar and Chauhan, 2014; Li et al., 2018):

$$\frac{dC(x, t)}{dt} = D_e \frac{d^2C(x, t)}{dx^2} - \lambda C(x, t) \quad (3.41)$$

gde je D_e efektivni koeficijent difuzije radona izražen u $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$. U stacionarnom stanju prethodna relacija ima oblik:

$$D_e \frac{d^2C}{dx^2} - \lambda C = 0 \quad (3.42)$$

Za dati građevinski materijal debljine d mogu se primeniti sledeći granični uslovi:

$$x = 0; \quad C(0) = C_0 \quad (3.43)$$

$$x = \infty; \quad C = 0 \quad (3.44)$$

Primenom navedenih graničnih uslova, relacija (3.42) ima rešenje:

$$C = C_0 \cdot e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}x} \quad (3.45)$$

gde je C koncentracija radona u bilo kom trenutku na vertikalnom rastojanju x udaljenom od izvora (Bq m^{-3}); C_0 je koncentracija radona na površini datog građevinskog materijala (Bq m^{-3}).

Ako su C_1 i C_2 koncentracije radona na udaljenosti x_1 i x_2 od izvora radona, respektivno, onda se može napisati relacija:

$$\frac{C_1}{C_2} = e^{\sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}(x_2 - x_1)} \quad (3.46)$$

Odakle se efektivna vrednost difuzionog koeficijenta (D_e) može izraziti kao:

$$D_e = \frac{\lambda \cdot (x_2 - x_1)^2}{\left(\ln\left(\frac{C_1}{C_2}\right)\right)^2} \quad (3.47)$$

Ako su uzme uslov $x_1=0$ u obzir i $x_2=d$ (d je debljina analiziranog građevinskog materijala), relacija (3.47) dobija oblik:

$$D_e = \frac{\lambda \cdot d^2}{\left(\ln\left(\frac{C_0}{C_2}\right)\right)^2} \quad (3.48)$$

gde je C_0 koncentracija aktivnosti radona na površini uzorka, dok je C_2 koncentracija aktivnosti radona na raszojanju d .

Uzimajući Fikov zakon u obzir, relacija 3.1, kao i konstantnost zapremine u kojoj se izvodi eksperiment difuzije može se zaključiti da u takvom sistemu postoji stacionarno stanje jer se može pretpostaviti postojanje konstantnog gradijenta koncentracije radona po x osi, te se može napisati:

$$\frac{dC}{dx} = \frac{C_2 - C_1}{d} \quad (3.49)$$

gde su C_1 i C_2 ravnotežne koncentracije radona sa jedne i druge strane materijala. Uvrštavanjem relacije (3.49) u izraz za Fikov zakon dobija se:

$$E_S = -D_e \frac{C_2 - C_1}{d} \quad (3.50)$$

Snimanjem kriva akumulacije radona sa obe strane ispitivanog materijala prema relaciji (3.50) i određivanjem ravnotežne koncentracije radona (C_2 i C_1) može se odrediti efektivni difuzioni koeficijent D_e iz relacije:

$$D_e = \frac{d \cdot E_S}{(C_1 - C_2)} \quad (3.51)$$

Ili praćenjem koncentracije difundovanog radona kroz analizirani materijal u nekom kratkom vremenu ($t \ll 40$ dana) i uvrštavanjem izraza za brzinu površinske ekshalacije radona E_S iz relacije (3.35) može se dobiti relacija za određivanje efektivnog difuzionog koeficijenta građevinskog materijala:

$$D_e = \frac{C_{Rn} \cdot V \cdot d}{t \cdot S \cdot (C_1 - C_{Rn})} \quad (3.52)$$

gde je C_{Rn} izmerena koncentracija radona u vremenu t koja je difundovala kroz materijal debljine d , V je zapremina merne komore, a S je površina uzorka kroz koji se vrši difuzija radonskog gasa. Ono što unapred mora biti poznato to je koncentracija radonskog gasa (C_1), sa strane ispitivanog građevinskog materijala iz čijeg smera se vrši difuzija, koja se može unapred odrediti mereći samo koncentraciju radona koju radonski izvor emituje u datoj zapemini merne komore. Snimanjem zavisnosti $C = C(t)$ prema relaciji (3.35) brzina površinske ekshalacije radona E_S u relaciji (3.37) se može odrediti i iz koeficijenta pravca k , te se vrednost koeficijenta difuzije D_e može odrediti na osnovu relacije (3.53):

$$D_e = \frac{k \cdot V \cdot d}{t \cdot S \cdot (C_1 - C_{Rn})} \quad (3.53)$$

Eksperimentalnim istraživanjima došlo se do uspostavljanja veze između gustine materijala (ρ) i difuzionog koeficijenta koja ima oblik (Rogers et al., 1994):

$$D_e = 0,084e^{-0,0064 \times \rho} \quad (3.54)$$

Efektivni koeficijent difuzije je takođe osetljiva funkcija vlažnosti. Autori *Rogers* i *Nielson* razvili su tu zavisnost u obliku (Rogers and Nielson, 1991, 1991a):

$$D_e = D_0 P_{\text{eff}} e^{-6s P_{\text{eff}} - 6s^{14} P_{\text{eff}}} \quad (3.55)$$

gde je D_0 koeficijent difuzije radona u vazduhu čija je vrednost $1,2 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$, s je sadržaj vlage u uzorku (zasićenost vlagom) koja se može odrediti pomoću relacije (3.56) i P_{eff} je efektivna poroznost koja se može odrediti iz relacije (3.57):

$$s = \frac{m}{P_{\text{eff}} \cdot V \cdot \rho_w} \quad (3.56)$$

$$P_{\text{eff}} = 1 - \frac{\rho_b}{\rho_g} \quad (3.57)$$

gde je m sadržaj vode u ispitivanom uzorku u kg, V je zapremina uzorka, ρ_w je gustina vode (1000 kg m^{-3}), ρ_b i ρ_g su gustine balk materijala i zrna tog materijala izražene u kg m^{-3} . Gustina balk materijala se može izračunati prema poznatoj masi i zapremini suvog uzorka, dok se gustina zrna može odrediti korišćenjem piknometra (Lopez-Coto et al., 2014).

Dostupno je nekoliko metoda za merenje koeficijenta difuzije radona u poroznim materijalima kao što su građevinski materijali. Metode se obično zasnivaju na pasivnim merenjima korišćenjem LR-115 detektora tragova (Kumar and Chauhan, 2013; Narula et al., 2009) ili aktivnom metodom korišćenjem alfa spektrometra RAD7 (Li et al., 2018). Tipične vrednosti difuzionog koeficijenta za građevinske materijale se kreću u rasponu reda veličina od 10^{-8} do 10^{-6} sa vrednostima efektivne poroznosti u rasponu od 0,1-0,5 (Porstendörfer, 1994).

3.3 Metode merenja radona

Metode merenja radona i njegovih potomaka su brojne – one mogu biti alfa spektrometrijske, gama spektrometrijske ili metode tečnog scintilacionog brojanja, u zavisnosti od tipa zračenja i principa detekcije. Merenja koncentracije radona u vazduhu se sprovode pasivnim izlaganjem trag detektora (ili ugljenih kanistera) i aktivnim radon monitorima koji detektuju alfa zračenje. Pored direktnog merenja koncentracije radona, moguće je odrediti i koncentracije potomaka u vazduhu nastalih njegovim raspadom. Najčešće metode za određivanje koncentracije aktivnosti radona se zasnivaju na detekciji alfa čestica (^{222}Rn ili njegovih potomaka ^{218}Po i ^{214}Po). Neke metode se zasnivaju na detekciji gama zračenja koje emituju potomci tokom raspada - ^{214}Bi i ^{214}Pb (post radonske linije), a samo nekoliko metoda koristi beta raspad. Korišćena analitička metoda prvenstveno zavisi od koncentracije ^{222}Rn u medijumu i potrebne preciznosti (Baskaran, 2016).

U svetu se sve veća pažnja posvećuje razvoju novih metoda za merenje doprinosa koncentraciji radona od građevinskih materijala. Iako je sam mehanizam detekcije radona relativno jednostavan (bilo da se detektuju alfa čestice koje nastaju njegovim raspadom ili se detektuju gama linije njegovih potomaka u uslovima sekularne radioaktivne ravnoteže), postoji veliki broj faktora koji utiču na dobijene brojne vrednosti i na tačnost merenja. Pre svega, zbog osobine radona da je gas, pa vrlo lako difunduje iz materijala, tako da vreme koje protekne između uzorkovanja i merenja ne može biti dugo. Takođe, karakteristike materijala kao što su poroznost, gustina i struktura materijala utiču na emanaciju i ekshalaciju radona iz materijala. Spoljašnji uslovi kao što su temperatura, vlažnost vazduha i vazdušni pritisak utiču na procese transporta radona u materijalu, te se i oni moraju uzeti u obzir pri tumačenju rezultata.

Problematika merenja radona i njegovih potomaka obuhvata brojne studije, matematičke modele i veliki broj rezultata merenja u smeru stvaranja sveobuhvatne teorije i metoda merenja, a koje za krajnji cilj imaju pouzdano tumačenje rezultata merenja i procenu radiološkog hazarda koji potiče od radona.

Razvojene su različite aktivne i pasivne metode određivanja koncentracija aktivnosti radona kako u zatvorenom prostoru tako i iz samih građevinskih materijala. Aktivne metode merenja radona iz građevinskih materijala podrazumevaju smeštaj u posebno konstruisane komore i direktno merenje koncentracija aktivnosti radona (ekshalacije radona) nekim od standardnih detektorskih sistema koji su konstruisani za tu namenu: detektor RAD7 (Durrige Company, USA), Sarad GmbH, AlphaGuard i drugi (Ajam et al., 2019; Al-Azmi et al., 2018; Awhida et al., 2016; Čurguz et al., 2013; De With et al., 2017; Gijbels et al., 2020; Li et al., 2018; Narloch et al., 2019; Ye et al., 2018). Razvijene pasivne metode merenja radona obuhvataju adsorpciju radonskog gasa ili ostavljanje tragova usled jonizacije alfa česticama na različitim plastičnim folijama, te su u tu svrhu razvijene metode: adsorpcije na aktivnom uglju (Forkapić et al., 2017; IAEA, 474, 2013; Todorović et al., 2014a; Pantelić et al., 2014), kao i CR-39 i LR-115 pasivni detektori tragova (*SSNTD- Solid State Nuclear Track Detector*) koji su se dobro pokazali za merenje ekshalacije radona kako u vazduhu tako i iz samih građevinskih materijala (Ajam et al., 2019; Kayakoku et al., 2016; Chauhan and Chakarvarti, 2002; Čurguz et al., 2013; Narula et al., 2009; Kumar and Chauhan, 2014; Khan et al., 2018).

Poslednjih godina u Srbiji pokušao je razvoj metode adsorpcije radona na zeolitu ali nisu dobijeni zadovoljavajući rezultati za koncentracije aktivnosti radona ispod 500 Bq m^{-3} kao gore pomenute pasivne metode (npr. adsorpcije na aktivnog uglju) (Bikit et al., 2015).

U istraživanju (Pantelić et al., 2019) se navodi sa se u istraživanjima radona u Evropi u svega 2,3% istraživanja koriste aktivni uređaji, kanisteri sa aktivnim ugljem u oko 7%, elektretski detektori 11,6%, zatim LR-115 18,6% i u najvećem broju istraživanja se koriste CR-39 pasivni detektori 60,5%. Na primer u Španiji se obično koriste metode merenja aktivnim uređajem RAD7, elektretski detektori i pasivni detektori sa aktivnim ugljem (Noverques et al., 2019).

Svaka od navedenih mernih tehnika može se primeniti za merenje ekshalacije radona iz građevinskih materijala. U daljem tekstu biće dat kratak pregled glavnih karakteristika ovih metoda korišćenih u eksperimentalnom delu ove studije sa naznakama na tipove i vrste korišćenih aktivnih uređaja i pasivnih detektora.

3.3.1 Aktivne tehnike merenja radona

3.3.1.1 Alfa spektrometar RAD7

RAD 7 je prenosivi detektor relativno malih dimenzija koji služi za direktno merenje koncentracije radona i torona u vodi, vazduhu i zemljištu. U ovoj studiji je ovaj uređaj korišćen isključivo za merenje radonskog gasa u vazduhu koji biva emitovan od građevinskih materijala.



Slika 3.8 Alfa spektrometar RAD7 proizvođača DurrIDGE Company, USA.

RAD7 uređaj proizvođača, *DurrIDGE Company, USA* je silicijumski detektor koji služi za aktivno merenje radona, na osnovu pretvaranja emitovanog alfa zračenja direktno u električni signal, Slika 3.8. Sadrži polusferu aktivne zapremine 0,75 l koja je sa unutrašnje strane obložena električnim provodnikom. Silicijumski alfa detektor se nalazi u središtu hemisfere, negativno je naelektrisan i uspostavljeno električno polje privlači pozitivno naelektrisane jone potomaka. Detekovani električni signali usled emisije alfa čestica različite energije omogućavaju određivanje koji potomak (^{218}Po , ^{214}Po itd.) je proizveo zračenje, tako da se može odmah razlikovati stari radon od novog radona i radon od torona. Ova tehnika, poznata je kao alfa spektrometrija. RAD7 detektor je takođe pogodan za praćenje vremenskih varijacija koncentracije radona, što pasivne metode ne pružaju.

Ovaj uređaj meri isključivo koncentraciju aktivnosti radona (i/ili torona), pri čemu produkti raspada nemaju uticaja na merenje. Ovo je omogućeno zahvaljujući filteru koji se nalazi na mestu ulaza vazduha u mernu komoru koji sprečava ulazak potomaka, već samo radona sa vazduhom u sistemu.

RAD7 uređaj usisava vazduh pomoću pumpe protoka 0,7 l/min koja radi u automatskom normal modu ili sniff modu kod protokola za merenje koncentracije radona u vodi ili zemljištu.

Merni sistem RAD7 je veoma osetljiv na promenu apsolutne vlažnosti koja u mnogome može uticati na konačne rezultate, tako da je optimalna vlažnost u sistemu tokom merenja ispod 6%. Zbog visoke osetljivosti na vlagu u sistemu, vazduh sa radonom konstantno kruži kroz apsorber vlage (odvlaživač), cev sa kalcijum sulfatom (CaSO_4). Nakon izvršenih merenja rezultati se mogu pregledati i obraditi u softverskom paketu *CAPTURE*, koji automatski vrši korekciju merenja na vlažnost vazduha (Manual RAD7, 2019).

3.3.1.2 Radon monitor AlphaGuard PQ 2000 PRO

AlphaGuard PQ 2000 PRO je središnji deo kompaktnog prenosnog mernog sistema za kontinuirano određivanje koncentracije radona kao i njegovih potomaka u vazduhu, vodi ili zemljištu uz odgovarajuće klimatske parametre, Slika 3.9.

U standardnom režimu rada ovaj uređaj merni radonski gas koji difunduje kroz filter od staklenih vlakana velike površine u jonizacionu komoru tj. kroz filter od staklenih vlakana može prolaziti samo radonski gas, dok su njegovi potomci sprečeni da uđu u jonizacionu komoru. Istovremeno, filter štiti unutrašnjost komore od kontaminacije česticama prašine. Alternativno gore spomenutom modusu difuzije ^{222}Rn se može meriti, pomoću jonizacione komore sa pumpom.



Slika 3.9 Izgled AlphaGuard uređaja korišćenog za merenje koncentracije aktivnosti radona. Saphymo GmbH, Nemačka.

AlphaGuard koristi provereni princip pulsne jonizacije (alfa spektroskopija). Aktivna zapremina jonizacione komore iznosi 0,56 l. Njena metalna unutrašnjost nalazi se na potencijalu od +750 V kada se instrument uključi. Duž uzdužne ose nalazi se elektroda koja leži na potencijalu od 0 V. Središnja elektroda je povezana sa ulazom signala veoma osetljive jedinice za pretpojačavač. Obradeni merni signali sa pretpojačavača se prenosi u elektronsku mrežu za dalju digitalnu obradu.

Ovaj uređaj poseduje veliku efikasnosti detekcije, sa širokim opsegom merenja koncentracija aktivnosti radona od 2 do 200000 Bq m⁻³ i sa brzim odgovorom na promene koncentracije radona, kao i dugotrajni rad bez održavanja. Takođe pri ekstremnoj vlažnosti vazduha ovaj uređaj daje pouzdane merne vrednosti i neosetljiv je na vibracije i potrese (Manual AlphaGuard, 2012).

3.3.1.3 Uređaj AlphaE

AlphaE je prenosivi, ručni uređaj, malih dimenzija koji se koristi za praćenje lične izloženosti radonu i doze radona, kao i za kratkotrajno ili dugoročno praćenje radona u zatvorenom prostoru, Slika 3.10.

Princip rada AlfaE uređaja zasnovan je na difuznoj komori sa silicijumskom diodom. Detektor pruža širok opseg merenja koncentracija aktivnosti radona od 20 Bq m⁻³ do 10 MBq m⁻³ i dovoljno

je osjetljiv i pouzdan u navedenom opsegu. Na osnovu principa difuzije, radonski gas ulazi kroz rupe istaknute na kućištu u unutrašnjost difuzionu komore. Pošto su rupe u potpunosti pokrivene odgovarajućom membranom (koja ima ulogu filtera), samo radonski gas može ući u komoru dok potomke raspada (polonijum, olovo, bizmut), zadržava filter. Merenje se vrši nezavisno od promenljivosti spoljnih parametara poput koncentracije aerosola i vlažnosti vazduha. Ovo je veoma bitno naglasiti, jer ovi faktori imaju veliki uticaj na merenje potomaka radona, ali nemaju uticaja na sam radonski gas.



Slika 3.10 Izgled uređaja AlphaE korišćenog za merenje koncentracije aktivnosti radona, proizvođača Saphymo GmbH, Nemačka.

Alfa zračenje koje se emituje tokom raspada ^{222}Rn beleži silicijumski detektor. Međutim, raspadom radona stvaraju se njegovi potomci u unutrašnjosti komore i odvajaju se po njenim zidovima. Alfa zračenje izazvano radonskim potomcima prilikom raspada proporcionalno je koncentraciji radonskog gasa unutar komore.

Podesivost mernih ciklusa ovog uređaja je od 1h do 12h. Temperaturski opseg rada je u intervalu od $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ do $+50\text{ }^{\circ}\text{C}$. Posедуje senzore za praćenje temperature, vlažnosti vazduha kao i vazdušnog pritiska (Manual AlphaE, 2018).

3.3.1.4 Uređaj RTM1688-2

RTM 1688-2 je prenosivi uređaj za merenje radona/torona, veoma osjetljiv alfa spektrometar sa poluprovodničkim (silicijumskim) detektorom, Slika 3.11. Poseduje mernu komoru veoma male zapremine od 250 ml, kao i pumpu sa protokom vazduha od $0,30\text{ l min}^{-1}$. Poseduje senzore za temperaturu, vlažnost vazduha i barometarski pritisak. Ovaj uređaj za razliku od RAD7 detektorskog sistema nije osjetljiv na promenu vlage, što mu daje visoku stabilnost. Opseg merenja radona je $0\text{-}10\text{ MBq m}^{-3}$. (Manual Sarad, 2019).

Kao i kod RAD7 detektora i kod ovog uređaja se na ulazu u komoru nalazi filter koji sprečava potomcima radona ulaz u aktivnu komoru (Slika 3.11) i omogućava prolaz samo radonu koji je u sistemu pomešan sa vazduhom.

Princip rada RTM 1688-2 radonskog monitora je merenje proizvedenih radonovih potomaka unutar aktivne zapremine merne komore. Nakon raspada preostala jezgra ^{218}Po postaju pozitivno

naelektrisana tokom kratkog vremenskog perioda, jer se pojedini elektroni iz ljuske raspršuju daleko od emitovane alfa čestice. Ti joni se sakupljaju silama električnog polja na površini poluprovodničkog detektora. Broj sakupljenih jona ^{218}Po proporcionalan je koncentraciji radonskog gasa u komori. Detektor registruje samo ^{218}Po sa vremenom poluraspada od oko 3,05 minuta i oko 50% raspadnutih čestica biće registrovani na površini detektora. Ravnoteža između brzine raspada radona i brzine detekcije ^{218}Po je data nakon otprilike 5 perioda poluraspada, što je oko 15 minuta.



Slika 3.11 Izgled uređaja RTM 1688-2 za merenje koncentracije aktivnosti radona, proizvođača Sarad GmbH, Germany.

Prema zakonu radioaktivnog raspada, niz raspada nastavljaју oba beta emitera ^{214}Pb i ^{214}Bi , a zatim drugi alfa emiter, ^{214}Po . Ovo ukazuje da svaki raspad ^{218}Po uzrokuje još jedan detektivan raspad od strane ^{214}Po koji se odlaže oko 3 sata zbog perioda poluraspada tih radionuklida. Energije emitovanih alfa čestica ^{218}Po i ^{214}Po su različite i zato je moguće odvojiti oba radionuklida jedan od drugog pomoću alfa spektroskopije. RTM1688-2 nudi dva načina izračunavanja koncentracije aktivnosti radonskog gasa, jedan (spori) uključuje oba, raspad ^{218}Po i ^{214}Po , a drugi uključuje samo ^{218}Po (brzi režim). Prednost ovog režima je brzi odgovor na promene koncentracije aktivnosti radonskog gasa, dok „spori“ režim daje osetljivost dvostruko veću u odnosu na brzi režim. Veća osetljivost smanjuje statističku grešku merenja koja zavisi samo od broja akumuliranih odbroja tokom raspada (Manual Sarad, 2019).

3.3.2 Pasivna merna tehnika merenja radona kanisterima sa aktivnim ugljem

Kanistri sa aktivnim ugljem koriste se kao skrining metoda za određivanje koncentracije aktivnosti radona u zgradama u skladu sa američkim US EPA protokolom 520/5-87-005 (Grey and Windham, 1987).

Ova metoda merenja se zasniva na adsorpciji radona na aktivnom uglju i merenju gama zračenja radonovih potomaka, ^{214}Pb i ^{214}Bi . Aktivni uglj ima visoku poroznost što ga čini pogodnim za adsorpciju radona iz vazduha (Forkapić et al., 2016). Aktivni uglj ima visok afinitet prema nekoliko gasova od kojih je jedan radonaski gas ^{222}Rn . Aktivni uglj se koristi za proizvodnju pasivnih kanistera za adsorpciju radona na sledeći način: metalni kanister se puni aktivnim ugljem sa niskom aktivnošću. Metalna mrežica, sa 30–50% ukupne površine u rupama,

postavlja se preko aktivnog uglja. Kanister se zatvara metalnim poklopcem, a spojevi se lepe PVC trakom (izolir trakom) za bolje dihtovanje kanistra (Pantelić et al., 2014).

Prilikom eksponiranja kanistera poklopac se uklanja. Vreme eksponiranja kanistra ne sme biti kraće od 24 h niti duže od 144 h (6 dana). Optimalno vreme eksponiranja je oko 48h (Grey and Windham, 1987). Za vreme izlaganja dolazi do adsorpcije radona na aktivnog uglju ali i njegovog raspada. Nakon eksponiranja kanister se zatvara poklopcem i PVC trakom zaptivaju spojevi. Nakon toga se vrši gama spektrometrijsko merenje potomaka radona koji su gama emiteri i to nakon 3h pošto biva uspostavljena sekularna radioaktivna ravnoteža između radona i njegovih produkata raspada. Gama linije koje se koriste za određivanje su na energijama: 295 keV i 352 keV od ^{214}Pb i 609 keV od ^{214}Bi (Pantelić et al., 2014; Todorović et al., 2014a).

Ono što je veoma zanimljivo i bitno kod ove merne tehnike jeste da se svaki put pre eksponiranja kanistri suše na oko 110 °C. Tokom sušenja dolazi do desorpcije vodene pare kao i radona i njegovih potomaka. Svakim sledećim sušenjem nakon eksponiranja kanister je spreman za naredno merenje (Pantelić et al., 2014).

Odziv kanistra sa aktivnim ugljom zavisi od vremena izlaganja kanistra i od količine apsorbovane vlage koja je dobijena tokom izlaganja. Iz tog razloga je kalibracija kanistera dvostepeni postupak dizajniran tako da se prilagodi i povećanju vlage i vremenu eksponiranja. Kalibracioni faktor izračunava se za svaki kanister i koristi se za generisanje povećanja mase aktivnog uglja za dvodnevnu izloženost i za podešavanje vlažnosti (Todorović et al., 2014a).

Koncentracija aktivnosti radona (C_{Rn}), izražena u Bq m^{-3} u eksponiranom kanistru može se odrediti pomoću relacije (3.58) (Forkapić et al., 2016; Grey and Windham, 1987):

$$C_{\text{Rn}} = \frac{I - I_{\text{F}}}{T_{\text{S}} \cdot E \cdot CF \cdot DF} \quad (3.58)$$

gde je $I - I_{\text{F}}$ bruto (c ks^{-1}) odbroj kanistera za sve tri energije potomaka nakon uspostavljene radioaktivne ravnoteže (posle 3h), minus odbroj fona (c ks^{-1}) detektora za taj dan, T_{S} je vreme eksponiranja kanistera u ks, E je efikasnost detektora (c (ks Bq)^{-1}) na kome se meri emitovano gama zračenje od radonovih potomaka, CF je kalibracioni faktor (brzina adsorpcije radona u $\text{m}^3 \text{ks}^{-1}$), a DF faktor raspada dat relacijom (3.59):

$$DF = e^{-\frac{0,693 \cdot t_{\text{S}}}{T_{1/2}}} \quad (3.59)$$

gde je t_{S} vreme proteklo od sredine izlaganja kanistra do početka merenja na gama detektoru, $T_{1/2}$ je period poluraspada radona. Merna nesigurnost ove metode se određuje kao proširena merna nesigurnost ($k=2$) koja potiče od kombinacije doprinosa greške statističkog brojanja događaja, određivanja efikasnosti detekcije standardnim referentnim materijalom (izvor ^{226}Ra poznate aktivnosti u metalnom kanisteru) i neodređenosti kalibracione krive.

Minimalna detektibilna aktivnost radona (MDA) za ovu tehniku merenja radona u zatvorenom prostoru je oko 2 Bq m^{-3} , a merna nesigurnost zavisi od brzine odbroja od post-radonskih gama linija, efikasnosti gama detektora i sadržaja vlage u aktivnom uglju naon eksponiranja (Forkapić et al., 2017).

Metalni kanisteri prečnika 10 cm sa 70 g aktivnog uglja korišćeni su za sakupljanje ^{222}Rn u periodu od 2-3 dana. Tipično vreme između zatvaranja kanistera i početka gama spektrometrijskog bilo je oko 3h. Gama spektrometrijska merenja su izvršena NaI(Tl) scintilacionim gama spektrometrom sa određenom efikasnošću detekcije. Da bi se postigla 5% statistička tačnost pri

100 Bq m⁻³, vreme merenja je obično 1 h. U stvarnim uslovima, sposobnost adsorpcije aktivnog uglja zavisi od vremena izlaganja i mora se korigovati na sadržaj vlage (tj. razlika između mase kanistera nakon eksponiranja i mase pre eksponiranja) (Forkapić et al., 2016).



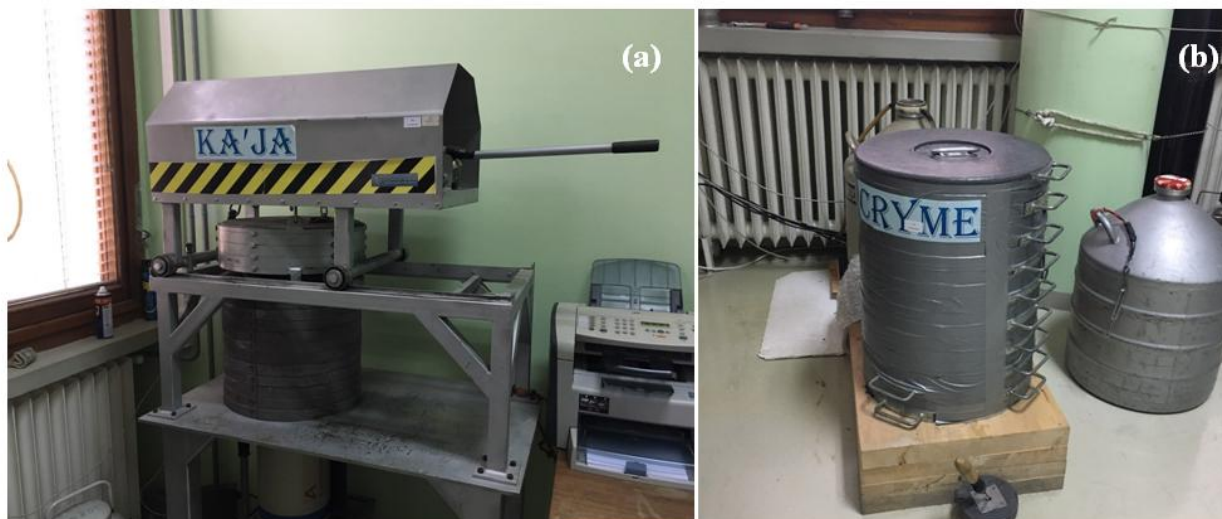
Slika 3.12 Izgled 9'' x 9'' NaI(Tl) gama spektrometra oblika jame u Laboratoriji za ispitivanje radioaktivnosti uzoraka i doze jonizujućeg i nejonizujućeg zračenja na Departmanu za fiziku u Novom Sadu.

Za određivanje gama odbroja od ²¹⁴Pb i ²¹⁴Bi korišćen je 9'' x 9'' NaI(Tl) spektrometar oblika jame, Slika 3.12. Detekcioni sistem je sačinjen od 6 fotomultiplikatora, kao i pasivne zaštite od 15 cm olova i 1 mm bakarnog lima kako bi se eliminisao uticaj rendgenskog zračenja od olova. Spektri se prikupljaju Canberra Genie 2000 softverom na računaru. Detaljan opis i karakteristike korišćenog detektora dati su u radovima (Hansman, 2014; Hansman et al., 2015).

4 Merenje nivoa radioaktivnosti

Radiloška karakterizacija uzoraka građevinskih materijala i procena nivoa izloženosti ljudi gama zračenju u ovoj studiji izvršena je metodom gama spektrometrije merenjem koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K, imajući u vidu da ova tri radionuklida u najvećoj meri doprinose izloženosti gama zračenju (EC, 1999). Koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K su određene na osnovu gama linija datih u Tabeli 4.1 (Todorović et al., 2011, 2017a). Sadržaj navedenih radionuklida u uzorcima građevinskih materijala meren je korišćenjem dva HPGe gama spektrometra proizvođača Canberra (interna oznaka K) i Ortec (interna oznaka L), sa relativnom efikasnošću od 36% i 32% i rezolucijom od 1,9 keV za gama pik od ⁶⁰Co na 1332 keV. Izgledi K i L gama spektrometrijskih sistema u Laboratoriji za ispitivanje radioaktivnosti uzoraka i doze jonizujućeg i nejonizujućeg zračenja na Departmanu za fiziku u Novom Sadu prikazani su na Slici 4.1, a glavne karakteristike ovih detekcionih sistema date su u Tabeli 4.2. Detektori su okruženi zaštitom od olova debljine 12 cm i bakrom debljine 3 mm za detektor K i 1 mm bakra i 2 mm kalaja za detector L mm kako bi se

sprečilo prodiranje K-linija X-zraka od olova u energijskom opsegu (75–85) keV. Detektovani signali povezani su sa višekanalnim analizatorom (MCA) sa dva analogno-digitalna pretvarača sa 8192 kanala preko CANBERRA predpojačavača i pojačavača. MCA je direktno povezan sa računarom gde se mere i čivaju dobijeni spektri (Todorović, et al., 2014). Gama spektri su prikupljeni i analizirani korišćenjem softvera Canberra Genie 2000 za oba detekciona sistema. Integrisana brzina brojanja u energijskom opsegu između 30 keV i 3000 keV bila je oko 2 odbroja po sekundi (Todorović i dr., 2011). Da bi se postigla što bolja statistika odbroja naročito kod uzoraka sa malim vrednostima koncentracija aktivnosti, svi uzorci su mereni oko 20h.



Slika 4.1 Izgledi gama spektrometrijskih sistema u osnovnoj zaštiti korišćenih u ovoj studiji: (a) detektor sa internom oznakom K; (b) detektor sa internom oznakom L u Laboratoriji za ispitivanje radioaktivnosti uzoraka i doze jonizujućeg i nejonizujućeg zračenja na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu

Detektori su kalibrisani pomoću referentnog radioaktivnog materijala ravnomerno distribuiranog u silikonskoj smoli u cilindričnoj geometriji, zapremine $V=250 \text{ cm}^3$ proizvođača Češkog instituta za metrologiju (broj sertifikata 1035-SE-40001-17). Korišćenjem programa ANGLE izvršena je korekcija na efekat samoapsorpcije, koji nastaje usled matrica različitih gustina (Moens et al., 1981). Takva precizna kalibracija je neophodna kako bi se obezbedila mala merna nesigurnost ($< 10\%$) pri određivanju aktivnosti radioizotopa u nisko-energijskom opsegu (ispod 100 keV) gde se nalaze gama linije ^{234}Th (direktni potomak ^{238}U).

Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K određene su na osnovu relacije (4.1) (Medhat, 2009):

$$A = \frac{S}{\epsilon(E) \cdot \Gamma(E) \cdot M} \quad (4.1)$$

gde je A koncentracija aktivnosti datog radionuklida izražena u Bq kg^{-1} , S je ukupna brzina odbroja za dati radionuklid sa oduzetim odbrojem *background*-a, $\epsilon(E)$ je efikasnost detekcije na datoj energiji, $\Gamma(E)$ je kvantni prinos gama fotona na datoj energiji i M je masa suvog uzorka korišćena

za gama spektrometrijsko merenje. Na osnovu izračunatih koncentracija aktivnosti za energije iz Tabele 4.1, koncentracija aktivnosti ciljanog radionuklida dobija se kao otežana srednja vrednost.

Minimalna detektabilna aktivnost (*MDA*) za gama spektrometrijska merenja određena je korišćenjem Kirijeve formule iskazane relacijom (4.2) (Currie, 1968; Turhan, 2010):

$$MDA(\text{Bq kg}^{-1}) = \frac{F_c \times \sigma_B}{\epsilon \times P_\gamma \times t \times M} \quad (4.2)$$

gde je F_c statistički faktor pozdanosti koji iznosi 1,64; σ_B je standardna devijacija *background*-a u regionu od interesa i jednaka je kvadratnom korenu odbroja za pozadinski spektar, ϵ je apsolutna efikasnost detektora, P_γ je prinos gama zraka po raspadu, t je vreme merenja uzorka izraženo u s, a M je masa suvog uzorka u kg. Vrednosti *MDA* za pojedinačne energije korišćene za procenu ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K date su u Tabeli 4.1. Procenjene srednje vrednosti *MDA* za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K su 1,1, 1,0 i 8,2 Bq kg⁻¹, za NG i GB uzorke, i 3,6, 1,3 i 9,3 Bq kg⁻¹, za PG uzorke. Detaljan način prikupljanja i opisa analize uzoraka date je u poglavlju 7.

Tabela 4.1 Radioizotopi korišćeni za određivanje koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , njihove energije i intenziteti i tipične minimalne detektabilne aktivnosti (*MDA*) procenjene za uzorke fosfogipsa.

Prirodni radioizotop	Energija (keV)	Detektovan radionuklid	Intenzitet (%)	Tipična <i>MDA</i> (Bq kg ⁻¹)
^{226}Ra	295,2	^{214}Pb	19,2	3,8
	351,9	^{214}Pb	35,1	3,2
	609,3	^{214}Bi	44,6	3,0
	1764,5	^{214}Bi	15,1	2,8
^{232}Th	238,6	^{212}Pb	43,5	1,3
	583,2	^{208}Tl	84,5	1,1
	911,2	^{228}Ac	26,6	1,4
	968,9	^{228}Ac	16,2	2,0
^{40}K	1460,8	^{40}K	10,7	8,9

Merna nesigurnost za izmerene koncentracije aktivnosti procenjena je na osnovu relacije (4.3) koja uzima u obzir statističku nesigurnost i nesigurnost efikasnosti detekcije na odgovarajućoj energiji:

$$\sigma_A = \sqrt{\frac{1}{\sum \frac{1}{\sigma_i}}} \quad (4.3)$$

gde je σ_A merna nesigurnost za datu izmerenu koncentraciju aktivnosti odgovarajućeg radionuklida, σ_i je merna nesigurnost izvedena na osnovu pojedinačnih energija gama pikova odgovarajućeg radionuklida. Statistička merna nesigurnost radioaktivnog raspada radionuklida izračunava se u softveru Genie2000. Sve merne nesigurnosti date su sa nivoom pouzdanosti od 95%.

Obezbeđenje i kontrola kvaliteta (QA/QC) merenja su potvrđeni akreditacijom laboratorije izvršenom prema SRPS ISO/IEC 17025 standardu za kompetentnost laboratorija za ispitivanje i etaloniranje, akreditacioni broj laboratorije 01-167 od 2006. godine koje izdaje Akreditaciono telo

Srbije. Ova laboratorija uspešno učestvuje, svake godine, u međunarodnim interkomparacijama za metode ispitivanja radioaktivnosti u uzorcima iz životne sredine koje organizuje Međunarodna agencija za atomsku energiju – IAEA (izveštaj IAEA-TEL-2018-03 II deo, 2018).

Tabela 4.2 Parametri koji karakterišu gama spektrometre korišćene za merenje nivoa radioaktivnosti građevinskih materijala u ovoj studiji.

Proizvođač i godina proizvodnje	Canberra, 2005.	ORTEC, 1999
Interna oznaka u laboratoriji	K	L
Model i serijski broj	HPGe, GC3518, 05110	HPGe, LLB-GMX-HJ
Pretpojačavač, kriostat	2002CSL, 7935SL-7	
Geometrija	Koaksijalni sa zatvorenim krajem	Koaksijalni sa zatvorenim krajem
Orijentacija ose detektora	Proizvoljna, u Pb zaštiti vertikalna	Vertikalna
Radna temperatura (K)	77	77
Radni napon (kV)	4,5	-2,5
Spoljašnji kontakt	0,9 mm Ge(Li)	0,3 μ m Ge(B)
Unutrašnji kontakt	0,3 μ m Au	0,9 mm Ge(Li)
Ulazni prozor	1,5 mm Al	0,5 mm Be
Prečnik kristala (mm)	61	56
Visina kristala (mm)	52	65,2
Poluprečnik jezgra (mm)	9,0	4,6
Visina jezgra (mm)	34	57,1
Debljina kućišta (mm)	1,5 mm Al	1,3 mm Al
Relativna efikasnost	36%	32%
Rezolucija na 1332 keV FWHM, FWTM (keV)	1,9; 3,29	1,9; 3,4

5 Metode strukturne karakterizacije građevinskih materijala

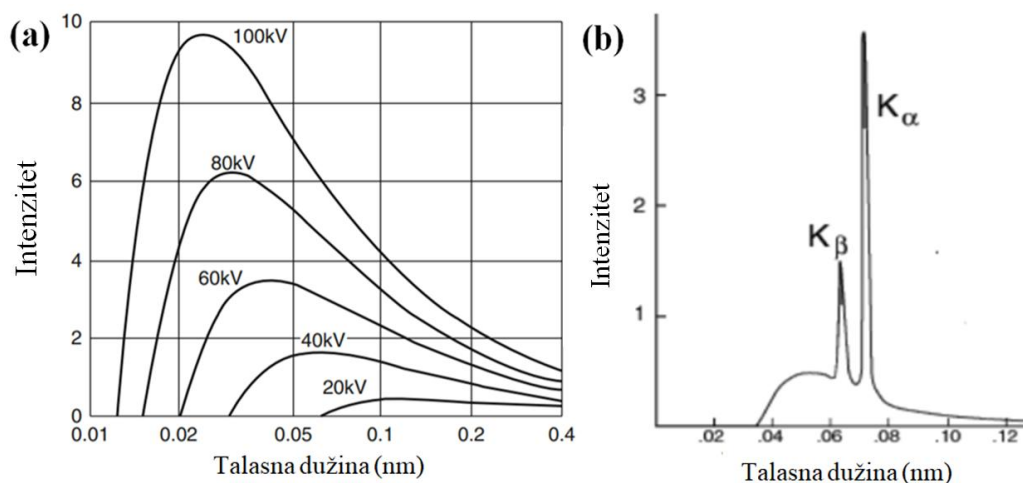
5.1 Rendgensko zračenje

Jedan od načina dobijanja X-zraka (rendgensko zračenje) je u tzv. specijalnim rendgenskim cevima u kojima vlada visoki vakuum sa mogućnošću korišćenja različitih materijala kao antikatoda (anoda). Zbog toga što se veliki deo energije u rendgenskoj cevi troši na zagrevanje antikatode, potrebno je konstantno hlađenje protočnom vodom (Guinebretière, 2007).

Usled visoke razlike u potencijalima između katode i antikatode, stvoreni elektroni procesom termoelektronske emisije se ubrzavaju i usmeravaju sa katode ka antikatodi. Pri udaru elektrona od antikatodu dolazi do njihovog naglog usporjenja i emisije elektromagnetnog X-zračenja. Ovako nastalo zračenje se naziva zakočno rendgensko zračenje i ima kontinualan spektar počev od jedne minimalne vrednosti talasne dužine, Slika 5.1a (Guinebretière, 2007; Waseda et al., 2011). Minimalna talasna dužina λ_{\min} data je poznatom Duan-Hantovom jednačinom (*W.Duane, F. L. Hunt*) koja odgovara ekstremnom slučaju da je kompletna dostignuta energija prenet na X-zrake:

$$\lambda_{\min} = \frac{12,37}{U} \quad (5.1)$$

gde se talasna dužina obično izračava u angsteremima ($1\text{Å}=10^{-10}$ m), ukoliko se napon U uzme u kV. Kontinualan spektar zračenja ne zavisi od vrste antikatode.



Slika 5.1 (a) Tipičan emisioni spektar zakočnog rendgenskog zračenja molibdenove anode; (b) tipičan emisioni spektar karakterističnog rendgenskog zračenja.

Ukoliko se za proizvodnju rendgenskog zračenja upotrebi dovoljno visok napon u rendgenskoj cevi može doći do izbijanja elektrona iz omotača antikatode, što u emisionom spektru rezultuje relativno ostrim pikovima značajnog intenziteta. Ova vrsta zračenja se naziva karakteristično rendgensko zračenje, Slika 5.1b. Karakteristično rendgensko zračenje je direktna posledica prelaska elektrona sa viših orbitala na K-nivo. Najveća verovatnoća je za ostvarivanje

prelaza na K nivo sa susednog L nivoa. Ovaj prelaz se obično obeležava sa K_{α} , stin što se usled cepanja L nivoa uočava pojava dubletnih linija koje se obeležavaju sa $K_{\alpha 1}$ i $K_{\alpha 2}$. Odnos intenziteta ovih linija ne zavisi od vrste antikatode i obično se nalaze u odnosu 2 : 1. Emisija linija nastalih tokom prelaza sa M na K nivo označava se kao K_{β} sa svoja dva dubleta $K_{\beta 1}$ i $K_{\beta 2}$. Verovatnoća njihove emisije odnosno prelaza je 5 odnosno 10 puta manja od istih linija sa L nivoa (Guinebretière, 2007).

Rendgensko zračenje se obično koristi za potrebe ispitivanja strukture materijala (difrakcijom), ali i za određivanje hemijskog sastava (fluorescencijom) ili lokalnog uređaja putem merenja dužina hemijskih veza (apsorpcionom spektroskopijom), kao i za snimanje unutanjosti predmeta (tomografijom) ili za precizno procesiranje (litografijom). Uređaji koji se koriste u svrhu ispitivanja strukture materijala difrakcijom X-zraka, odnosno difraktometri, obično se sastoje od:

1. Izvora visokog napona koji je potrebno dovesti između katode i anode u rendgenskoj cevi,
2. Strujnog izvora koji služi za napajanje grejanja katode koja procesom termoelektronske emisije proizvodi elektrone,
3. Rendgenske cevi koja predstavlja staklenu cev u kojoj su smeštena katoda i antikatoda. U praktičnoj upotrebi su rendgenske cevi sa antikatodama od molibdena (Mo), bakra (Cu), nikla (Ni), gvožđa (Fe) i hroma (Cr) (Rakić et al., 2013).

Eksperimentalne metode karakterizacije materijala zahtevaju monohromatsko rendgensko zračenje. Kao što je ranije rečeno K_{α} zračenje ima najveći intenzitet, ali se u dobijenom snopu nalaze i mnoge druge linije (talasne dužine) manjeg intenziteta te ih je potrebno eliminisati ili barem učiniti zanemarljivim u odnosu na K_{α} zračenje. Ovo se postiže korišćenjem različitih metalnih filtera koji vrše selektivnu atenuaciju pojedinih talasnih dužina (linija) (Guinebretière, 2007; Waseda et al., 2011).

5.2 Rendgenska strukturna analiza (XRD)

Rendgenska strukturna analiza (eng. *X-ray diffraction (XRD)*) predstavlja upotrebu rendgenskog zračenja za ispitivanje strukture materijala. Uzorci koji podležu ovoj metodi mogu biti u obliku monokristala, kao i polikristalnog praha, te su se tako razvile različite metode tzv. difrakcije rendgenskog zračenja na ispitivanom uzorku kao što su Laueova metoda, Debaj-Šererova metoda, Oscilatorna metoda, Precesiona metoda, Vajsenbergova metoda kao i difrakcija na praškastim polikristalnim uzorcima. U ovom delu biće reči samo o difrakciji na praškastim polikristalnim uzorcima jer je ta metoda korišćena u ovoj studiji za strukturnu karakterizaciju građevinskih materijala, odnosno identifikaciju prisutnosti mineralnih faza u uzorcima građevinskih materijala.

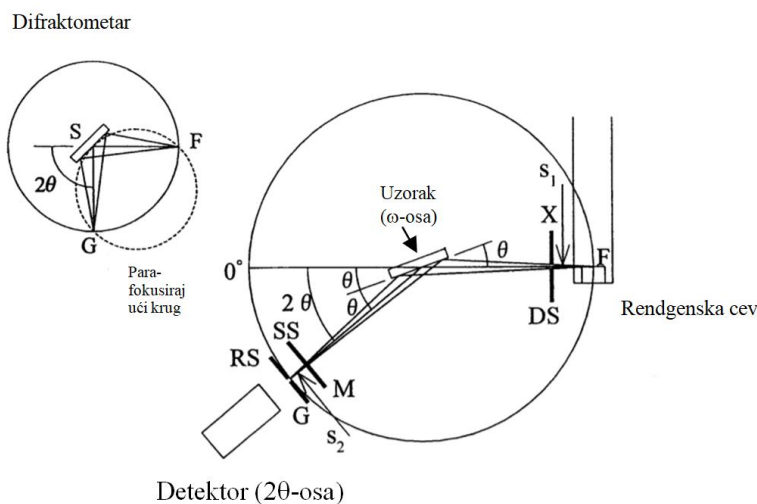
Da bi došlo do difrakcije rendgenskog zračenja na polikristalnom praškastom uzorku mora biti zadovoljen Bragov zakon koji glasi:

$$n\lambda = 2d\sin\theta \quad (5.2)$$

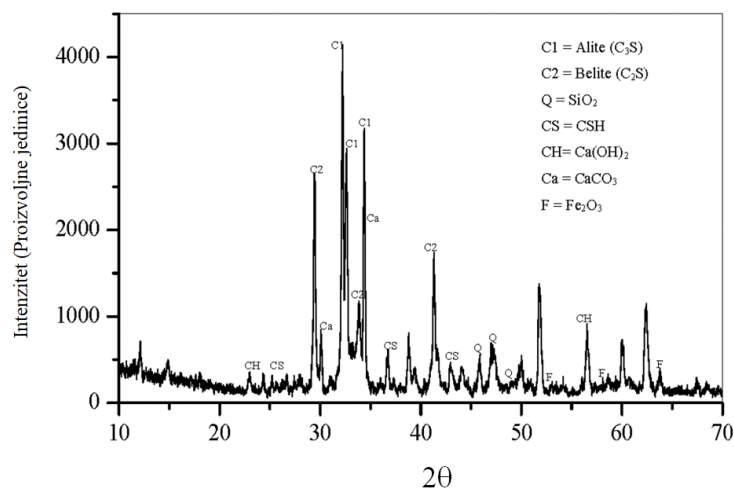
gde je n red difrakcije, d je međuravansko rastojanje i θ je ugao između površine uzorka i upadnog zraka monohromatskog rendgenskog zračenja.

Uređaj koji služi za strukturnu analizu praškastih uzoraka naziva se difraktometar. Difraktometar je precizni instrument sa dve nezavisne ose rotacije (ω i 2θ). Ovaj uređaj omogućava dobijanje podataka o intenzitetu difraktovanog rendgenskog snopa, u zavisnosti od

ugla (2θ), na osnovu poznate talasne dužine difraktovanog rendgenskog zračenja uz zadovoljenje Bragovog uslova za difrakciju (relacija (5.2)). Osnovna postavka difraktometra prikazana je na Slici 5.2. Tri komponente, izvor rendgenskih zraka (F), nosač uzorka (S) i detektor (G), leže na obimu kruga, poznatom kao krug fokusiranja. Kada je položaj izvora rendgenskih zraka fiksiran i detektor je vezan na 2θ -osi, praškasti uzorak u obliku ravne ploče (na nosaču) obično se postavlja na ω -osu koja odgovara centru difraktometra. Glavni razlog korišćenja ravnog uzorka u obliku ploče je da se iskoristi geometrija fokusiranja za efikasno prikupljanje intenziteta slabih difraktovanih snopova zračenja. Tokom merenja, 2θ - osa se rotira dva puta brže od ω -ose, i zato se često naziva teta-teta skeniranje (Waseda et al., 2011).



Slika 5.2 Princip rada difraktometra za polikristalne praškaste uzorke (Waseda et al., 2011).



Slika 5.3 Tipičan XRD snimak (šema) pikova za uzorak maltera.

Da bi se smanjila ugaona disperzija i poboljšala prostorna rezolucija za upadni i difraktovani rendgenski snop, u rendgenske snopove se ubacuju odgovarajući sistemi proreza. Divergentni prorezi (DS) i rasejanji snop (SS) su postavljeni tako da ograničavaju svaku horizontalnu disperziju i upadnih i difraktovanih rendgenskih zraka, a prijemni prorez (RS) ispred detektora je

postavljen za određivanje prostorne rezolucije. Važna karakteristika difraktometra nije samo ograničenje disperzije DS-om i SS-om, već i fokusiranje difraktovanog rendgenskog snopa sa praškastog uzorka (S) u RS-u. Ovaj princip kolimacije i fokusiranja naziva se para fokusiranje. Kao što se može videti sa Slike 5.2, položaj proreza RS ispred detektora uvek se podudara sa tačkom parafokusiranja u difraktometru, a to omogućava efikasno merenje intenziteta i prostorne rezolucije (Waseda et al., 2011).

Prvi korak strukturne analize za izmerene podatke rendgenske difrakcije je određivanje položaja ugla raspršenja 2θ , koji odgovara lokaciji difrakcionih pikova. Pošto se i eksperimenti difrakcije rendgenskih zraka na praškastim uzorcima izvode pod kontrolom računara, šema dobijenih difraktivanih pikova na polikristalnom uzorku izgledaju kao na Slici 5.3, te se vrednosti uglova 2θ mogu lako odrediti za svaki pojedinačni pik koji odgovara nekoj kristalnoj fazi.

Kvalitativna procena sadržaja kristalnih mineralnih komponenti (jedinjenja) u polikristalnom praškastom uzorku se vrši na sledeći način. Intenzitet "najjačeg" pika se normira na 100, a intenziteti ostalih se proračunavaju u odnosu na njega. Očitavaju se vrednosti ugla 2θ na kojima se uočavaju maksimumi pikova u spektru i proračuna se međuravansko raspojanje d na osnovu Bragove jednačine. Relativni intenziteti izraženi u proizvoljnim jedinicama kao i uglovi 2θ i međuravanska raspojanja d svojstvena su za svako jedinjenje. Poslednji korak u kvantitativnoj proceni jeste poređenje parametara 2θ i d sa podacima dostupnim u različitim bazama podataka (Rakić et al., 2013; Waseda et al., 2011).

Tabela 5.1 Osnovne karakteristike korišćenog difraktometra za praškaste polikristalne uzorke.

Proizvođač, tip	Philips, PW1820/00
Kontroler, tip	Philips, PW1710/00
Divergentni prorez, tip	Philips, PW1386/55 Automatik
Radijaciona dužina	12 mm
Prijemni prorez	0,2 mm
Prorez za rasejanje	1,0°
Monohromator, tip	Philips, PW1752/00, zakrivljeni grafitni monohromator
Držać uzorka, tip	Philips, PW1784/25
Podloga držača uzorka, tip	Philips, PW1817/32
Spiner za urotak, tip	Philips, PW1774/00
Brzina rotacije	2 rps
Minimum 2θ	3,0°
Maksimum 2θ	150,0°
Generator visokog napona, tip	Philips, PW1830/40
Tip zračenja	Cu
Talasna dužina zračenja	1,54060Å, α_1 ; 1,54438Å, α_2
Izvor zračenja, rendgenska cev, tip	Philips, PW2273/20, dugi fokus zračenja, 2200W, 60kV max
Jačina struje	50 mA
Napon	40 kV
Detektor, tip	Philips, PW1711/10, proporcionalni detektor
Softverski paket	Philips, PW1877 PC-APD (Automatic Powder Diffraction) Version: 2.1A 1990

U ovoj studiji mineralološka karakterizacija praškastih uzoraka građevinskih materijala izvršena je pomoću instrumenta *Philips PW 1820*, sa Cu K_α zračenjem ($\lambda=1,5406$ Å) i režimom skeniranja

sa korakom od $0,02^\circ$ u ugaonom opsegu $2\theta = (5-60)^\circ$. Napon u rendgenskoj cevi iznosi 40 kV i jačina struje 50 mA. Vreme ekspozicije u svakoj tački je 2s. Ostale karakteristike korišćenog uređaja date su u Tabeli 5.1 a izgled uređaja i pripremljenih praškastih uzoraka dati su na Slici 5.4.



Slika 5.4 (a) Difraktometar Philips, PW1820/00 korišćen za mineralošku analizu građevinskih materijala u ovoj studiji, **(b)** uzorci građevinskih materijala pripremljeni za XRD analize.

Korišćeni difraktometar za praškaste uzorke nosi oznaku PW1820/00, PHILIPS, Holandija, monohromator PW1752/00, proizvođača PHILIPS, Holandija, serijski broj DY1275, Slika 5.4. Rendgenska cev kod ovog uređaja je takođe proizvođača PHILIPS oznake PW2273/20, serijski broj DK 911541, Maksimalan napon u cevi je 60 kV, a snaga 2200W, sa naglaskom na dugi fokus zračenja („long fine focus“).

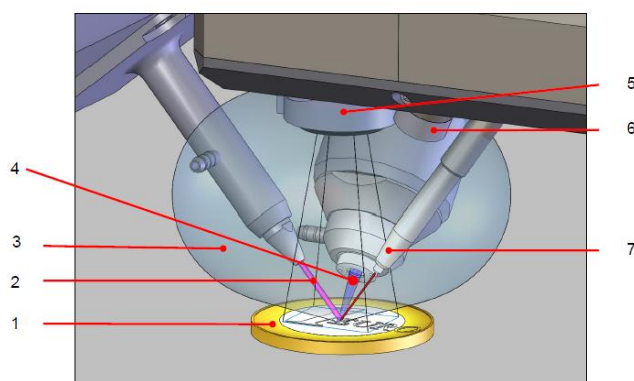
5.3 Rendgenska fluorescentna analiza (XRF)

XRF elementarna analiza (eng. *X-ray fluorescence (XRF)*) je nedestruktivna metoda pogodna za analize mnogih vrsta uzoraka, odnosno materijala zasnovana na principu upotrebe rendgenskog zračenja. Omogućava informacije o hemijskom sastavu materijala, što podrazuvena kvalitativnu i kvantitativnu analizu. XRF je metoda širokog opsega analize elemenata od Na do U. Glavna prednost ove metode je veoma mala količina uzorkovanog materijala, ali i veoma kratko vreme analize. Ovu analitičku tehniku karakterišu visoka preciznost, tačnost i mogućnost određivanja više elemenata prisutnih u uzorku istovremeno (Gauglitz and Moore, 2014).

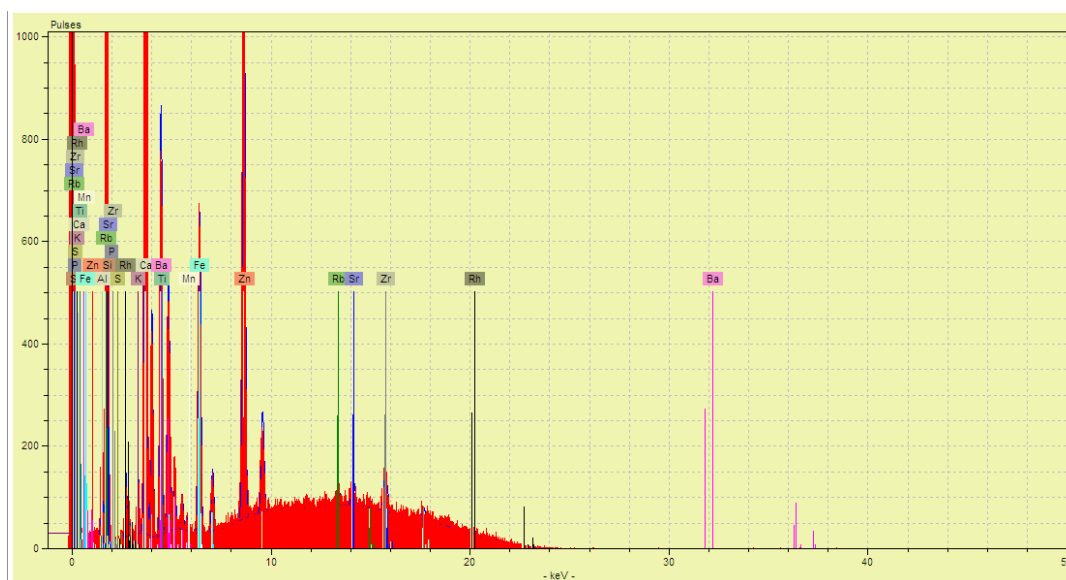
Princip rada XRF analize se zasniva na interakciji primarnog rendgenskog zračenja, odnosno fotona dovoljno visoke energije, sa ispitivanim uzorkom građevinskog materijala⁴, a geometrija same eksperimentalne postavke je prikazana na Slici 5.5. Rendgensko fluorescentno zračenje (XRF) se indukuje kada fotoni dovoljno visoke energije, emitovani iz rendgenske cevi, udaraju o materijal. Primarni rendgenski zraci prolaze procese interakcije sa atomima uzorka. Visokoenergijski fotoni indukuju jonizaciju elektrona iz unutrašnje ljuske fotoelektričnim efektom i tako se stvaraju slobodna mesta elektrona u unutrašnjim ljuskama (K, L, M,...). Brz prelazak

⁴ XRF metoda može osim čvrstih uzoraka analizirati i uzorke u tečnom stanju.

elektrona spoljne ljuske na ta uprašnjena mesta (šupljine), za oko 100 fs, može prouzrokovati emisiju karakterističnog fluorescentnog zračenja. Skup karakterističnih fluorescentnih linija iz svakog elementa, uključujući sve prelaze, omogućava identifikaciju elementa koji su prisutni u uzorku. XRF zračenje određene energije karakteriše se spektralnim linijama koje imaju odgovarajuću oznaku u zavisnosti od prelaza koji se odigrao (nose oznaku nivoa na koji prelaze, npr. K, L, M... kao i oznake α , β , γ ... koje govori o tome sa kog nivoa se prelaz odigrao. Dakle, princip rada XRF uređaja zasniva se na merenju talasne dužine odnosno energije fotona i intenziteta karakterističnog XRF zračenja, od strana odgovarajućeg detektora, emitovanog iz uzorka nakon pobude primarnim snopom rendgenskog zračenja (Beckhoff et al., 2006; Gauglitz and Moore, 2014). Tipičan XRF spektar analize elemenata iz jednog od uzoraka građevinskih materijala u ovoj studiji prikazan je na Slici 5.6.

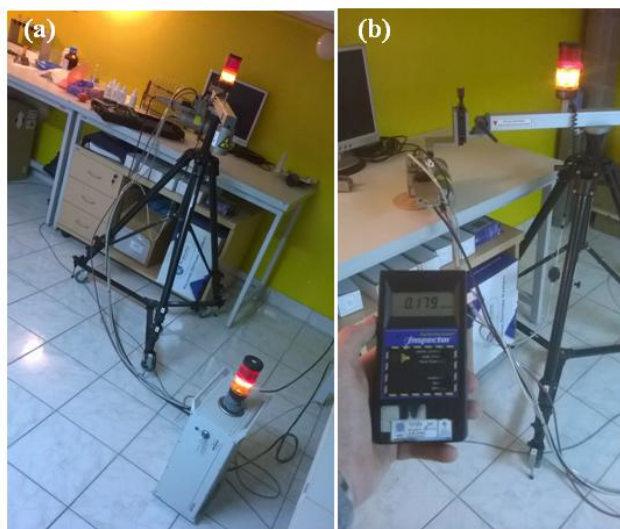


Slika 5.5 Princip rada pobude i pozicioniranja XRF spektrometra. (1) uzorak, (2) rendgensko zračenje koje vrši pobudu (zračenje iz rendgenske cevi), (3) rasejano i fluorescentno rendgensko zračenje, (4) rendgensko zračenje registrovano od strane detektora, (5) CCD kamera, (6) osvetljenje za uzorak, (7) laserski pokazivač za pozicioniranje.



Slika 5.6 Tipičan XRF spektar jednog od analiziranih uzoraka građevinskih materijala.

Merenja sadržaja elemenata u uzorcima građevinskih materijala u ovoj studiji su izvršena pomoću rendgenske fluorescentne analize (XRF) instrumentom *Portable μ -XRF spectrometer* (ARTAX™ 200 μ -XRF) proizvođača Bruker (Slika 5.7), u atmosferi helijuma pri pritisku od 2,5 bar. Snimanja su vršena pri naponu u rendgenskoj cevi od 25 kV i intenzitetu struje od 1500 μ A. Trajanje ekspozicije jednog uzorka rendgenskom zračenju iznosilo je 100 s. Spekti su prikupljeni i analizirani korišćenjem ARTAX softvera.



Slika 5.7 Izgled portabilnog μ -XRF spectrometra proizvođača Bruker koji je korišćen za hemijsku karakterizaciju uzoraka građevinskih materijala (a), kao i vrednosti izmerene doze rendgenskog zračenja na udaljenosti 1 m od rendgenske cevi (b).

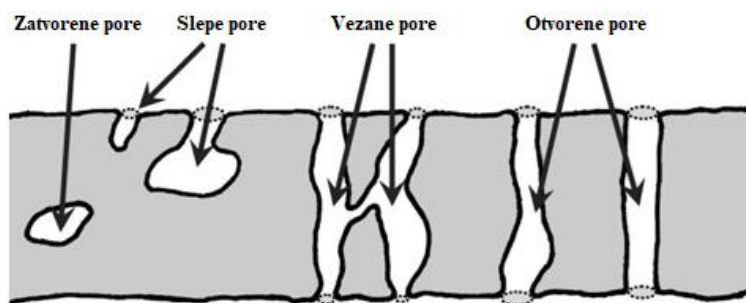
Korišćeni XRF uređaj je pogodan za multielementarnu analizu od Na ($Z=11$) do U ($Z=92$) sa prostornom rezolucijom do 70 μ m. Sadrži silicijumski detektor sa Peltijevim hlađenjem, radi bez azota sa elektronikom velike brzine. Detektor ima dobru energijsku rezoluciju što omogućava brzo merenje tokom skeniranja i mapiranja elemenata. Uređaj sadrži i CCD kameru za precizno pozicioniranje uzorka pre snimanja koje se izvršava pomoću laserskog pokazivača (Slika 5.5) (Manual ARTAX., 2011). Sva XRF merenja su izvršena na Katedri za inženjerstvo materijala, Tehnološkog fakulteta, Univerziteta u Novom Sadu.

Korišćenjem *Inspector* dozimetra izmerena je doza zračenja od 0,149 μ Sv h^{-1} na random mestu tokom snimanja spektra, koji je udaljen oko 3 m od rendgenske cevi. Na udaljenosti od 20 cm od rendgenske cevi izmerena je doza zračenja od 0,419 μ Sv h^{-1} (2,8 puta veća), dok je na rastojanju od 1 m od rendgenske cevi izmerena doza zračenja od 0,179 μ Sv h^{-1} .

5.4 Određivanje teksturalnih karakteristika građevinskih materijala

Tekstura materijala može se definisati kao splet kanala, pukotina i pora nastalih rasporedom međusobno povezanih primarnih i sekundarnih čestica različitih oblika i veličina, koje se spajaju u tačkama dodira, a između njih ostaje prazan međuprostor (Kiš et al., 2009). Ona je npr. kod keramičkih sistema posledica heterogenosti koja je prisutna zbog složenog mineraloškog sastava sirovinskih komponenti.

Određivanje teksturalnih karakteristika je složen proces koji najčešće obuhvata nekoliko različitih metoda za ispitivanja. Realni sistemi, kao što su građevinski materijali, imaju širok interval veličina i oblika pora zbog čega se njihova struktura uglavnom ne može u potpunosti ispitati isključivo jednom metodom. Može se, međutim, dati približna slika o raspodeli veličina pora koristeći više komplementarnih metoda kao što su živina porozimetrija i metode niskotemperaturne adsorpcije gasova. Ukoliko se žele ispitati kapilarna svojstva nekog materijala, poseže se za metodama apsorpcije (zasićenja), dok se elektronskom mikroskopijom mogu utvrditi geometrijski oblici i veličine pora, ali ne i rascepa niti kapilara.



Slika 5.8 Šematski prikaz pora u građevinskom materijalu.

Da bi se moglo govoriti o teksturalnim karakteristikama materijala, neophodno je prethodno objasniti određene pojmove pomoću kojih se ove karakteristike opisuju. Prvi od njih je ukupna zapremina pora (V_p , $\text{cm}^3 \text{g}^{-1}$), koja predstavlja zapreminu praznog prostora u jedinici mase poroznog materijala. Na Slici 5.8 dat je šematski prikaz pora u građevinskom materijalu. Ukupna poroznost je jedan od najvažnijih termina koji se koristi za definisanje strukture pora i predstavlja frakcionu zapreminu pora u odnosu na ukupnu zapreminu materijala. Ukupna poroznost podrazumeva ukupan udeo otvorenih i zatvorenih pora u materijalu koji se ispituje i može se izraziti pomoću relacije (5.3) (de Freitas and Delgado, 2013):

$$P = \frac{V_p}{V_b} \cdot 100 \cdot \% \quad (5.3)$$

gde je P ukupna poroznost (%), V_p je ukupna zapremina pora u materijalu, V_b je ukupna zapremina analiziranog materijala.

Statistička veličina srednji poluprečnik pora (r , nm) uzima da su sve pore u datom materijalu cilindričnog oblika i dobija se primenom geometrijskih formula, a porozna struktura predstavlja udeo pora određenih dimenzija u porama svih dimenzija i prikazuje se krivom raspodele pora po njihovim dimenzijama.

Povezanost pora (C) je važna karakteristika svakog građevinskog materijala i predstavlja udeo pora u odnosu na zapreminu materijala koja se sastoji samo od otvorenih i međusobno povezanih pora. Kada je $C = 1$, znači da su sve pore povezane, dok za $C = 0$, znači da ni jedan put pora ne može preći s jedne na drugu stranu. U poređenju sa zatvorenim porama, povezivanje pora pruža neprekidni kanal komunikacije sa spoljnom površinom materijala. Stoga je povezanost pora važan pokazatelj propusnosti analiziranom građevinskog materijala. Efektivna poroznost je alternativni pojam (obuhvata samo slepe, vezane i otvorene pore) koji se koristi za opisivanje povezanosti pora. Očigledno je da je efektivna poroznost uvek manja ili jednaka ukupnoj poroznosti (de Freitas and Delgado, 2013).

Postoji nekoliko klasifikacija za pore prema njihovoj veličini, od kojih se najčešće koriste klasifikacije prema IUPAK-u i klasifikacija prema Dubinin-u, Tabela 5.2. U zavisnosti od dominantnog prisustva određene veličine pora materijali se mogu klasifikovati kao: makroporozni, mezoporozni ili mikroporozni, pri čemu u svakoj od ovih klasa ima i pora koje su manje odnosno veće od onih koje dominiraju.

Slika 5.2 Vrste poroznosti prema IUPAK-u i Dubinin-u.

Poroznost	Klasifikacija prema IUPAK-u	Klasifikacija prema Dubinin-u
	Veličina pora	
Mikroporoznost	< 2 nm	< 2 nm
Mezoporoznost	2 – 50 nm	2 – 30 nm
Makroporoznost	> 50 nm	> 30 nm

Potrebno je naglasiti da ne postoje striktno granice između ovih klasa poroznosti materijala. Dubinin je predložio dalju klasifikaciju pora na ultramikropore ili submikropore (manje od 0,6 nm) i supermikropore (od 0,6 do 1,6 nm) (Aligizaki, 2006). Ova terminologija se razlikuje u praksi, pa se tako npr. u oblasti građevinske keramike termin „makroporoznost“ odnosi na pore reda veličine mikrometra. Autori (Colleti et, al. 2016) u svom radu daju sledeću klasifikaciju pora: mikropore imaju prečnik ispod 60 μm , mezopore između 60 μm i 4 mm, i konačno makropore veće od 4 mm. U ovom delu doktorske disertacije biće dat opis korišćenih metoda za ispitivanje poroznosti tipičnih građevinskih materijala koji su korišćene u eksperimentalnom delu.

5.4.1 Metode apsorpcije vode

Sve metode bazirane na apsorpciji vode zasnivaju se na merenju mase uzorka pre i posle potapanja u vodu određene temperature za određeno vreme. Ove metode su relativno jednostavne i osim tehničke vage ne zahtevaju nikakve analitičke instrumente. Glavni nedostatak ovih metoda je taj što je moguće odrediti poroznost koja potiče samo od relativno velikih pora (makroporoznost). Takođe, ukoliko u uzorku postoje sirovine koje se rastvaraju u vodi, ne mogu se dobiti pouzdani rezultati. U industriji opekarskih proizvoda najčešće se koriste metode prema ASTM standardima: ASTM C373-88 (za porcelan) i ASTM C20-00 (za opeku i slične proizvode), EN 771-1 (za tipične građevinske materijale), kao i prema ISO standardu 10454-3 (keramičke pločice) (ASTM C20-00, 2010; ASTM C373-88, 2006; SRPS EN 771-1, 2016; ISO 1054-3, 2018).

Ispitivanje poroznosti materijala prema ASTM C373 standardu podrazumeva da se uzorak najpre osuši do konstantne mase u sušnici na 150°C i izmeri na tehničkoj vagi njegova masa (D), a zatim se ubaci u posudu sa destilovanom vodom i kuva 5 h, nakon čega treba da odstoji u vodi dodatna 24 h. Proces kuvanja se koristi jer sa povećanjem temperature viskoznost vode opada, čime ona može lakše ući u pore ispitivanog materijala. Nakon toga treba izmeriti masu uzorka (S) koji je suspendovan u vodi koristeći korpicu povezanu sa hidrostatičkim terazijama. Na kraju uzorak treba izvaditi iz vode, obrisati ga vlažnom krpom (kako voda iz pora ne bi bila povučena napolje) i izmeriti mu masu (M). Prema ASTM C373-88 standardu, ako se uzme da 1 cm^3 vode ima masu od 1 g, mogu se izračunati sledeće veličine (ASTM C373-88, 2006):

- 1) spoljašnja zapremina uzorka (zapremina skeleta i pora), izražena u cm^3 :

$$V = M - S \quad (5.4)$$

- 2) zapremina otvorenih pora (V_{OP}) i zapremina „nepropusnog dela“ (čvrstog skeleta i zatvorenih pora, V_{IP}), izražena u cm^3 :

$$V_{OP} = M - D \quad (5.5)$$

$$V_{IP} = D - S \quad (5.6)$$

- 3) otvorena poroznost (P_{eff}) (udeo zapremine otvorenih pora u spoljašnjoj zapremini uzorka), izražena u %:

$$P_{\text{eff}} = \frac{M - D}{V} \cdot 100 \quad (5.7)$$

- 4) apsorpcija vode ili koeficijent apsorpcije vode (A) (odnos mase apsorbovane vode i mase suvog uzorka), izražen u %:

$$A = \frac{M - D}{D} \cdot 100 \quad (5.8)$$

- 5) prividna gustina (ρ_s) (tj. gustina čvrstog skeleta i zatvorenih pora-gustina onog dela uzorka koji je nepromočiv na ključalu vodu), izražena u kg m^{-3} :

$$\rho_s = \frac{D}{D - S} \quad (5.9)$$

- 6) gustina balk uzorka (ρ_b) (*eng. Bulk Density*), izražena u kg m^{-3} :

$$\rho_b = \frac{D}{V} \quad (5.10)$$

ASTM C20-00 standard koji se obično primenjuje na opeku i slične materijale koristi istu metodologiju proračuna navedenih veličina, ali se priprema uzoraka razlikuje. Ovaj standard podrazumeva sušenje uzorka na temperaturi od 105 – 110 °C i kuvanje uzorka 2 h, nakon čega se propisuje da dodatno odstoji 12 h (ASTM C20-00, 2010). Ovaj standard je u mnogome sličan sa standardom ISO 10545-3 koji takođe podrazumeva kuvanje uzorka 2 h, dok se propisuje da analizirani uzorak dodatno odstoji 4 h (ISO 10545-3, 2018). Prednost ove metode nad američkim ASTM standardima je kraće vreme ispitivanja, međutim očigledno je da se rezultati dobijeni ISO metodom ne mogu poklapati sa rezultatima dobijenim ASTM metodama.

SRPS EN 771-1 metoda korišćena je za određivanje apsorpcije vode u građevinskim materijalima prema relaciji (5.7) kao u ASTM standardu (SRPS EN 771-1, 2016). Ova metoda se zasniva na potapanju ispitivanog materijala u vodu 24 sata, nakon čega se meri masa uzorka. Metoda ne zahteva kuvanje uzoraka ili dodatne uslove.

Poznavajući prividnu gustinu i gustinu balk uzorka (relacije 5.9 i 5.10) otvorena poroznost uzorka se može izračunati na osnovu relacije (5.11) (Beck et al., 2003):

$$P_{\text{eff}} = 1 - \frac{\rho_b}{\rho_s} \quad (5.11)$$

Zbog limitiranosti metoda apsorpcije vode da prodru u najsitnije pore, već samo u makropore, celovita slika o poroznosti određenog materijala dobija se korišćenjem drugih analitičkih tehnika. U ovoj studiji za određivanje mezopora korišćena je standardna metoda živine porozimetrije koja ima značajnije veće mogućnosti od metoda apsorpcije vode.

5.4.2 Živina porozimetrija

Živina porozimetrija je jedna od najčešće korišćenih indirektnih metoda za određivanje poroznosti nekog sistema. Informacije koje mogu da se dobiju ovom metodom su efektivna poroznost, ukupna zapremina otvorenih i vezanih i slepih pora (Slika 5.8) kao i srednji poluprečnik pora, a računski se mogu dobiti i raspodela zapremine pora po poluprečniku i ukupna površina pora. Ni jedna druga merna tehnika karakterizacije poroznosti ne može ovo postići. Živa je pogodna za određivanje poroznosti budući da slabo kvasi zidove ispitivanog materijala, te se iz pritiska (sile) potrebnog za savladavanje otpora (sile) površinskog napona mogu dobiti određene informacije o teksturi ispitivanog materijala. Ovom metodom se mogu ispitivati pore od oko 500 μm do 3,5 nm. Potrebno je naglasiti da živina porozimetrija, takođe ima ograničenja. Jedno od najvažnijih ograničenja je činjenica da meri najveći ulaz prema porama (videti Sliku 5.8), ali ne i stvarnu unutrašnju veličinu pora. Iz očitih razloga se takođe ne može koristiti za analizu zatvorenih pora, jer živa nema načina da uđe u te pore (Giesche, 2006).

Metoda živine porozimetrije se zasniva na utiskivanju tečne žive pod rastućim pritiskom u pore uzorka i primenom Vošburnove (eng. *Washburn*) jednačine tj. jednačine za definisanje zavisnosti veličine prečnika pora od primenjenog pritiska žive. Ova zavisnost je data jednačinom (Giesche, 2006; Moro and Boehni, 2002; de Freitas and Delgado, 2013):

$$r = -\frac{2 \cdot \gamma \cdot \cos\theta}{P} \quad (5.12)$$

gde je r – efektivni poluprečnik pora (nm), γ – površinski napon žive izražen u N m^{-1} , θ – ugao kvašenja žive i ispitivanog materijala ($^\circ$), P – primenjeni pritisak (bar). Relacija (5.12) važi u slučajevima tečnosti koje ne kvase zidove suda (živa) i u slučaju cilindričnih pora. Pore su vrlo retko cilindričnog oblika, pa prema relaciji (5.12) predstavlja specijalni model. Ovakav model možda ne predstavlja pore u realnim materijalima, ali je njegova upotreba opšteprihvaćena kao praktična, jer bi u suprotnom rešavanje ovakvog problema bilo vrlo kompleksno. Površinski napon žive varira sa njenom čistoćom, ali je najčešće preporučena vrednost 485 dynes cm^{-1} . Kontaktni ugao između žive i poroznog materijala može varirati u zavisnosti od sastava materijala, ali je obično 130° .

Na datom pritisku P zapremina utisnute žive odgovara zapremini svih pora koje imaju veći poluprečnik od r . Zapremina utisnute žive se može direktno očitati sa aparata, a zatim se može dobiti diferencijalna kriva raspodele zapremine pora po efektivnom poluprečniku pora. Oblik ove krive može da ukaže na zastupljenost pora određenih veličina i složenu poroznu strukturu sistema. Prednosti ove metode su jednostavno izvođenje, relativno kratko vreme određivanja i zadovoljavajuća tačnost, dok su nedostaci i izvori grešaka pretpostavka o cilindričnom obliku pora

(otuda se uvodi termin efektivni poluprečnik), deformacije i lomljenje uzorka pod pritiskom (uzorak mora biti vrlo čvrst; ne može se određivati poroznost mekših materijala), aproksimacija ugla kvašenja i površinskog napona žive u odnosu na ispitivani materijal, zaostajanje vazduha u porama i drugo (Ranogajec, 2005). Takođe, mogu se dobiti informacije samo o porama koje su otvorene (tj. do kojih postoji „put“ kojim živa može proći), dok su zatvorene pore nedostupne ovoj tehnici. Otvorene pore su vrlo značajne u pogledu svog uticaja na trajnost materijala jer predstavljaju glavni put kojim gasovi, tečnosti i rastvorljive soli prodiru u materijal i oštećuju ga. Iako nisu u direktnoj vezi sa pomenutim mehanizmima degradacije materijala zatvorene pore itekako imaju uticaj na mehaničke i fizičke osobine materijala, jer njihovo prisustvo smanjuje gustinu, jačinu, moduo elastičnosti i čvrstoću materijala. Kod opeke npr. struktura pora formira se tokom proizvodnje i zavisi od složene interakcije više faktora, uključujući mineraloški i hemijski sastav sirovina i uslove pečenja (maksimalna temperatura pečenja, vreme, atmosfera). Oblik pora, raspodela veličine i povezanost pora utiču na fizička svojstva opeke i najvažniji su parametri koji se trebaju procenjivati pri predviđanju dugotrajnosti građevinskih materijala. Budući da otvorene pore povezuju unutrašnje delove građevinskog materijala sa spoljnim okruženjem, određujući potencijal skladištenja i cirkulacije tečnosti i gasova (Coletti et al., 2016).



Slika 5.9 Izgled *Autopore IV 9500* uređaja za živinu porozimetriju (levo) penetrometar za živinu porozimetriju (desno).

Poroznost selektovanih građevinskih materijala je izvršena prema (ISO 15901-1, 2005) metodi u na Katedri za inženjerstvo materijala Tehnološkog fakulteta u Novom Sadu. Poroznost je određivana pomoću uređaja *AutoPore IV* živinim porozimetrom serije 9500, Slika 5.9, a parametri merenja zadavani softverom *Autopore IV*. Model 9500 ima mogućnost postizanja pritiska od 33 000 psia (228 MPa), pri čemu vrši analizu pora prečnika od 360 do 0,005 μm što ga čini pogodnim za merenje poroznosti u opsegu mezo i makropora. U zavisnosti od oblika materijala (praškasti ili čvrsti uzorci) i očekivane poroznosti koriste se staklene posude – penetrometri različitih veličina i oblika posudice (glave) i različitih prečnika kapilare (vrata), Slika

5.9. Vrat penetrometra je prevučen metalnom prevlakom pomoću koje se određuje zapremina utisnute žive – naime, zapremina utisnute žive se posredno određuje kapacitivnim detektorom koji na osnovu provodljivosti struje daje informaciju o procentu iskorišćene žive u vratu penetrometra.

Ovaj model uređaja poseduje dva „porta“ za analize pri niskom pritisku i jedan „port“ za analize pri visokom pritisku. Nakon odabira penetrometra i merenja mase uzorka, merenje poroznosti se sastoji iz dva dela utiskivanja žive na niskom pritisku u portu 1 ili 2, i utiskivanje žive na visokom pritisku, port 3, Slika 5.9.

Zapremina pora se izračunava na osnovu zapremine žive koja je preostala u vratu penetrometra nakon analize pri visokom pritisku. Kako pritisak raste, živa se utiskuje u pore uzorka, pri čemu napušta vrat penetrometra. Utiskivanje žive u pore različite veličine se događa na različitim pritiscima (što je viši pritisak, živa prodire u sve manje pore). Iz razloga što živa poseduje visok površinski napon i ne kvasi veliku većinu materijala, ugao kontakta i prečnik zakrivljenosti kapi žive se može iskoristiti da se izračuna prečnik pora u koje ona prodire pri datom pritisku.

Zapremina žive u vratu penetrometra se meri na osnovu električnog kapaciteta penetrometra. Kapacitet predstavlja količinu naelektrisanja uskladištenu po voltu primenjenog elektriciteta. Kapacitet penetrometra se menja sa dužinom vrata penetrometra ispunjenog živom.

Na početku merenja, kada je ceo penetrometar ispunjen živom, ona se prostire i po celoj dužini vrata penetrometra. Povećanje pritiska dovodi do toga da živa prodire u pore uzorka, s tim da se zapremina žive u vratu penetrometra smanjuje za zapreminu pora koje ona ispunjava. Ovo smanjenje zapremine žive u vratu penetrometra dovodi do smanjenja električnog kapaciteta penetrometra. Softverski program *AutoPore IV* preračunava merenje električnog kapaciteta u zapreminu žive koja se utiskuje u pore uzorka.

6 Procena radijacionog rizika od gama zračenja i radona iz građevinskih materijala

Izloženost ljudi prirodnim izvorima zračenja oduvek je postojala. Zemlju su uvek bombardovale čestice visoke energije koje potiču iz svemira i stvaraju sekundarne čestice u donjim slojevima atmosfere. Uz to, Zemljina kora sadrži određen nivo prirodne radioaktivnosti. Za većinu ljudi izloženost prirodnom pozadinskom zračenju najznačajniji je deo njihove ukupne izloženosti zračenju. Radon je obično najveći prirodni izvor zračenja koji doprinosi izlaganju javnosti, ponekad predstavlja polovinu ukupne izloženosti iz svih izvora (UNSCEAR, 2008).

Procena rizika se u osnovi odnosi na čoveka i njegovo zdravlje, a obrađuje procenu uticaja različitih supstanci na zdravstveno stanje jedinke. Rizik po ljudsko zdravlje se označava verovatnoćom koja opisuje stepen ugroženosti ljudskog zdravlja (Đarmati et al., 2008). Radijacioni rizik označava verovatnoću da jedna osoba zadobije radijacionu povredu (bolest) kao posledicu ozračenja, odnosno predstavlja odnos broja osoba sa pojavom štetnih efekata prema ukupnom broju osoba koje su ozračene jednakom dozom zračenja (Čonkić, 1997).

Procena rizika obično obuhvata izloženost različitim agensima tokom određenog vremena i analizu stepena negativnih uticaja po zdravlje, kao i procene mogućih posledica (Đarmati et al., 2008). Procena radijacionog rizika se vrši u cilju primene adekvatnih mera zaštite od zračenja, a sve zbog sprečavanja nestohastičkih efekata i svođenja na minimum stohastičkih efekata pri čemu

se primenjuje princip ALARA (*eng. As Low As Reasonably Achievable*). Ovaj princip podrazmeva svodjenje na minimum izloženosti zračenju koliko je to god moguće i održivo za ekonomske i druge faktore. S obzirom da nema doze zračenja koja se može označiti kao bezbedna ne može se smatrati da je neki deo životne sredine bezbedan ukoliko je nivo radioaktivnosti ispod zakonom propisane granice (Čonkić, 1997), što ukazuje na konstantnu prisutnost radijacionog rizika u većoj ili manjoj meri za svakog pojedinca. Iz ovog razloga je procena radijacionog rizika od korišćenja građevinskih materijala, kao i unutrašnjih koncentracija radona veoma važna čime se izloženost ljudi zračenju može optimizovati na prihvatljiv nivo, definisan zakonskim aktima i pravilnicima, kako u domaćem tako i evropskom u svetskom zakonodavstvu.

Svrha kontrole radioaktivnosti građevinskih materijala je ograničavanje izloženosti zračenju zbog mogućeg prisustva povećanog nivoa prirodnih radionuklida. Prosečno godišnje izlaganje ljudi prirodnom zračenju u zatvorenom prostoru (kućama i stanovima) je oko 7000 h, dok je izloženost zračenju iz građevinskih materijala korišćenih u drugim vrstama građevina, poput tunela, mostova itd., znatno kraća (Schroeyers, 2017).

Izvori spoljašnjeg zračenja su kosmičko i zemaljsko zračenje. Zemaljsko zračenje je u osnovi uzrokovano postojanjem radioaktivnih nizova uranijuma i torijuma i ^{40}K , tj. ono što se može sažeti kao NORM. Doprinos ukupnoj godišnjoj dozi zračenja daje gama zračenje iz zemlje, i građevinskih materijala. Zbog toga, doprinos dozi veoma zavisi od koncentracije radionuklida u njima (Schroeyers, 2017).

Osnovni principi koji se moraju uzeti pri proceni radijacionog rizika dati su u (EC, 1999) i zasnivaju se na činjenici da svaki građevinski materijal sadrži određenu dozu zračenja kojim pojedinac može biti izložen. Glavna svrha procene rizika se zasniva na određivanju godišnjih efektivnih doza koje moraju biti razumne i ukazivati na moguću potrebu za izuzimanjem pojedinih građevinskih materijala od korišćenja.

Procenjeno je da oko 65% stanovništva godišnje primi dozu između 1 mSv i 3 mSv, oko 25% prima doze manje od 1 mSv, dok su za 10% stanovništva godišnje doze iznad 3 mSv. Ako se uzme da je 50% primljene doze tokom godine od izloženosti radonu, procena radijacionog rizika od njegove izloženosti je veoma značajna, zbog uspostavljanja adekvatnih mera za smanjenje izloženosti (Antović and Antović, 2018).

Kontrole i ograničenja izloženosti profesionalnih lica koja rade sa izvorima jonizujućeg zračenja podrazumevaju adekvatnu procenu rizika koje trebaju da optimizuju izloženost na radnom mestu, uz preduzimanje adekvatnih zaštitnih mera. Načini izloženosti radnika u toku tehnoloških operacija i procesa koji uključuju prirodne radionuklide su obično spoljašnje gama zračenje i udisanje prašine (npr. keramička industrija). Odgovarajuće mere za smanjenje izloženosti mogu uključivati posebne uređaje za skladištenje materijala, ograničenje vremena izlaganja i kontrolu nivoa prašine u vazduhu, kao i nošenje zaštitne opreme. Radne aktivnosti sa materijalima koji sadrže NORM mogu stvoriti značajnu izloženost radnika udisanjem prašine i samog radona. Prema izveštaju UNSCEAR, 2008 smatra se da industrija NORM-a daje najveću izloženost radnika zračenju u odnosu na druge industrije (izloženost u cirkonijumskoj i keramičkoj industriji) (EC, 2002; UNSCEAR, 2008).

U izveštaju Evropske Komisije (EC, 2002) se naglašava da bi trebalo preduzeti neophodne mere opreza kako bi se izbegle sve nepotrebne izloženosti zračenju. Pored toga, potrebno je izvršiti procene doza za radnike za materijale sa kojima su u kontaktu, a naročito za one sa očekivano povećanim nivoom radioaktivnosti. Ako su procene stvarne doze manje od 1 mSv godišnje, nisu potrebne posebne mere opreza. Ako godišnje doze prelaze 1 mSv, obično se može primeniti uobičajena šema za kontrolu izloženosti. Ako doze prelaze 6 mSv, potrebno je prikladno definisati kontrolisano područje (EC, 2002).

U izveštaju Evropske Komisije “*Radiation protection 122 – Part 2*” iz 2001. godine preporučuje se održavanje nivoa koncentracije radona na radnim mestima u opsegu 500-1000 Bq m⁻³. Navedeni raspon koncentracija radonskog gasa je ekvivalentan rasponu godišnjih efektivnih doza od 3 do 6 mSv. Profesionalna izloženost radonu iznad akcionog nivoa je podložna stalnim kontrolama (EC, 2002). U direktivi Evropske Unije iz 2014. godine (EU, 2014) referentni nivoi za srednje godišnje koncentracije aktivnosti radona ni na radnim mestima ni u stambenom prostoru ne bi trebalo da prelaze 300 Bq m⁻³, što je u saglasnosti sa preporukama za izloženost u zatvorenom prostoru preporučenom od strane Svetske zdravstvene organizacije (WHO, 2009).

Treba napomenuti da stepen izloženosti zračenju iz građevinskih materijala ne zavisi samo od nivoa radioaktivnosti materijala, već i od bilo kakve hemijske ili fizičke obrade koja može povećati dostupnost materijala. Na primer, mlevenjem sirovina može se stvoriti prašina koja se može udisati, a radonu takođe može biti lakše da pobegne u vazduh na radnom mestu. Obrada materijala bogatih potomcima uranijuma ili torijuma na visokim temperaturama (npr. sagorevanje uglja na oko 800 °C) može obogatiti prašinu u vazduhu sa nekim radionuklidima uranijumove i torijumske serije (EC, 2002).

Ako se izloženost optimizuje na vrednosti ispod propisanih, kako za ljude tako i za profesionalno izložena lica, smatra se da ne postoji naročit radijacioni rizik od korišćenja ili pri radu sa takvim materijalima. Za ove potrebe kao metode skrininga i procene radijacionog rizika uspostavljene su adekvatne veličine (hazardni indeksi i doze zračenja) da uspostave kvantitativnu meru izloženosti celog tela pri unutrašnjem ili spoljašnjem izlaganju zračenju.

Za procenu radijacionog rizika od upotrebe građevinskih materijala poslednjih godina sve više se razvijaju tehnike Monte Karlo simulacija koje u mnogome mogu simulirati realne događaje i dati vrednosti koje se mogu upoređivati sa teorijskim procenama. Ovo u mnogome može pomoći sveobuhvatnosti procene radijacionog rizika, kao i njenoj preciznosti. U ovoj studiji, nakon izvršenih teorijskih proračuna godišnjih efektivnih doza dobijene vrednosti upoređivanje sa vrednostima koje su dobijene Monte Karlo pristupom procene rizika.

6.1 Hazard indeksi i doze zračenja

Procena radijacionog rizika od upotrebe građevinskih materijala najčešće se može izvršiti pomoću nekoliko usvojenih bezdimenzionih veličina tzv. “*hazard indeksa*” koji se u mnogim istraživanjima i direktivama koriste i reprezentuju stepen potencijalne radiološke opasnosti, odnosno izloženosti. Pored njih koriste se jačine apsorbovanih doza i godišnje efektivne doze koje reprezentuju spoljašnju izloženost gama zračenju kao i oni koji reprezentuju unutrašnju izloženost radonu (²²²Rn).

- Spoljašnji hazard indeksi i doze od izloženosti gama zračenju:

- gamma indeks ili indeks koncentracije aktivnosti (I_γ),
- radijumski ekvivalentni indeks aktivnosti (Ra_{eq}), – (eng. *radium equivalent activity index*),
- spoljašnji hazard indeks (H_{ex}) – (eng. *external hazard index*),
- jačina apsorbovane doze gama zračenja (D),
- godišnja efektivna doza od izloženosti gama zračenju (E),
- rizik od nastanka kancera tokom života ($ELCR$) – (eng. *excess lifetime cancer risk*).

- **Unutrašnji hazard indeksi i doze od izloženosti radonu::**

- alfa indeks (I_α) – (eng. *alpha index*),
- unutrašnji hazard indeks (H_{in}) – (eng. *internal hazard index*),
- alfa dozni ekvivalent (H_α) – (eng. *alpha dose equivalent*),
- godišnja efektivna doza od zlaganja radonu (D_{Rn}).

U daljem tekstu biće reči o svakom od navedenih hazard indeksa i doza zračenja kao i njihovim preporučenim i prosečnim vrednostima u Srbiji i svetu prema domaćoj i evropskoj zakonskoj regulativi za izloženst zračenju od građevinskih materijala.

6.1.1 Spoljašnji hazard indeksi

6.1.1.1 Gama indeks (I_γ)

Ispitivanja mogućnosti upotrebe građevinskih materijala u unutrašnjosti prostorija (enterijeru) u kojima borave ljudi vrši se pomoću tzv. gama indeksa (I_γ). Evropska Komisija je 1999. godine u svom izveštaju *Radiation protection-112* uvela gama indeks kao metod ispitivanja ispunjenosti doznih kriterijuma u opsegu od 0,3 mSv do 1 mSv godišnje, datih u Tabeli 6.1 za tipične vrste građevinskih materijala. Gama indeks se može odrediti za analizirani uzorak građevinskog materijala pomoću relacije (6.1) (EC, 1999):

$$I_\gamma = \frac{A_{Ra}}{300 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}} + \frac{A_{Th}}{200 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}} + \frac{A_K}{3000 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}} \leq 1 \quad (6.1)$$

gde su A_{Ra} , A_{Th} i A_K koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K date u Bq kg^{-1} izmerene za dati građevinski materijal, respektivno. Evropska Unija je 2014. godine usvojila direktivu u kojoj se gama indeks preporučuje kao alat za radiološku karakterizaciju građevinskih materijala, odnosno metod skrininga. Navodi se da vrednosti gama indeksa $I_\gamma \leq 1$ odgovara godišnja efektivna doza gama zračenja manja od 1 mSv godišnje (EU, 2014). Preporučena vrednost gama indeksa za građevinske materijale od strane UNSCEAR iz 2000. godine je takođe $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000).

Tabela 6.1 Vrednosti gama indeksa prema doznim kriterijumima za tipične građevinske materijale date u izveštaju Evropske Komisije iz 1999. godine (EC, 1999).

Dozni kriterijum	0,3 mSv y^{-1}	1 mSv y^{-1}
Masivni (<i>balk</i>) materijali, npr. beton	$I_\gamma \leq 0,5$	$I_\gamma \leq 1$
Površinski i drugi materijali sa ograničenom upotrebom: pločice, ploče itd.	$I_\gamma \leq 2$	$I_\gamma \leq 6$

U Srbiji se koristi ova preporuka koja je sadržana u okvirima “Pravilnika o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet” iz 2018. godine. Relacija (6.1) se primenjuje na građevinske materijale i sirovinske materijale koji se koriste za njihovu proizvodnju. U slučaju da vrednost gama indeksa za analizirani uzorak prelazi referentnu vrednost $I_\gamma \leq 1$ pristupa se proračunu jačine apsorbovane doze (D) i godišnje efektivne doze (E) zračenja radi utvrđivanja ispunjenosti doznog kriterijuma $E \leq 1 \text{ mSv } y^{-1}$. (Sl. Glasnik RS 36/18, 2018). U slučaju da je dobijena vrednost iznad ove granice takvom građevinskom materijalu se ne

preporučuje upotreba u unutrašnjosti prostorija jer može doprineti povećanju izloženosti ljudi gama zračenju na godišnjem nivou.

Prema Pravilniku u Srbiji iz 2018. godine (Sl. Glasnik RS 36/18, 2018) lista građevinskih materijala koji su obavezni za razmatranje ispunjenosti doznog kriterijuma su:

1. Materijali prirodnog porekla:
 - a. Aluminijski škriljci,
 - b. Građevinski materijali ili aditivi prirodnog vulkanskog porekla:
 - i. Granitoidi (granit, sijerit i ortognajs), porfiri, sedrapucolan, lava,
 - c. Materijali stvoreni u tehnološkim postupcima iz industrije:
 - i. Fosfogips, fosforna šljaka, leteći pepeo, kalajna i bakarna šljaka, crveni mulj (ostaci od proizvodnje aluminijuma), ostaci od proizvodnje čelika.

Prema *Pravilniku o kontroli radioaktivnosti robe prilikom uvoza, izvoza i tranzita* ("Sl. Glasnik RS 86/19, 2019) da bi se smanjila izloženost ljudi jonizujućem zračenju granit, porfir, basalt i pešćar za građevinarstvo, su materijali koji podležu dozimetrijskim i gama spektrometrijskim kontrolama prilikom uvoza u Srbiju, dok prema *Pravilniku o monitoringu radioaktivnosti* (Sl. Glasnik RS 97/11, 2011) nije definisana kontrola građevinskih materijala proizvedenih unutar Srbije.

6.1.1.2 Radijumski ekvivalentni indeks aktivnosti (Ra_{eq})

Prirodni radionuklidi ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K nisu ravnomerno raspoređeni u svim prirodnim materijalima i zato ne emituju jednaku dozu gama zračenja, čak i kada su prisutni u istim koncentracijama (Alali et al., 2018; Beretka and Mathew, 1985). Iz tog razloga uveden je radijumski ekvivalentni indeks aktivnosti (Ra_{eq}), koji se zasniva na činjenici da koncentracija aktivnosti 370 Bq kg^{-1} za ^{226}Ra , 259 Bq kg^{-1} za ^{232}Th i 4810 Bq kg^{-1} za ^{40}K daje jednaku vrednost doze gama zračenja. Radijumski ekvivalentni indeks aktivnosti (Ra_{eq}) može se izračunati korišćenjem relacije (6.2) (Beretka and Mathew, 1985):

$$Ra_{eq}(\text{Bq kg}^{-1}) = A_{\text{Ra}} + 1,43 \cdot A_{\text{Th}} + 0,077 \cdot A_{\text{K}} \quad (6.2)$$

gde su A_{Ra} , A_{Th} , i A_{K} izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za dati građevinski materijal. Da bi se osigurala godišnja efektivna doza gama zračenja ispod $1,5 \text{ mSv y}^{-1}$, preporučena vrednost radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti mora biti manja od 370 Bq kg^{-1} i ova vrednost je označena kao preporučena (NEA-OECD, 1979).

6.1.1.3 Spoljašnji hazard indeks (H_{ex})

Spoljašnji hazard indeks (*eng. external hazard index*) (H_{ex}) je definisan da proceni štetnost pri spoljašnjoj izloženosti gama zračenju od korišćenih građevinskih materijala (Alali et al. 2018), i koristan je za karakterizaciju materijala koji se koriste za izgradnju. Spoljašnji hazard indeks je definisan pod uslovom da koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K od 370 Bq kg^{-1} , 259 Bq kg^{-1} i 4810 Bq kg^{-1} proizvode jednaku dozu gama zračenja (Kobeissi et al., 2013; Al-Zahrani, 2017; Thabayneh, 2013). Spoljašnji hazard indeks (H_{ex}) se može izračunati pomoću relacije (6.3) (Beretka and Mathew, 1985):

$$H_{\text{ex}} = \frac{A_{\text{Ra}}}{370 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}} + \frac{A_{\text{Th}}}{259 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}} + \frac{A_{\text{K}}}{4810 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}} \leq 1 \quad (6.3)$$

gde su A_{Ra} , A_{Th} , i A_{K} izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za dati građevinski materijal. Preporučena vrednost spoljašnjeg hazard indeksa iznosi $H_{\text{ex}} \leq 1$ i odgovara vrednosti radiumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti $Ra_{\text{eq}} \leq 370 \text{ Bq kg}^{-1}$, što odgovara maksimalnoj godišnjoj efektivnoj dozi od 1,5 mSv (Alali et al., 2018; UNSCEAR, 2000; NEA-OECS, 1979).

6.1.1.4 Jačina apsorbovane doze (D)

Prema preporukama Evropske Komisije iz 1999. godine sadržane u publikaciji *Radiation protection-112* jačina apsorbovane doze (D) u centru sobe standardnih dimenzija, $4 \text{ m} \times 5 \text{ m} \times 2,8 \text{ m}$, izgrađena od datog građevinskog materijala može se proceniti iz relacije (6.4) (EC, 1999) i to za:

Mermer, granit, keramičke pločice i crep:

$$D(\text{nGy h}^{-1}) = 0,12 \cdot A_{\text{Ra}} + 0,14 \cdot A_{\text{Th}} + 0,0096 \cdot A_{\text{K}} \quad (6.4a)$$

Ciglu, siporeks blok, beton i malter:

$$D(\text{nGy h}^{-1}) = 0,92 \cdot A_{\text{Ra}} + 1,1 \cdot A_{\text{Th}} + 0,08 \cdot A_{\text{K}} \quad (6.4b)$$

gde su 0,12, 0,14; 0,0096; 0,92; 1,1 i 0,08 specifične jačine doza izražene u nGy h^{-1} po Bq kg^{-1} za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , a A_{Ra} , A_{Th} i A_{K} izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , respektivno. Vrednosti specifičnih jačina doza za pojedinačne grupe građevinskih materijala date su u Tabeli 6.2 (EC, 1999). Prosečna vrednost jačine apsorbovane doze za građevinske materijale u svetu iznosi 55 nGy h^{-1} (UNSCEAR, 2008).

6.1.1.5 Godišnja efektivna doza (E)

Na osnovu procenjenih vrednosti jačine apsorbovane doze (D – relacije (6.4)) mogu se odrediti godišnje efektivne doze (E) za ljude koji su izloženi gama zračenju iz građevinskih materijala u zatvorenom prostoru korišćenjem relacije (6.5a) (EC, 1999):

$$E = 0,7 (\text{Sv Gy}^{-1}) \times 7000 (\text{h}) \times D \quad (6.5a)$$

Dok se npr. izloženost profesionalnih lica u smislu godišnjih efektivnih doza u keramičkoj industriji pri radu sa sirovinskim materijalima (kaolin, zircon, feldspat, kvarc i dr.) može proceniti korišćenjem relacije (6.5b) (Todorović et al., 2017):

$$E = 0,7 (\text{Sv Gy}^{-1}) \times 800 (\text{h}) \times D \quad (6.5b)$$

gde je D jačina apsorbovane doze izražena u $\mu\text{Gy h}^{-1}$; $0,7 \text{ Sv Gy}^{-1}$ je dozni konverzioni faktor, 7000 h i 800 h je godišnje vreme ekspozicije pojedinca tokom perioda od jedne godine u

prostorijama za stanovanje i godišnje vreme provedeno pri radu sa datim građevinskim (sirovinskim) materijalom, respektivno (EC, 1999; Krstić et al., 2007; Todorović et al., 2017).

Vrednosti parametara za procenu jačine apsorbovane doze i godišnje efektivne doze zračenja prema preporukama Evropske Komisije za različite građevinske materijale date su u Tabeli 6.2. Povećani nivoi radioaktivnosti građevinskih materijala mogu uzrokovati godišnje efektivne doze od nekoliko mSv (EC, 1999). Prema Pravilniku Republike Srbije kao i Direktivi EURATOM, iz 2014. godine dozvoljen nivo godišnje efektivne doze koja potiče od gama zračenja iz građevinskih materijala ne uključujući spoljašnje zračenje na otvorenom prostoru za stanovništvo iznosi 1 mSv y^{-1} (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018), dok je prema (NEA-OECD, 1979) preporučena godišnja efektivna doza 1,5 mSv. Prema Pravilniku u Srbiji koji je usklađen sa Direktivom Evropske Unije, za profesionalno izložena lica dozvoljena godišnja efektivna doza iznosi 20 mSv ili 100 mSv za period od 5 godina, u uslov da ni u jednoj godini ta vrednost ne sme preći 20 mSv (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 86/11 i 50/18, 2018). Prosečna vrednost za građevinske materijale u svetu iznosi 0,460 mSv y^{-1} (UNSCEAR, 2000).

Tabela 6.2 Vrednosti parametara koji se koriste za procenu jačine apsorbovane doze i godišnje efektivne doze zračenja koja potiče od građevinskog materijala u zatvorenom prostoru (EC, 1999; Markkanen, 1995).

Dimenzije modela sobe	4 m × 5 m × 2,8 m		
Debljina i gustina građevinskog materijala	3 cm, 2600 kg m ⁻³ (za pločice i kamene obloge)		
Vreme godišnje izloženosti zračenju	7000h (80% godišnjeg vremena) za stambene objekte, 2000 h za poslovni prostor		
Konverzioni faktor	0,7 Sv Gy ⁻¹		
Background	50 nGy h ⁻¹		
	Specifična jačina doze, nGy h⁻¹ po Bq kg⁻¹		
Delovi prostorije koji doprinose dozi zračenja	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
Pločice ili kamene obloge na svim zidovima prostorije (debljina 3 cm, gustina 2600 kg m ⁻³)	0,12	0,14	0,0096
Pod, plafon i zidovi (sve strukture)	0,92	1,1	0,080
Pod i zidovi (drveni plafon)	0,67	0,78	0,057
Samo pod (drvena kuća, pod od betona)	0,24	0,28	0,020

Kao što se može videti, poluempirijske formule, koje se često koriste za procenu godišnjih efektivnih doza, obično sadrže odgovarajuće numeričke faktore, omogućavajući izračunavanje jačina apsorbovanih doza i godišnjih efektivnih doza zbog eksternog izlaganja gama zračenju iz građevinskog materijala koje se mogu izračunati isključivo merenjem koncentracije aktivnosti prirodnih radioizotopa unutar materijala. Međutim, pojednostavljeni pristup, pomoću kojeg su formule izvedene, može dovesti do niže (ili veće) procene godišnjih efektivnih doza, što rezultira neadekvatnom analizom potencijalnog rizika od zračenja ispitivanog građevinskog materijala. Autori Risica et al. (2001) analizirali su efekat položaja u kome se procenjuje doza (Smetsers and Tomas, 2019) i dimenzije prostorije, kao i debljinu i gustinu zidova, poda i plafona i prisustvo prozora i vrata. Nadalje, neki od autora izvršili su simulacije koristeći različite kompjuterske kodove kako bi dobili apsorbovane stope doze i uporedili ih sa izračunatim (Abbasi and Hassanzadeh, 2017; De Jong and Van Dijk, 2008; Discher et al., 2018). U ovoj studiji teorijski procenjene vrednosti za pojedine uzorke biće upoređivane sa onima procenjenim Monte Karlo pristupom, čime će se uočiti nedostaci teorijskog modela postavljenog za procenu.

6.1.1.6 Merenje jačine doze

Procena izloženosti zračenju iz građevinskog materijala ne može se zasnivati samo na poznatoj koncentraciji aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K . Merenje spoljašnje doze gama zračenja pomoću uobičajeno dostupnih merača (monitora zračenja-dozimetara) za ispitivanje zračenja može dati neku naznaku potrebe za daljim istraživanjima (Markkanen, 1995). Obično se na osnovu dozimetrijskih kontrola kao skrining metoda građevinski materijali upućuju na dalje gama spektrometrijske analize, gde se obično procenjuje gama indeks i godišnja efektivna doza. U ovoj studiji su određene jačine efektivnih doza pojedinačnih građevinskih materijala koji se koriste u Srbiji. Merenja su izvršena u kontaktnoj geometriji kalibrisanim monitorom zračenja Radiagem 2000, proizvođača CANBERRA (opseg merenja od $0,01 \mu\text{Sv h}^{-1}$ do 100mSv h^{-1} ; merna nesigurnost: $\pm 15\%$), kao i Exploranium GR-135 NaI(Tl) dozimetrom (Exploranium, GR-135, 2004) koji je kalibrisan u jedinicama nGy h^{-1} .

6.1.1.7 Rizik od nastanka kancera tokom života (ELCR)

Na osnovu dobijene vrednosti godišnje efektivne doze (E) može se proceniti rizik od nastanka kancera tokom života (eng. *excess lifetime cancer risk* – *ELCR*) korišćenjem relacije (6.6) (Kayakoku et al., 2016):

$$ELCR = E \times DL \times RF \quad (6.6)$$

gde su E , DL i RF : godišnja efektivna doza gama zračenja, prosečni životni vek čoveka (70 godina), i faktor rizika, izražen u Sv^{-1} , (fatalni rizik od raka po Sivert-u), respektivno. Za stohastičke efekte obično je uzeto da RF ima vrednost 0,05 za izloženost ljudi (ICRP, 1990). Prosečna vrednost rizika od nastanka kancera tokom života ($ELCR$) od izloženosti gama zračenju koje potiče iz građevinskih materijala iznosi $0,3 \times 10^{-3}$ (UNSCEAR, 2000).

6.1.2 Unurašnji hazard indeksi

6.1.2.1 Alfa indeks (I_α)

Alfa indeks (I_α) je jedan od nekoliko hazard indeksa koji se koriste za radiološku karakterizaciju viška alfa zračenja u prostoriji usled potencijalne opasnosti za udisanje radona nastalog iz građevinskih materijala korišćenih u prostoriji. Alfa indeks se može izračunati korišćenjem relacije (6.7) (Stoulos et al., 2003; Gupta and Chauhan, 2011; Medhat, 2009):

$$I_\alpha = \frac{A_{\text{Ra}}}{200 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}} \leq 1 \quad (6.7)$$

gde je A_{Ra} koncentracija aktivnosti ^{226}Ra data u Bq kg^{-1} . Preporučena vrednost alfa indeksa je $I_\alpha \leq 1$ (Joel et al., 2018). Ukoliko je koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u analiziranom građevinskom materijalu veća od 200 Bq kg^{-1} , može stvoriti koncentraciju radona u zatvorenom prostoru veću od 200 Bq m^{-3} , što je ICRP preporučila za akcioni nivo (ICRP, 1994).

6.1.2.2 Unutrašnji hazard indeks (H_{in})

Radon zajedno sa svojim potomcima može biti radiološki hazard po ljudsko zdravlje. Iz tog razloga se unutrašnja izloženost radonu i njegovim potomcima kvantitativno izražava pomoću unutrašnjeg hazard indeksa (H_{in}) (eng. *internal hazard index*) (Hassan et al., 2013; Qureshi et al., 2013). Ovaj kriterijum se primenjuje kada se sumnja na dvostruku opasnost od ^{226}Ra , kako u pogledu gama zračenja, tako i u pogledu „indoor“ radona (Qureshi et al., 2013). Unutrašnji hazard indeks (H_{in}) se može proceniti pomoću relacije (6.8) (Beretka and Mathew, 1985):

$$H_{in} = \frac{A_{\text{Ra}}}{185 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}} + \frac{A_{\text{Th}}}{259 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}} + \frac{A_{\text{K}}}{4810 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}} \leq 1 \quad (6.8)$$

gde su A_{Ra} , A_{Th} , i A_{K} izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za dati građevinski materijal. Za minimiziranje radijacione opasnosti po ljude, za pojedinačne građevinske materijale, unutrašnji hazard indeks mora da zadovolji uslov $H_{in} \leq 1$, što je označeno kao preporučena vrednost (Narloch et al., 2019).

6.1.2.3 Alfa dozni ekvivalent (H_{α})

U izveštaju Evropske Komisije iz 1990. godine preporučena je upotreba doznog kriterijuma da koncentraciji radona od 1 Bq m^{-3} odgovara efektivna doza od $0,05 \text{ mSv y}^{-1}$ (EC, 1990). Prema ovom kriterijumu, rasponu koncentracija ^{222}Rn od $100 - 300 \text{ Bq m}^{-3}$ kako preporučuje Svetska zdravstvena organizacija (WHO, 2009) odgovara raspon efektivnih doza od $5 - 15 \text{ mSv y}^{-1}$. Nivo alfa doze koja potiče od ^{222}Rn i njegovih produkata raspada iz građevinskog materijala može se procentiti korišćenjem relacije (6.9) (Bruzzi et al., 1992):

$$H_{\alpha} = 0,18 \times \varepsilon \times A_{\text{Ra}} + 0,45 \quad (6.9)$$

gde je H_{α} alfa dozni ekvivalent izražen u mSv y^{-1} ; ε je koeficijent emanacije ^{222}Rn iz datog građevinskog materijala i A_{Ra} je izmerena koncentracija aktivnosti ^{226}Ra uzražena u Bq kg^{-1} .

6.1.2.4 Godišnja efektivna doza (D_{Rn})

Godišnja efektivna doza usled izloženosti, odnosno udisanju unutrašnjeg radona, (D_{Rn} izražena u mSv y^{-1}) može se izračunati korišćenjem relacije (6.10) (UNSCEAR, 2000; Ravikumar and Somashekar, 2013; Janik et al., 2015):

$$D_{\text{Rn}} = C_{\text{Rn}} \times F \times T \times EEC \quad (6.10)$$

gde je C_{Rn} unutrašnja koncentracija radona u prostoriji od datog građevinskog materijala izražena u Bq m^{-3} ; F faktor ravnoteže (tipična vrednost 0,4 za „indoor“ radon); T godišnje vreme izloženosti radonu (80% godišnjeg vremena $\approx 7000 \text{ h}$); i EEC je preporučena vrednost za konvertovanje radonske ravnotežne ekvivalentne koncentracije u efektivnu dozu za čoveka (eng.

recommended value to convert radon equilibrium-equivalent concentration to population effective dose) i ta vrednost prema publikaciji ICRP-a iz 2017. godine za radon iznosi $6,7 \times 10^{-6}$ mSv h⁻¹ po Bq m⁻³ (ICRP, 2017).

6.2 Monte Karlo simulacije

Monte Karlo simulacije predstavljaju široku klasu računarskih algoritama koje su zasnovane na korišćenju slučajno biranih događaja za rešavanje složenih problema i zadataka koji se susreću u fizici, matematici i drugim naukama, što ukazuje na njihovu široku primenu.

Poslednjih godina razvijeno je dosta različitih Monte Karlo kodova: GEANT, MCNPX, FLUKA, PHITS, MARS. Programski paketi kao što je GEANT, ima širok spektar alata koji mogu služiti za rešavanje praktičnih problema. GEANT4 je savremeni softverski paket implementiran u C++ program koji koristi napredne softverske tehnike. GEANT4 softverski paket baziran na Monte Karlo simulaciji kretanja fotona i čestica i njihove interakcije sa odgovarajućim materijalom, sastavljen je od veoma preciznih alata za simuliranje realnih događaja. Procesi simulacije uključuju neke od osnovnih koraka: postavljanje geometrije, postavljanje detekcionog sistema, postavljanje sastava materijala iz kojeg se emituje fotonsko/čestično zračenje, čestice od interesa, generisanje primarnih događaja, praćenje kretanja čestica ili fotona, vizuelizacija detektora i putanja čestica, analiza simulisanih rezultata i dr.

U ovom istraživanju GEANT kod je predstavljao osnovu za simulacije apsorbovanih doza gama zračenja od pojedinih građevinskih materijala. Zadavaljem detekcionog sistema (vodenog cilinda) u prostoriji standardnih dimenzija (4 m × 5 m × 2,8 m), posmatran je doprinos apsorbovanoj dozi gama zračenja iz konkretnog građevinskog materijala uzimajući dodatne efekte za interakciju u obzir. Dobijene simulirane vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja su upoređivane sa vrednostima dobijenih u teorijskim proračunima prema relacijama (6.4) gde su uočeni nedostaci i predložene korekcije teorijskih modela.

2 *EKSPERIMENTALNI DEO*

7 Prikupljanje i priprema uzoraka

U ovoj doktorskoj disertaciji sa aspekta radiološke i strukturne karakterizacije analizirano je više grupa građevinskih materijala kao i sirovina koje se koriste za njihovu proizvodnju, ukupno 358 uzoraka različitih vrsta građevinskih materijala. Od finalnih građevinskih materijala koji se koriste u građevinstvu analizirani su sledeći uzorci: granit, keramičke pločice, cigla, crep, malter, siporeks, beton, opeka, kao i sirovine za njihovu proizvodnju: cement, pepeo, pesak, šljunak, gips, fosfogips, kaolin, glina kvarcni pesak, cirkon i feldspat.

U narednim poglavljima biće razmatrane radiološke i strukturne karakteristike građevinskih materijala i njihovih sirovina koje mogu sadržati povećan nivo radioaktivnosti (poglavlje 8). U ovu grupu svrstani su: graniti, fosfogips i sirovine za proizvodnju keramičkih pločica (cirkonijumski minerali, kaolin, feldspati i kvarcni pesak). U drugu grupu svrstane su keramičke pločice i sirovine za proizvodnju tipičnih građevinskih materijala i građevinski materijali opšte upotrebe (konstrukcioni materijali): pesak, šljunak, cement, pepeo, građevinski lepak, opeka, beton, malter i siporeks (poglavlja 8.4 i 9). Za većinu ispitivanih uzoraka izvršena je detaljna analiza nivoa radioaktivnosti i sprovedena je procena radijacionog rizika za ljude i profesionalna lica u zavisnosti o kom materijalu je reč.

Nakon izvršene detaljne analize radioaktivnosti svih uzoraka građevinskih materijala, biva izvršeno merenje ekshalacije radona iz selektovanih uzoraka, nakon čega je izvršena procena njihovog doprinosa ukupnoj koncentraciji radona u zatvorenom prostoru u zavisnosti od provetrenosti same prostorije.

Na uzorcima fosfogipsa sa višim sadržajem ^{226}Ra bivaju sprovedena istraživanja uticaja zapremine mernih komora u kojima se meri ekshalacija radona, na efekte curenja i povratne difuzije koji mogu dovesti do varijacija vrednosti emanacionog koeficijenta.

Ispitivane su i mogućnosti upotrebe fosfogipsa u izradi opeke sa različitim udelom u uzorcima. Nakon pripremljenih uzoraka izvršeno je merenje radioaktivnosti, merenje ekshalacije radona, kao i hemijska i strukturna karakterizacija dobijenih uzoraka. Izvršena je takođe i adekvatna procena radijacionog rizika za ljude koji bi potencijalno boravili u prostoriji koja je izgrađena od ovakvih materijala.

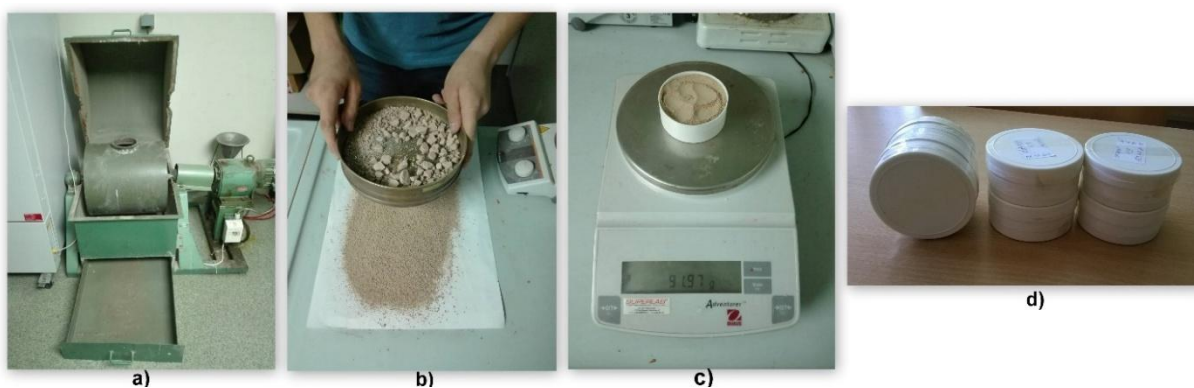
Uz pomoć Monte Karlo simulacija izvršena je procena jačina apsorbovanih doza zračenja kod uzoraka granita i opeke sa fosfogipsom gde su na osnovu dobijenih rezultata uočeni nedostaci teorijskih modela za procenu ove veličine.

Na kraju, selektovano je 12 tipičnih uzoraka koji se obično koriste u Srbiji za oblaganje podnih površina, gde je ispitivan uticaj poroznosti materijala na emanaciju radona iz analiziranih uzoraka uz hemijsku i strukturnu karakterizaciju tih uzoraka.

Uzorci granita, cirkonijumskih minerala kao i drugih sirovinskih materijala (gipsa, kvarcnog peska, kaolina i feldspata) koji se koriste u Srbiji su pribavljeni prilikom uvoza u Republiku Srbiju, prilikom vršenja dozimetrijskih kontrola na graničnim prelazima u periodu mart 2018 – jun 2019. Ostali uzorci građevinskih materijala su pribavljeni iz lokalnih građevinskih firmi, kao i od samih proizvođača građevinskih materijala. Veliki broj uzoraka keramičkih pločica je pribavljen direktno iz proizvodnje jedne od najvećih srpskih fabrika keramičkih pločica “Zorka Keramika”. Uzorci, građevinske opeke (građevinskih blokova i fasadne cigle) kao i same opekarske gline pribavljeni su iz proizvodnog pogona firme “Zorka Opeka “ iz Donjeg Crniljeva, Koceljeva.

Radiološka karakterizacija analiziranih uzoraka ispitivana je u smislu koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K metodom gama spektrometrije, kao i emanacije odnosno ekshalacije radona korišćenjem aktivnih mernih uređaja opisanih u uvodnom delu.

Za merenje radioaktivnosti, priprema uzoraka je sprovedena na sledeći način. Svi uzorci su sušeni 8 – 10 h na temperaturi od 105 – 110 °C. Pre gama spektrometrijskih merenja uzorci keramičkih pločica, granita, mermera, betona, teraco pločica, maltera, cigle, siporeksa i crepa su usitnjeni i samleveni kugličnim mlinom⁵, a potom propušteni kroz sito granulacije 1,6 mm (Slika 7.1). Tako da propuštene čestice imaju veličinu $\leq 1,6$ mm. Uzorci opekarske gline su sušeni i mleveni u avanu, Slika 8.20. Uzorci cirkonijumskih minerala, su već bili u obliku finog praha, jer su takvi dostavljeni za analize. Uzorci kaolina, feldspata i kvarcnog peska sa veličinom frakcija ≤ 2 mm korišćeni su bez prethodne pripreme u pogledu mlevenja. Uzorcima fosfogipsa su uzeti sa odlagališta jedne od hemijskih industrija u Srbiji. Izgled odlagališta kao i jednog od uzoraka fosfogipsa dati su na Slici 8.12. Uzorci fosfogipsa su najpre sprášeni u porcelanskom avanu, a kasnije propušteni kroz sito granulacije 0,5 mm. Za praćenje distribucije radionuklida u različitim frakcijama samleven fosfogips je propuštan kroz sistem sita od 0,063 mm do 2 mm. Korišćeni uzorci prirodnog gipsa su uzeti iz okolnih marketa i bili su već u obliku finog praha, a poreklom su iz Severne Makedonije i Bosne i Hercegovine.



Slika 7.1 (a) kuglični mlin koji je korišćen za pripremu uzoraka, (b) propuštanje samlevenog uzorka (keramičke pločice na slici) kroz sito granulacije 1,6 mm, (c) razmeravanje uzorka, (d) finalno pripremljeni uzorci za gama spektrometrijsko merenje u nosačima uzoraka.

Nakon mlevenja i prosejavanja svi analizirani uzorci su prebačeni u nosače uzoraka (cilindrične posude dimenzija 67 mm u prečniku i 62 mm visine) koji su potom zapečaćeni lepljenjem spojeva cilindrične posude teflon i PVC trakom da bi se sprečio izlazak radona iz posude. Tipična težina uzorka granita, mermera i keramičkih pločica je oko 300 g, uzorka cirkona oko 300 – 400 g, dok je težina uzorka gipsa i fosfogipsa iznosila između 250 i 300 g. Tipične težine ostalih uzoraka su bile u proseku oko 300 g.

Uzorci za gama spektrometrijska merenja su uzimani i analizirani IAEA TRS 295 metodom (odeljak 5), (IAEA TRS 295, 1989). Nakon ovako pripremljenih i upakovanih uzoraka merenja su izvršena nakon 40 dana od dana pripreme pošto je bila uspostavljena sekularna radioaktivna ravnoteža između ^{226}Ra i ^{222}Rn (oko 10 perioda poluraspada ^{222}Rn), posle čega su vršena gamaspektrometrijska merenja (ovo je važno za sve analizirane uzorke). Prvi uzorci su

⁵Mlevenje uzoraka građevinskog materijala je vršeno u Laboratoriji za pripremu sirovina, Katedre za inženjerstvo materijala na Tehnološkom fakultetu Univerziteta u Novom Sadu i Laboratorijama za fiziku i hemiju na Odseku za medicinske i poslovno-tehnološke studije Akademije strukovnih studija Šabac.

pripremljeni u avgustu 2018., a prva merenja su vršena od 10. oktobra 2018. Merenja radioaktivnosti svih uzoraka metodom gama spektrometrije su vršena na Katedri za nuklearnu fiziku na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu.

Nakon gama spektrometrijskih merenja uzorci su dodatno sprašeni u avanu do finog praha, granulacije < 0,25 mm, i kao takvi korišćeni za rendgensku strukturnu analizu (XRD). Merenja XRD analize su započeta 16. novembra 2018. a završena 15. decembra 2018. Merenja su izvršena na Departmanu za fiziku, Prirodno-matematičkog fakulteta, Univerziteta u Novom Sadu.

Za XRF hemijske analize uzorci su korišćeni bez prethodne pripreme. Za merenje poroznosti metodom živine porozimetrije uzorci su usitnjeni na manje komadiće od kojih je odabran po jedan adekvatan uzorak koji je sušen 45 min na temperaturi od 105 °C kako bi se eliminisao uticaj vlage na merenje. XRF merenja kao i merenja poroznosti materijala sprovedena su na Katedri na inženjerstvo materijala Tehnološkog fakulteta, Univerziteta u Novom Sadu. XRF merenja su sprovedena u novembru i decembru 2018. godine, a merenja poroznosti uzoraka u septembru i oktobru 2019. godine.

Svi ostali selektovani uzorci korišćeni za merenje ekshalacije radona u različitim mernim komorama aktivnim mernim uređajima su takođe sušeni na temperaturi od 105 °C kako bi se eliminisao uticaj vlage na merenje. Merenja ekshalacije (emanacije) radona sprovedena su u periodu od marta 2019. do maja 2020. Merenja su sprovedena na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta, Laboratoriji za nuklearnu i plazma fiziku Instituta za nuklearne nauke Vinča i Odjelu za fiziku, Sveučilišta u Osijeku, Hrvatska.

8 *Sirovine i građevinski materijali sa povećanim nivoom radioaktivnosti*

8.1 *Granit*

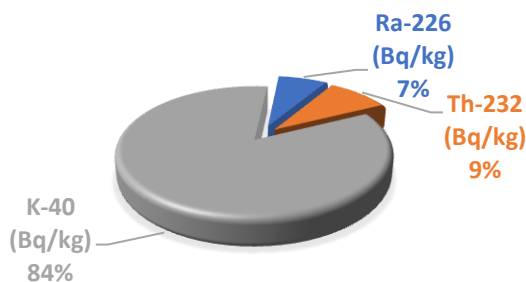
Granit je prema svom poreklu magmatska stena, široko rasprostranjena u Zemljinoj kori. Tipični mineraloški sastav granita uključuje kvarc, plagioklazu, K-feldspat, muskovit, biotit, granat i turmalin. Obično sadrži oko 70% silicijuma i relativno visok sadržaj oksida natrijuma i kalijuma od 5-12 % dok je sadržaj magnezijumovog oksiga manji od 1% (Anjos et al., 2005; Rafique and Rathore, 2013). Tipična gustina granitnih stena je oko 2600 kg m⁻³.

Granit se intenzivno koristi kao građevinski materijal u visokoj gradnji. U enterijeru se koriste granitne ploče za oblaganje podnih i zidnih površina, kako u Srbiji tako i u drugim zemljama u svetu. Ovaj materijal može da sadrži povećane koncentracije aktivnosti radioizotopa ⁴⁰K, kao i radioizotopa koji pripadaju seriji urana i torijuma. Zbog svoje velike tvrdoće i privlačnih boja ova stena se široko koristi kao ukrasni kamen u zgradama. Upotreba takvih ukrasnih granita kao građevinskog materijala može dovesti do dugoročnog izlaganja stanovništva štetnom dejstvu jonizujućeg zračenja (Llope, 2011; Rafique and Rathore, 2013).

Izmerene koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K u 40 uzoraka granita koji se koriste u Srbiji, sa nazivima uzoraka i zemljama uvoza, prikazane su u Tabeli 8.1, a njihovo poređenje za vrednostima izmerenih koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K u svetu dato je u Tabeli 8.4.

Vrednosti koncentracija aktivnosti za ²²⁶Ra kreću se od 23±4 Bq kg⁻¹ (uzorak broj 4 iz Južne Afrike) do 280±40 Bq kg⁻¹ (uzorak broj 38 iz EU). Vrednosti koncentracija aktivnosti ²³²Th kreću se od 77±4 (kod uzoraka broj 29 iz Hrvatske) do 426±19 Bq kg⁻¹ kod uzorka broj 7 iz Italije.

Izmerene koncentracije aktivnosti za ^{40}K kreću se u intervalu od $550\pm 40\text{ Bq kg}^{-1}$ kod uzorka broj 27 iz Kine do $2240\pm 120\text{ Bq kg}^{-1}$ kod uzorka broj 11 iz Italije. Ove vrednosti su uporedive sa rezultatima za granite prikazane u radovima autora (Stoulos, et al., 2003; Alali et al., 2018; Anjos et al., 2011; Pantelić et al., 2014a; Righi and Bruzzi, 2006), datim u Tabeli 8.4. Srednje vrednosti koncentracija aktivnosti, za 40 uzoraka iznose: $107\pm 9\text{ Bq kg}^{-1}$ za ^{226}Ra , $132\pm 10\text{ Bq kg}^{-1}$ za ^{232}Th i $1276\pm 50\text{ Bq kg}^{-1}$ za ^{40}K (srednja vrednost \pm standardna devijacija).



Slika 8.1 Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u prosečnoj koncentraciji aktivnosti za 40 uzoraka granita.

Na Slici 8.1 prikazana je relativna zastupljenost koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u odnosu na prosečne koncentracije aktivnosti za uzorke granita. Dobijeno je da je relativan doprinos koncentracije aktivnosti 7% za ^{226}Ra , 9% za ^{232}Th i 84% za ^{40}K . Svetski proseci koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K dati u referenci (UNSCERAR, 1993) iznose 50 Bq kg^{-1} za ^{226}Ra , 50 Bq kg^{-1} za ^{232}Th i 500 Bq kg^{-1} za ^{40}K . Vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , dobijene u ovom radu, veće su 2,13 do 2,55 puta od svetskog proseka, Tabela 8.1. Na Slici 8.2 su prikazane korelacije između izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{40}K i ^{232}Th , koje ukazuje da između njih nisu uočene značajne korelacije.

Izračunate vrednosti spoljašnjih i unutrašnjih hazard indeksa i apsorbovane doze zračenja prikazani su u Tabelama 8.2 i 8.3, a njihovo poređenje sa vrednostima za granite u svetu dato je u Tabeli 8.4. Vrednosti gama indeksa procenjenih relacijom (6.1) za 40 uzoraka granita kreću se između $1,05\pm 0,06$ (uzorak broj 5, Italija) i $2,5\pm 0,1$ (uzorak broj 7, Italija). Gama indeksi za svih 40 uzoraka granita prelaze dozvoljenu vrednost ($I_\gamma \leq 1$) definisanu u (UNSCEAR, 2000). Prosečna vrednost gama indeksa prelazi graničnu vrednost i iznosi $1,44\pm 0,05$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima u radovima autora (Aykamis, et al., 2013; Righi and Bruzzi, 2006; Thabayneh, 2013), datim u Tabeli 8.4.

Izračunate vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}) pomoću relacije (6.6) kreću se u intervalu od $276\pm 20\text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 5 iz Italije) do $713\pm 28\text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 7 iz Italije). 35% uzoraka granita prelazi preporučenu vrednost za radijumski ekvivalentni indeks aktivnosti od 370 Bq kg^{-1} (NEA-OECD, 1979). Prosečna vrednost radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti prelazi preporučenu vrednost i iznosi 393 ± 15 (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima u radovima autora (Alali et al., 2018; Pantelić et al., 2014a; Thabayneh, 2013), datim u Tabeli 8.4. Na Slici 8.3 prikazana je korelacija između radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti i koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K . Može se uočiti da je najveći korelacioni faktor dala zavisnost između Ra_{eq} i koncentracije aktivnosti ^{232}Th ($R^2=0,63$), dok između ostale dve koncentracije aktivnosti nije uočena značajna korelacija.

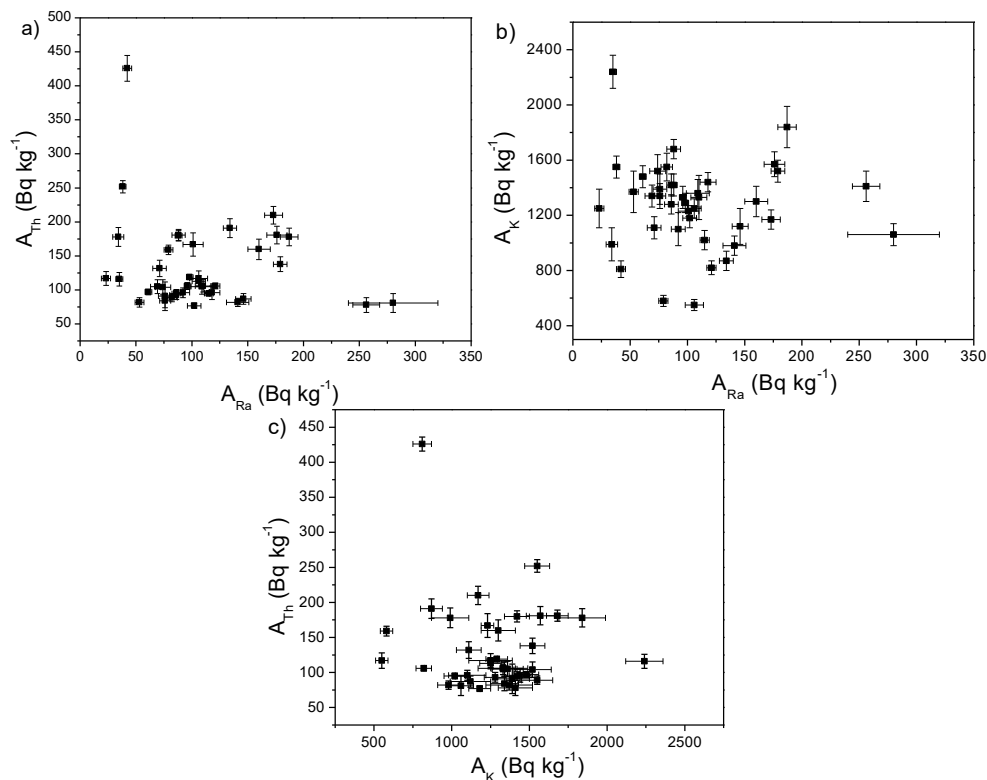
Izračunate vrednosti za spoljašnji hazard indeks (H_{ex}) pomoću relacije (6.3) kreću se u intervalu od $0,74\pm 0,04$ za uzorak broj 5 iz Italije do $1,93\pm 0,08$ za uzorak broj 7 iz Italije. 35%

uzoraka granita prelazi preporučenu granicu za ($H_{ex} \leq 1$) datu u (Alali et al., 2018). Prosečna vrednost spoljašnjeg hazard indeksa (srednja vrednost \pm standardna devijacija) prelazi graničnu vrednosti i iznosi $1,06 \pm 0,04$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima u radovima autora (Alali et al., 2018; Kobeissi et al., 2013; Pantelić et al., 2014a; Thabayneh, 2013), datim u Tabeli 8.4.

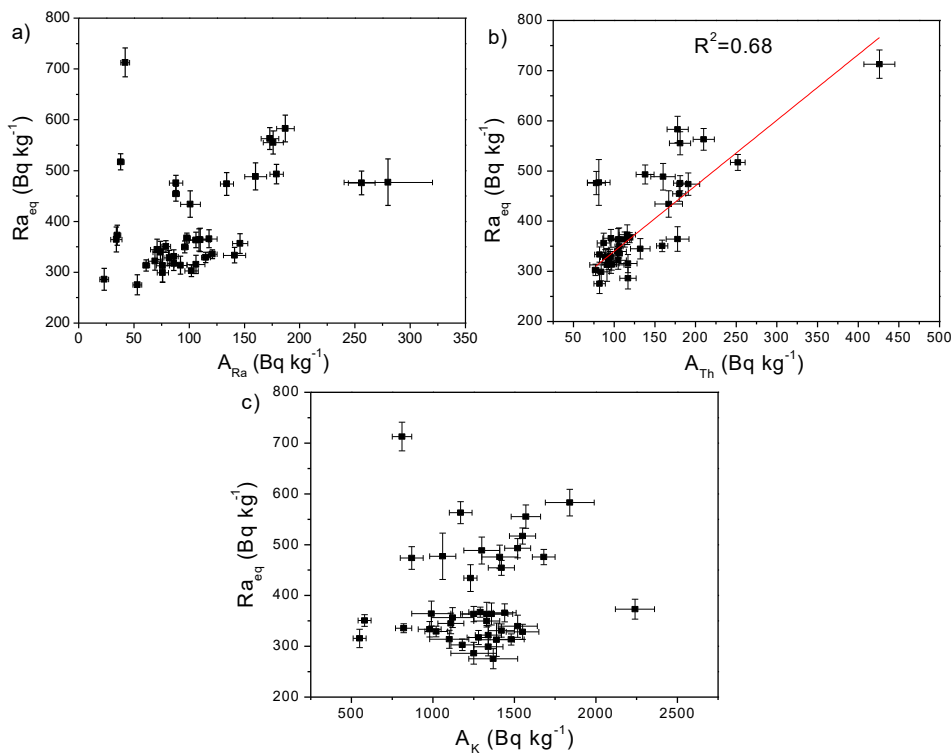
Tabela 8.1 Lista analiziranih uzoraka granita sa zemljama porekla i izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 40 uzoraka granita koji se koriste u građevinarstvu u Srbiji.

Broj uzorka	Zemlja porekla	Naziv uzorka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})		
			^{226}Ra	^{232}Th (Bq kg^{-1})	^{40}K (Bq kg^{-1})
1	Italija	Rosa Porrino	86 \pm 6	93 \pm 7	1280 \pm 70
2	Italija	Processed granite slabs	92 \pm 6	96 \pm 7	1100 \pm 120
3	Italija	Granite block	110 \pm 7	106 \pm 9	1330 \pm 160
4	Južna Afrika	Granite block	23 \pm 4	117 \pm 10	1250 \pm 140
5	Italija	Granite	53 \pm 4	82 \pm 7	1370 \pm 150
6	Italija	Granite plate	86 \pm 4	95 \pm 6	1420 \pm 80
7	Italija	Multicolor Red	42 \pm 4	426 \pm 19	810 \pm 60
8	Kina	New Bianco Sardo	179 \pm 6	138 \pm 11	1520 \pm 80
9	Italija	Granite plate	88 \pm 3	180 \pm 8	1420 \pm 80
10	Kina	Granite	98 \pm 3	119 \pm 4	1290 \pm 70
11	Italija	Verde Smeraldo Butterfly	35 \pm 3	116 \pm 10	2240 \pm 120
12	Italija	Copenhagen granite	82 \pm 5	89 \pm 6	1550 \pm 100
13	Južna Afrika	African Red Dark	115 \pm 4	95 \pm 4	1020 \pm 70
14	Italija	Moss Green	61 \pm 3	97 \pm 4	1480 \pm 80
15	Kina	G603	96 \pm 3	106 \pm 5	1330 \pm 80
16	Italija	Nero Impala Fuoco	121 \pm 4	106 \pm 4	820 \pm 50
17	Kina	Granite plate	141 \pm 10	82 \pm 6	980 \pm 70
18	Italija	Rosso Vanga	160 \pm 10	160 \pm 15	1300 \pm 110
19	Italija	Jurapana Colombo	176 \pm 9	181 \pm 13	1570 \pm 90
20	Italija	Rosa Porino	76 \pm 6	91 \pm 21	1390 \pm 110
21	Norveška	Lundhs Emerald Pearl	76 \pm 5	84 \pm 10	1340 \pm 90
22	Kina	G603	74 \pm 7	104 \pm 11	1520 \pm 120
23	Kina	G603	109 \pm 10	105 \pm 11	1360 \pm 100
24	Kina	G603	106 \pm 6	113 \pm 8	1250 \pm 70
25	Italija	G603	118 \pm 7	96 \pm 10	1440 \pm 70
26	Italija	Bianco Cristal	146 \pm 7	87 \pm 8	1120 \pm 130
27	Kina	Granite plate	106 \pm 8	117 \pm 11	550 \pm 40
28	Italija	Granite plate	88 \pm 6	181 \pm 8	1680 \pm 70
29	Hrvatska	New Kristal	102 \pm 6	77 \pm 4	1180 \pm 70
30	Kina	G603	79 \pm 4	159 \pm 7	580 \pm 40
31	Kina	G603	69 \pm 6	105 \pm 10	1340 \pm 80
32	Italija	Super Celina Grey	38 \pm 3	252 \pm 9	1550 \pm 80
33	Indija	Vyara	173 \pm 8	210 \pm 13	1170 \pm 70
34	Italija	Cristal Azul	134 \pm 6	191 \pm 14	870 \pm 70
35	Južna Afrika	African Red	71 \pm 6	132 \pm 12	1110 \pm 80
36	Italija	Celina Grey	187 \pm 8	178 \pm 13	1840 \pm 150
37	Indija	Multicolor Red	34 \pm 5	178 \pm 14	990 \pm 120
38	EU	Granit Rosa Por	280 \pm 40	81 \pm 14	1060 \pm 80
39	Brazil	Granit Summer	256 \pm 12	78 \pm 11	1410 \pm 110
40	Italija	Granit S Tropez	101 \pm 9	167 \pm 17	1230 \pm 40
1		Opseg	23-280	77-426	550-2240
2		Prosek \pm SD	107 \pm 9	132 \pm 10	1276 \pm 50
3		Prosek u svetu	50 ^a	50 ^a	500 ^a
Odnos 2/3			2.14	2.64	2.55

^a prosečna vrednost data u (UNSCEAR, 1993).



Slika 8.2 Korelacije između koncentracija aktivnosti ^{232}Th i ^{226}Ra , ^{40}K i ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 40 uzoraka granita koji se koriste u građevinarstvu u Srbiji.



Slika 8.3 Korelacije između Ra_{eq} i koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 40 uzoraka granita iz Tabele 8.1.

Tabela 8.2 Vrednosti spoljašnjih hazard indeksa procenjeni za 40 uzoraka granita koji se koriste u građevinarstvu u Srbiji.

Broj uzorka	Spoljašnji hazard indeksi		
	I_γ	Ra_{eq} (Bq kg ⁻¹)	H_{ex}
1	1,18 ± 0,05	317 ± 14	0,86 ± 0,03
2	1,15 ± 0,06	314 ± 18	0,85 ± 0,04
3	1,34 ± 0,07	364 ± 23	0,98 ± 0,05
4	1,07 ± 0,07	286 ± 21	0,77 ± 0,05
5	1,05 ± 0,06	276 ± 20	0,74 ± 0,04
6	1,24 ± 0,04	331 ± 13	0,89 ± 0,03
7	2,5 ± 0,1	713 ± 28	1,93 ± 0,08
8	1,79 ± 0,06	493 ± 19	1,33 ± 0,05
9	1,67 ± 0,05	454 ± 15	1,23 ± 0,04
10	1,35 ± 0,03	367 ± 10	0,99 ± 0,02
11	1,45 ± 0,06	373 ± 20	1,01 ± 0,05
12	1,24 ± 0,05	328 ± 15	0,89 ± 0,03
13	1,20 ± 0,03	329 ± 10	0,89 ± 0,02
14	1,18 ± 0,03	313 ± 11	0,85 ± 0,02
15	1,29 ± 0,04	350 ± 12	0,95 ± 0,03
16	1,21 ± 0,03	336 ± 9	0,91 ± 0,02
17	1,21 ± 0,05	334 ± 15	0,90 ± 0,04
18	1,77 ± 0,09	489 ± 27	1,32 ± 0,07
19	2,02 ± 0,08	555 ± 23	1,50 ± 0,06
20	1,2 ± 0,1	313 ± 33	0,85 ± 0,09
21	1,12 ± 0,06	299 ± 18	0,81 ± 0,04
22	1,27 ± 0,07	339 ± 22	0,92 ± 0,05
23	1,34 ± 0,07	364 ± 22	0,98 ± 0,05
24	1,34 ± 0,05	364 ± 15	0,98 ± 0,04
25	1,35 ± 0,06	366 ± 18	0,99 ± 0,05
26	1,30 ± 0,06	356 ± 20	0,96 ± 0,05
27	1,12 ± 0,06	315 ± 18	0,85 ± 0,05
28	1,76 ± 0,05	476 ± 15	1,29 ± 0,04
29	1,12 ± 0,04	303 ± 11	0,82 ± 0,03
30	1,25 ± 0,04	351 ± 12	0,95 ± 0,03
31	1,20 ± 0,06	322 ± 18	0,87 ± 0,05
32	1,90 ± 0,05	517 ± 16	1,40 ± 0,04
33	2,02 ± 0,07	563 ± 22	1,52 ± 0,06
34	1,7 ± 0,1	474 ± 22	1,28 ± 0,06
35	1,27 ± 0,07	345 ± 20	0,93 ± 0,05
36	2,13 ± 0,09	583 ± 26	1,58 ± 0,06
37	1,33 ± 0,08	364 ± 25	0,98 ± 0,06
38	1,69 ± 0,15	477 ± 46	1,29 ± 0,12
39	1,71 ± 0,08	476 ± 23	1,29 ± 0,06
40	1,6 ± 0,1	434 ± 26	1,17 ± 0,07
Opseg	1,1-2,5	276-713	0,74-1,93
Prosek ± SD	1,44 ± 0,05	393 ± 15	1,06 ± 0,04
Preporučena vrednost/prosek u svetu	≤1 ^a	370 ^b	≤1 ^c

^aPreporučena vrednost data u Ref. (UNSCEAR, 2000),^bPreporučena vrednost data u Ref. (NEA-OECD, 1979),^cPreporučena vrednost data u Ref. (Narloch et al., 2019).

Tabela 8.3 Vrednosti unutrašnjih hazard indeksa, jačina apsorbiranih doza i brzina površinske ekshalacije radona procenjene za 40 uzoraka granita koji se koriste u građevinarstvu u Srbiji.

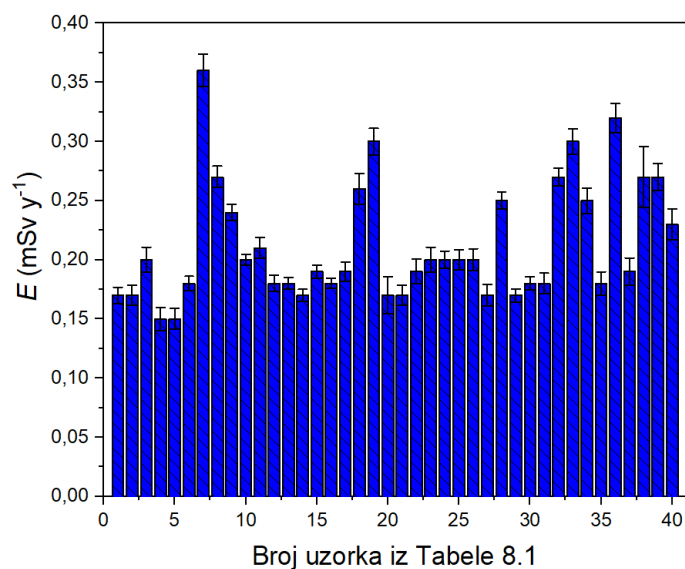
Broj uzorka	Unutrašnji hazard indeksi		D (nGy h ⁻¹)	E _s (Bq m ⁻² h ⁻¹)
	I _α	H _{in}		
1	0,43 ± 0,03	1,09 ± 0,04	35,6 ± 1,4	11,5 ± 0,8
2	0,46 ± 0,03	1,10 ± 0,05	35,0 ± 1,7	12,3 ± 0,8
3	0,55 ± 0,04	1,28 ± 0,06	40,8 ± 2,2	14,7 ± 0,9
4	0,12 ± 0,02	0,84 ± 0,05	31 ± 2	3,1 ± 0,5
5	0,27 ± 0,02	0,89 ± 0,05	30,9 ± 1,8	7,1 ± 0,5
6	0,43 ± 0,02	1,13 ± 0,04	37,3 ± 1,2	11,5 ± 0,5
7	0,21 ± 0,02	2,04 ± 0,08	72,5 ± 2,8	5,6 ± 0,5
8	0,90 ± 0,03	1,82 ± 0,06	55,4 ± 1,9	23,9 ± 0,8
9	0,44 ± 0,02	1,47 ± 0,04	49,4 ± 1,4	11,7 ± 0,4
10	0,49 ± 0,02	1,26 ± 0,03	41 ± 1	13,1 ± 0,4
11	0,18 ± 0,02	1,10 ± 0,05	41,9 ± 1,9	4,7 ± 0,4
12	0,41 ± 0,03	1,11 ± 0,04	37,2 ± 1,4	10,9 ± 0,7
13	0,58 ± 0,02	1,20 ± 0,03	36,9 ± 1,0	15,3 ± 0,5
14	0,31 ± 0,02	1,01 ± 0,03	35 ± 1	8,1 ± 0,4
15	0,48 ± 0,02	1,20 ± 0,03	39,1 ± 1,1	12,8 ± 0,4
16	0,61 ± 0,02	1,23 ± 0,03	37,2 ± 0,9	16,1 ± 0,5
17	0,71 ± 0,05	1,28 ± 0,06	37,8 ± 1,6	18,8 ± 1,3
18	0,80 ± 0,05	1,75 ± 0,08	54,1 ± 2,6	21,3 ± 1,3
19	0,88 ± 0,05	1,98 ± 0,07	61,5 ± 2,3	23,5 ± 1,2
20	0,38 ± 0,03	1,05 ± 0,09	35,2 ± 3,2	10,1 ± 0,8
21	0,38 ± 0,03	1,01 ± 0,05	33,7 ± 1,8	10,1 ± 0,7
22	0,37 ± 0,04	1,12 ± 0,06	38 ± 2	9,9 ± 0,9
23	0,55 ± 0,05	1,28 ± 0,07	40,8 ± 2,2	14,5 ± 1,3
24	0,53 ± 0,03	1,27 ± 0,05	40,5 ± 1,5	14,1 ± 0,8
25	0,59 ± 0,04	1,31 ± 0,06	41,4 ± 1,8	15,7 ± 0,9
26	0,73 ± 0,04	1,36 ± 0,06	40,5 ± 1,9	19,5 ± 0,9
27	0,53 ± 0,04	1,14 ± 0,06	34,4 ± 1,9	14,1 ± 1,1
28	0,44 ± 0,03	1,52 ± 0,05	52,0 ± 1,5	11,7 ± 0,8
29	0,51 ± 0,03	1,09 ± 0,04	34,4 ± 1,1	13,6 ± 0,8
30	0,40 ± 0,02	1,16 ± 0,04	37,3 ± 1,2	10,5 ± 0,5
31	0,35 ± 0,03	1,06 ± 0,05	35,8 ± 1,8	9,2 ± 0,8
32	0,19 ± 0,02	1,50 ± 0,04	54,7 ± 1,5	5,1 ± 0,4
33	0,87 ± 0,04	1,99 ± 0,07	61,4 ± 2,2	23,1 ± 1,1
34	0,67 ± 0,03	1,64 ± 0,06	51,2 ± 2,2	17,9 ± 0,8
35	0,36 ± 0,03	1,12 ± 0,06	37,6 ± 1,9	9,5 ± 0,8
36	0,94 ± 0,04	2,08 ± 0,07	65,0 ± 2,5	24,9 ± 1,1
37	0,17 ± 0,03	1,08 ± 0,07	38,5 ± 2,4	4,5 ± 0,7
38	1,4 ± 0,2	2,05 ± 0,22	55,1 ± 5,2	37,4 ± 5,3
39	1,28 ± 0,06	1,98 ± 0,08	55,2 ± 2,4	34,2 ± 1,6
40	0,51 ± 0,05	1,45 ± 0,08	47,3 ± 2,6	13,5 ± 1,2
Opseg	0,12-1,4	0,84-2,08	30,9-72,5	3,1-37,4
Prosek ± SD	0,53 ± 0,04	1,35 ± 0,06	43,5 ± 1,6	14,2 ± 1,2
Preporučena vrednost/prosek u svetu	≤ 1 ^b	≤ 1 ^c	55 ^d	-

^bpreporučena vrednost data u Ref. (Joel et al., 2018);^cpreporučena vrednost data u Ref. (Narloch et al., 2019);^dprosečna vrednost u svetu data u Ref. (UNSCEAR, 2008).

Izračunate vrednosti alfa indeksa (I_α), (relacija 6.7) su u rasponu od $0,12 \pm 0,02$, (uzorak broj 4 iz Južne Afrike) do $1,0 \pm 0,2$ (uzorak broj 38 iz EU). Procenjene vrednosti alfa indeksa prelaze preporučenu vrednosti $I_\alpha \leq 1$ (Joel et al., 2018) samo kod 5% uzorka (uzorak broj 38 iz EU, i uzorak broj 39 iz Brazila). Prosečna vrednost alfa indeksa iznosi $0,53 \pm 0,04$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima u radovima autora (Medhat, 2009; Pantelić et al., 2014a; Righi and Bruzzi 2006).

Izračunate vrednosti unutrašnjih hazard indeksa (H_{in}) (relacija 6.8) kreću se u intervalu od $0,84 \pm 0,05$ (uzorak broj 4 iz Južne Afrike) do $2,08 \pm 0,07$ (uzorak broj 36 iz Italije). 95% uzoraka granita prelazi preporučenu granicu za unutrašnji hazard indeks ($H_{in} \leq 1$) datu u (Narloch et al., 2019). Prosečna vrednost za unutrašnji hazard indeks takođe prelazi preporučenu vrednost i iznosi $1,35 \pm 0,06$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima u radovima autora (Alali et al., 2018; Pantelić et al., 2014a), datim u Tabeli 8.4.

Vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja (D) procenjene korišćenjem relacije 6.4a se kreću u intervalu od $30,9 \pm 1,8$ do $72,5 \pm 2,8$ nGy h⁻¹ (uzorci broj 5 i 7 iz Italije, respektivno). Izračunate vrednosti prelaze prosečnu vrednosti za građevinske materijale u svetu od 55 nGy h⁻¹ datu u ref. (UNSCEAR, 2008) kod 17,5% uzoraka. Prosečna vrednost jačine apsorbovane doze ne prelazi prosek u svetu i iznosi $43,5 \pm 1,6$ nGy h⁻¹ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima u radovima autora (Anjos et al., 2011; Sharaf and Hamideen, 2013; Poncela et al., 2004), datim u Tabeli 8.4.



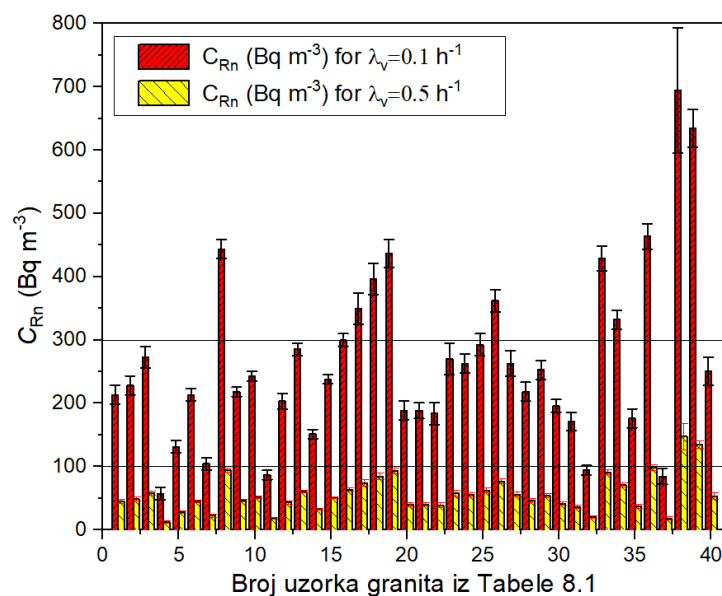
Slika 8.4 Vrednosti godišnjih efektivnih doza (E) procenjenih za 40 uzoraka granita koji se koriste u građevinarstvu u Srbiji.

Za proračun godišnje efektivne doze (E) korišćen je model prostorije dimenzija ($4 \text{ m} \times 5 \text{ m} \times 2,8 \text{ m}$) sa konverzionim faktorima iz Tabele 6.2. Godišnja efektivna doza procenjena je za centar ovakve prostorije, uz pretpostavku da su pod i zidovi prekriveni granitnim pločama debljine 3 cm i gustine 2600 kg m^{-3} . Dobijene vrednosti za godišnje efektivne doze izračunate pomoću relacije 6.5a kreću se u intervalu od $0,15 \pm 0,01 \text{ mSv y}^{-1}$ (uzorak broj 4 iz Južne Afrike) do $0,36 \pm 0,02 \text{ mSv y}^{-1}$ (uzorak broj 7 iz Italije), i prikazane su histogramom na Slici 8.4. Ni jedan uzorak ne prelazi preporučenu vrednost od 1 mSv (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018). 90% uzoraka granita ima gama indeks koji zadovoljava kriterijum $I_\gamma \leq 2$ čije godišnje efektivne doze

zadovoljavaju kriterijum $E \leq 0,3 \text{ mSv y}^{-1}$ (EC, 1999). 10% uzorka (uzorci broj 7, 19, 33 i 36 iz Tabele 8.1) imaju gama indeks koji zadovoljava kriterijum $2 \leq I_\gamma \leq 6$ i njihove godišnje efektivne doze ne prelaze granicu od 1 mSv (EC, 1999). Prosečna godišnja efektivna doza za svih 40 uzoraka granita iznosi $0,21 \pm 0,01 \text{ mSv}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima datim u radovima autora (Al-Zahrani, 2017; Abbasi and Hassanzadeh, 2017; Aykamis et al., 2013; Alali et al., 2018; Sharaf and Hamideen, 2013; Thabayneh, 2013), prikazanim u Tabeli 8.4.

Za procene brzine površinske ekshalacije radona i unutrašnje koncentracije radona u prostoriji (relacije 3.11 i 3.22, respektivno) korišćen je isti model prostorije kao i za procenu godišnje efektivne doze gama zračenja. Korišćen je koeficijent emanacije radona (ε) iz ranijeg istraživanja (Al-Jarallah, 2001) koji je bio u rasponu $<0,025-0,45$, Tabela 8.5. Za proračune u ovom radu korišćena je najviša vrednost emanacionog koeficijenta radona $\varepsilon = 0,45$ za najgori mogući scenario. Za procenu unutrašnje koncentracije radona korišćena je brzina provetrevanja prostorije od $\lambda_v = 0,1 \text{ h}^{-1}$ za lošu provetrenost i $\lambda_v = 0,5 \text{ h}^{-1}$ za normalnu provetrenost prostorije (Aykamis et al., 2013). Odnos površine prekrivene granitnim pločama u prostoriji i zapremine vazduha u prostoriji S/V u relaciji 3.22 uzet je da ima približnu vrednost 2 m^{-1} .

Procenjene vrednosti površinske ekshalacije radona iz granita (E_s) pomoću jednačine 3.11, prikazane su u Tabeli 8.5 i kreću se u rasponu od $3,1 \pm 0,5 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (uzorak broj 4 iz Južne Afrike) do $37,4 \pm 5,3 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (uzorak broj 38 iz EU). Prosečna vrednosti brzine površinske ekshalacije radona za svih 40 uzoraka granita iznosi $14,2 \pm 1,2 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijeni rezultati u ovom istraživanju su uporedivi sa rezultatima iz Tabele 8.5 sa radovima autora (Anjos et al., 2011; Aykamis, et al., 2013) koji su ispitivali granite iz Brazila i Turske, respektivno.



Slika 8.5 Procenjena vrednost koncentracije radona (C_{Rn}) u prostoriji standardnih dimenzija ($4 \text{ m} \times 5 \text{ m} \times 2,8 \text{ m}$), za 40 analiziranih uzoraka granita sa naznačenim preporučenim vrednostima koncentracije aktivnosti radona prema preporukama Svetske zdravstvene organizacije ($100-300 \text{ Bq m}^{-3}$) (WHO, 2009). Procene su izvršene za lošu provetrenost ($\lambda_v = 0.1 \text{ h}^{-1}$) i normalnu provetrenost ($\lambda_v = 0.5 \text{ h}^{-1}$) u prostoriji.

Rezultati procenjenih vrednosti unutrašnjih koncentracija radona su predstavljeni histogramom na Slici 8.5 sa naznačenim preporukama Svetske Zdravstvene Organizacije (WHO) koja propisuje prihvatljive vrednosti unutrašnje koncentracije radona u rasponu od 100 – 300 Bq m⁻³ (WHO, 2009). Za lošu provetrenost dobijene su vrednosti unutrašnje koncentracije radona koje su se kretale u rasponu od 57±10 Bq m⁻³ (uzorak broj 4 iz Južne Afrike) do 694±99 Bq m⁻³ (uzorak broj 38 iz EU). Srednja vrednost unutrašnje koncentracije radona u ovom slučaju iznosi 264±22 Bq m⁻³ (srednja vrednost ± standardna devijacija). Dobijeni rezultati su uporedivi sa rezultatima iz Tabele 8.5 dati u radovima autora (Anjos et al., 2011; Aykamis, et al., 2013) za granite iz Brazila i Turske, respektivno. Za normalnu provetrenost prostorije procenjene vrednosti koncentracije radona su u opsegu od 12,1±2,1 Bq m⁻³ (uzorak broj 4 iz Južne Afrike) do 147±21 Bq m⁻³ (uzorak broj 38 iz EU). Srednja vrednost unutrašnje koncentracije radona za normalnu provetrenost u prostoriji iznosi 56,1±4,6 Bq m⁻³ (srednja vrednost ± standardna devijacija). Dobijeni rezultati su uporedivi sa rezultatima u istraživanjima autora (Rafique and Rathore 2013), Tabela 8.5. Sa Slike 8.5 se može uočiti da 10% uzoraka za lošu provetrenost prostorije zadovoljava kriterijum $C_{Rn} < 100 \text{ Bq m}^{-3}$, 65% uzoraka zadovoljava kriterijum $100 < C_{Rn} < 300 \text{ Bq m}^{-3}$, i 25% uzoraka prelazi preporučenu gornju granicu $C_{Rn} > 300 \text{ Bq m}^{-3}$. Sa Slike 8.5 se može takođe uočiti da samo 5 % uzoraka za normalnu provetrenost prostorije prelazi granicu za unutrašnju koncentraciju radona $C_{Rn} > 100 \text{ Bq m}^{-3}$.

Iz svega analiziranog u ovom poglavlju može se zaključiti da dobijene vrednosti unutrašnjih i spoljašnjih hazard indeksa premašuju dozvoljene vrednosti za većinu analiziranih uzoraka, dok su godišnje efektivne doze ispod dozvoljenog nivoa za sve uzorke. Pored toga, izvršeni proračuni ukazuju da u slučaju normalne provetrenosti u prostoriji, ekshalacija radona iz granita nema značajan uticaj na izloženost ljudi. U slučaju loše provetrenosti prostorije, 90% uzoraka granita može doprineti unutrašnjim koncentracijama radona iznad 100 Bq m⁻³, što može predstavljati zdravstvenu opasnost za ljude, ako se uzme u obzir da građevinski materijal u prizemnim objektima ne predstavlja glavni izvor radona, već tlo ispod poda u prostoriji.

Tabela 8.4 Poređenje koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , radioloških hazard indeksa, jačine apsorbovanih doza i godišnje efektivne doze za granite u različitim zemljama u svetu.

Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)			Spoljašnji hazard indeksi			Unutrašnji hazard indeksi		D (nGy h ⁻¹)	E (mSv y ⁻¹)	Reference
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	I_γ	Ra_{eq} (Bq kg ⁻¹)	H_{ex}	I_α	H_{in}			
Grčka	2-195	1-450	50-3800	0,01	-	-	-	-	-	-	Stoulos, et al., 2003
Saudijska Arabija	4,70-55,63	2,32-89,82	824,25-1632,37	0,03-1,04	8,02-271,61	0,02-0,73	-	0,02-0,96	3,45-131,75	0,02-0,65	Al-Zahrani, 2017
Iran	3,8-99,2	6,5-172,2	556,9-1529,2	-	-	-	-	-	27,7-204,2	0,14-1,00	Abbasi and Hassanzadeh, 2017
Liban	8,7-494,0	0,8-157,2	2-1776	-	37-591	0,1-1,6	-	0,1-2,4	17,7-274,5	0,09-1,35	Kobeissi et al., 2013
Turska	10-187	16-354	104-1630	0,2-2,5	-	-	-	-	-	0,03-0,36	Aykamis, et al., 2013
Egipat	55-79	58-66	885-955	0,82	-	-	0,32	-	25,03	0,12	Medhat, 2009
Pakistan	17,56-50,91	26,30-87,01	197,65-1227,82	0,14-0,89	37,24-230,09	0,10-0,57	-	0,12-0,66	33,75-205,73	0,012-0,116	Qureshi et al., 2013
Jordan	8,57-152,07	6,83-365,43	121,25-1604,90	0,21-5,47	27,67-767,76	0,07-2,07	-	0,09-2,48	13,18-341,77	0,06-1,68	Alali et al., 2018
Španija	12,3-86,1	4-100	620-1860	-	-	-	-	-	35,1-184,2	-	Poncela et al. 2004
Srbija	5-430	3-444	10-2172	-	84-879	0,23-2,37	0,16-2,15	0,33-2,77	72-724	0,35-3,55	Pantelić et al., 2014a
Brazil	5-160	4,5-450	190-2029	-	-	-	-	-	4,2-120	-	Anjos et al., 2011
Italija	37-153	42-360	560-1600	0,61-2,84	-	-	0,19-0,77	-	-	-	Righi and Bruzzi, 2006
Palestina	18,6-152,2	28,8-211,0	400,0-1256,8	0,7-3,7	100,5-517,6	0,27-1,40	-	-	48,5-243,6	0,24-1,20	Thabayneh, 2013
Kina	45,99-77,16	61,53-77,82	1114,4-1152,30	0,86-1,03	228,35-277,17	0,62-0,75	-	0,74-0,96	109,78-130,98	0,54-0,64	Al-Zahrani, 2017
Jordan	12,63-79,96	14,24-130,23	288-1324	-	194,13	0,22	-	0,55	94,38	0,46	Sharaf and Hamideen, 2013
Srbija	23-280	77-426	550-2240	1,05-2,5	276-713	074-193	0,12-1,4	0,84-2,08	30,9-72,5	0,15-0,36	Ovo istraživanje

Tabela 8.5 Vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , brzina površinske ekshalacije (E_s), koeficijenta emanacije radona (ϵ) i koncentracija aktivnosti radona (C_{Rn}) u zatvorenom prostoru za neke granite u zemljama u svetu. *za proračune je korišćena vrednost dobijena u radu (Al-Jarallah, 2001)

Zemlja porekla	²²⁶ Ra (Bq kg ⁻¹)	E_s (Bq m ² h ⁻¹)	(ϵ)	C_{Rn} (Bq m ⁻³)	Reference
Egipat	78571±2362	-	0,11±0,01	35920±112	Hassan et al., 2013
Brazil	5-160	0,6-21	0,45*	21-404	Anjos et al., 2011
Saudijska Arabija	13,3-225,0	<0,119-10,6	<0,025-0,45	-	Al-Jarallah, 2001
Kanada	-	0,008-0,50	-	-	Chen et al., 2010
SAD	-	0,025-0,054	-	-	Chen et al., 2010
Italija	37-153	-	0,02-0,21	-	Righi and Bruzzi, 2006
Palestina	18,6-152,2	0,16-1,27	-	-	Thabayneh, 2013
Turska	10-187	1,3-24,8	0,45*	23-461	Aykamis, et al., 2013
Indika	45,2-49,8	-	0,21	-	Bala, et al., 2017
Pakistan	-	0,09-0,35	-	43-174	Rafique and Rathore 2013
Liban	8,7-494,0	-	0,0004-0,0066	-	Kobeissi et al., 2013
Grčka	2-195	do 3,54	do 0,13	-	Stoulos, et al., 2003
Tajland	-	0,14-10,71	-	36-492	Sola et al., 2014
Srbija	23-280	3,1-37,4	0,45*	57-694 ($\lambda_v=0,1 \text{ h}^{-1}$) 12,1-147 ($\lambda_v=0,5 \text{ h}^{-1}$)	Ovo istraživanje

8.1.1 Procena jačine apsorbovane doze korišćenjem Monte Karlo simulacija

Da bi se odredile jačine apsorbovane doze gama zračenja (D) i godišnje efektivne doze (E) za 6 analiziranih uzoraka granita, korišćene su Monte Karlo simulacije koje su izvedene pomoću alata za simulaciju GEANT4 (verzija 10.2) (Agostinelli et al., 2003; Geant4 Collaboration, 2015). Izvršeno je poređenje simulisanih vrednosti sa teorijskim priračunima prema relaciji (6.4a).

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K korišćene kao ulazni parametri u simulacijama za analizirane uzorke date su u Tabeli 8.6. Prosečne vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K su 1,8, 1,4 i 2,1 puta veće od prosečnih vrednosti za građevinske materijale (UNSCEAR, 1993).

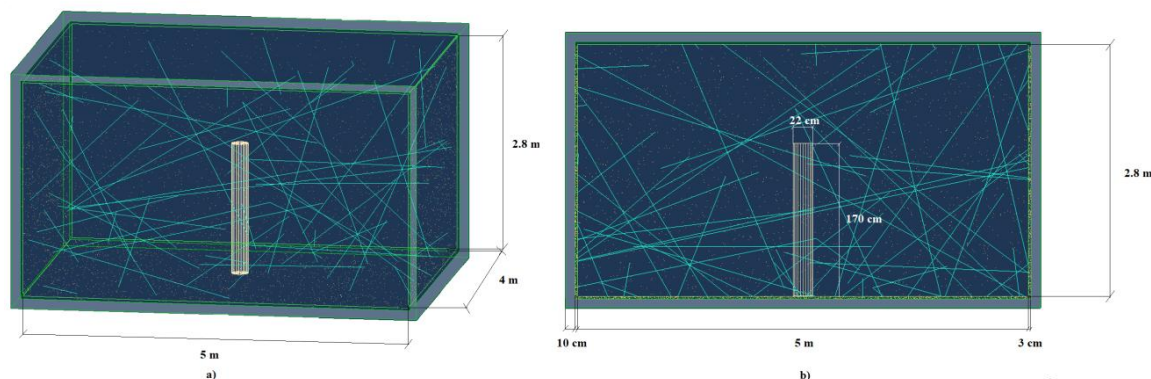
Tabela 8.6 Lista uzoraka granita sa zemljama porekla i vrednostima izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K .

Broj uzorka	Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})		
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
1	Kina	108 ± 7	131 ± 10	960 ± 70
2	Italija	158 ± 12	90 ± 9	1060 ± 70
3	Italija	86 ± 4	85 ± 7	1400 ± 60
4	Italija	121 ± 8	45 ± 3	1060 ± 60
5	Italija	23 ± 2	14 ± 2	180 ± 20
6	Italija	54 ± 5	57 ± 6	1760 ± 100
Prosek \pm SD*		92 ± 48	70 ± 41	1070 ± 527
Prosek u svetu		50^1	50^1	500^1

¹dato u Ref. (UNSCEAR, 1993),

*SD=Standardna devijacija

Teorijski procenjene vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja (D) prema relaciji (6.4a), i godišnjih efektivnih doza (E), relacija (6.5a), date su u Tabeli 8.9 kao i vrednosti gama indeksa koje za 4/6 uzoraka prelaze preporučenu vrednost $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000). Dobijene vrednosti jačina apsorbovanih doza su oko prosečnih u svetu za građevinske materijale od 55 nGy h^{-1} (UNSCEAR, 2008), dok su vrednosti godišnjih efektivnih doza ispod preporučenih 1 mSv y^{-1} (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018).



Slika 8.6 Perspektiva (a) i pogled simulirane prostorije sa strane (b). Dimenzije prostorije i vodenog cilindra, kao i debljina betonskog zida i granitnog sloja, prikazani su u odgovarajućim jedinicama.

Prostorija obložena granitnim pločama u simulaciji zadata je prema sledećim dimenzijama: 4 m × 5 m × 2,8 m, bez prozora i vrata kao što je pretpostavljeno u radu (Koblinger, 1978). Pod i zidovi prostorije sačinjeni od betona debljine 10 cm (gustine 2350 kg m⁻³) obloženi su granitnim pločama debljine 3 cm. Gustina granita izabrana je da odgovara prosečnoj vrednosti u svetu od 2750 kg m⁻³, kao i tipičnom hemijskom sastavu granita koji je predstavljen u Tabeli 8.7 (Abbasi i Hassanzadeh, 2017; Geologi Science, 2020). Treba napomenuti da plafon u sobi nije prekriven granitom, tako da ne učestvuje u emisiji gama fotona, ali doprinosi njihovom rasejanju. Pored toga, betonska osnova sobe ne deluje kao izvor gama zračenja, pružajući samo moguće rasejavanje gama zraka koji potiču iz granitne matrice. Pokazalo se da razlika u dobijenim vrednostima apsorbovane doze od simulacija za dve različite debljine zida betona (10 cm i 20 cm) može zanemariti (relativna razlika manja od 1%). Prema tim nalazima, a kako bi se minimiziralo efektivno vreme simulacije, svi dalji rezultati povezani su sa betonskim zidovima debljine 10 cm. Kod korišćen za simulacije dat je u Prilogu A, poglavlje 14.

Tabela 8.7 Tipični hemijski sastav granita korišćen u simulacijama (Abbasi and Hassanzadeh, 2017).

Jedinjenje	SiO ₂	Al ₂ O ₃	K ₂ O	Na ₂ O	CaO	FeO	Fe ₂ O ₃	MgO	TiO ₂	P ₂ O ₅	MnO
Udeo (%)	72,04	14,42	4,12	3,69	1,82	1,68	1,22	0,71	0,3	0,12	0,05

Prirodni radioizotopi, koji doprinose apsorbovanoj dozi, prema relaciji (6.4), su ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K. Pretpostavljeno je da su potomci ²²⁶Ra i ²³²Th u sekularnoj radioaktivnoj ravnoteži sa ²²⁶Ra i ²³²Th, respektivno. Da bi se simulirao njihov raspad, primenjen je sledeći postupak. Izabrani broj raspada ²²⁶Ra bio je 10⁶ za svaku simulaciju. Da bi se postigao odgovarajući broj gama fotona koje emituje ovaj radionuklid i njegovi potomci, ovaj broj je pomnožen sa verovatnoćom emisije za određene gama linije odgovarajućeg radionuklida, a slično je urađeno i za druge radionuclide, (Tabela 8.8). Na taj se način stvarna situacija verovatnoće emisije svake gama linije odražavala u simulacijama, kroz broj simuliranih gama fotona. Pored toga, u cilju održavanja odnosa koncentracije aktivnosti navedenih radionuklida kao u analiziranim uzorcima granita, dobijeni broj gama zraka za ²³²Th i ⁴⁰K u Tabeli 8.8 je pomnožen sa odnosima koncentracija aktivnosti: $\frac{C_{Th232}}{C_{Ra226}}$ i $\frac{C_{K40}}{C_{Ra226}}$. Na primer, ako su koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K 108 Bq kg⁻¹, 131 Bq kg⁻¹ i 960 Bq kg⁻¹ (uzorak br. 1 iz Tabele 8.6), tada broj gama fotona za članove niza ²³²Th i ⁴⁰K u Tabeli 8.8 treba pomnožiti sa: $\frac{131 \text{ Bq kg}^{-1}}{108 \text{ Bq kg}^{-1}} = 1,213$ i $\frac{960 \text{ Bq kg}^{-1}}{108 \text{ Bq kg}^{-1}} = 8,889$. Sličan pristup primenjen je i za ostale koncentracije aktivnosti u analiziranim uzorcima granita.

Nadalje, ekvivalentno vreme t_{eq} , tj. vreme potrebno u stvarnosti za emitovanje simulisanopg broja događaja, procenjeno je na sledeći način. Imajući u vidu granit debljine 3 cm, koji u simulacijama pokriva unutrašnjost zadate prostorije (pod i zidove), izvor gama zračenja, efektivna masa (ukupna masa iz koje su emituju gama fotoni) je određena korišćenjem relacije (8.1):

$$m_{eff} = V_{eff} \cdot \rho_{granit} \approx 2.138 \text{ m}^3 \cdot 2750 \text{ kg m}^{-3} = 5880 \text{ kg} \quad (8.1)$$

gde je V_{eff} ukupna zapremina granita zadata u simulacijama.

Ukupna brzina raspada ²²⁶Ra unutar m_{eff} može se odrediti korišćenjem određene koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra, kao $N_r = m_{eff} \cdot C_{Ra}$ (na primer, ako je $C_{Ra} = 108 \text{ Bq kg}^{-1}$, sledi $N_r \approx 635100 \text{ raspada s}^{-1}$). Konačno, ekvivalentno vreme za 10⁶ raspada ²²⁶Ra predstavljeno je relacijom (8.2):

$$t_{eq} = \frac{N}{N_r} = \frac{10^6}{635100 \text{ s}^{-1}} \approx 1.575 \text{ s} \quad (8.2)$$

Prema gore pomenutim koncentracijama aktivnosti ($C_{Th} = 131 \text{ Bq kg}^{-1}$, $C_K = 960 \text{ Bq kg}^{-1}$), ovo vreme takođe odgovara raspadu od $1,213 \times 10^6$ raspada ^{232}Th , i $8,889 \times 10^6$ raspada ^{40}K . Postupak određivanja ekvivalentnog vremena primenjen je za sve ostale analizirane uzorke granita u odnosu na njihove koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K iz Tabele 8.6.

Tabela 8.8 Energije i verovatnoće emisije gama linija (Medhat and Wang, 2014) i odgovarajući broj emitovanih fotona korišćenih u simulacijama.

Radioizotop	Potomak	Energija (keV)	Verovatnoća emisije (%)	Broj emitovanih fotona*
^{226}Ra	-	186,0	3,2	32 000
	^{214}Bi	609,3	46,2	462 000
		768,4	5,0	50 000
		1120,3	15,1	151 000
		1764,0	15,8	158 000
		295,2	19,2	192 000
^{214}Pb	351,9	37,2	372 000	
^{232}Th	^{228}Ac	338,0	11,3	113 000
		911,1	27,7	277 000
		969,1	16,6	166 000
	^{212}Pb	238,6	44,6	446 000
	^{208}Tl	538,1	30,0	300 000
2614,5		35,6	356 000	
^{40}K	-	1460,8	10,7	107 000

*Ovaj broj se odnosi na 10^6 raspada ^{226}Ra , 10^6 raspada ^{232}Th i 10^6 raspada ^{40}K (tj. jednake koncentracije aktivnosti ovih radionuklida).

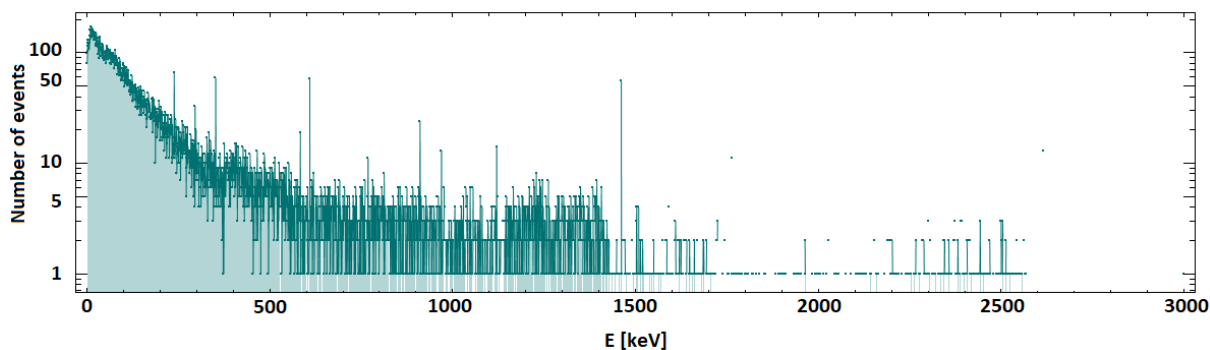
Vodeni cilindar, prečnika 22 cm i visine 170 cm, smešten je u centru prostorije (Slika 8.6), predstavljajući ljudsko telo (mase $m_{cilindar}=64,6 \text{ kg}$), korišćen je kako bi se dobila ukupna deponovana energija (E_{dep}) u svakoj pojedinačnoj simulaciji. Stoga je brzina apsorbovane doze procenjena pomoću relacije (8.3):

$$D = \frac{E_{dep}}{m_{cilindar} \cdot t_{eq}} \quad (8.3)$$

gde je t_{eq} ekvivalentno vreme za simuliranje 10^6 broja događaja.

U Monte Karlo simulacijama, zasnovanim na GEANT4 alatima za simulaciju, procesi u kojima fotoni stupaju u interakciju sa okolnim materijalima bili su elektromagnetni, uključujući fotoelektrični efekat, Komptonovo rasejanje i proizvodnju para elektrona i pozitrona (Agostinelli et al., 2003). Sve interakcije gama zraka sa okolnim vazduhom, granitnom matricom, betonskim plafonom, spoljašnjim betonom kao i sa samim vodenim cilindrom, uzete su u obzir, dok je praćenje svakog pojedinog emitovanog i rasejanog fotona uključeno u simulaciji. Dakle, dobijeni spektar deponovane energije u vodi je rezultat brojnih interakcija koje se dešavaju u definisanoj geometriji. Primer deponovanog energijskog spektra u vodenom cilindru prikazan je na Slici 8.7.

Na osnovu dobijenih jačina apsorbovanih doza gama zračenja iz simulacija, godišnje efektivne doze su izračunate korišćenjem relacije (6.5a). Rezultati dobijenih vrednosti simuliranih jačina apsorbovanih doza i godišnjih efektivnih doza gama zračenja predstavljeni su u Tabeli 8.9, zajedno sa teorijskim procenama obe veličine. Relativna nesigurnost dobijenih simuliranih rezultata je manja od 1%.



Slika 8.7 Spektar deponovane energije u vodenom cilindru za 10^6 raspada ^{226}Ra , $0,57 \times 10^6$ raspada ^{232}Th , i $6,71 \times 10^6$ raspada ^{40}K , što predstavlja odnos koncentracija aktivnosti u uzorku broj 2, dobijen iz simulacije.

Tabela 8.9 Vrednosti gama indeksa, jačina apsorbovanih doza gama zračenja (D) (procenjena (relacija 6.4a) i simulirana) i godišnje efektivne doze (E) za 6 analiziranih uzoraka granita.

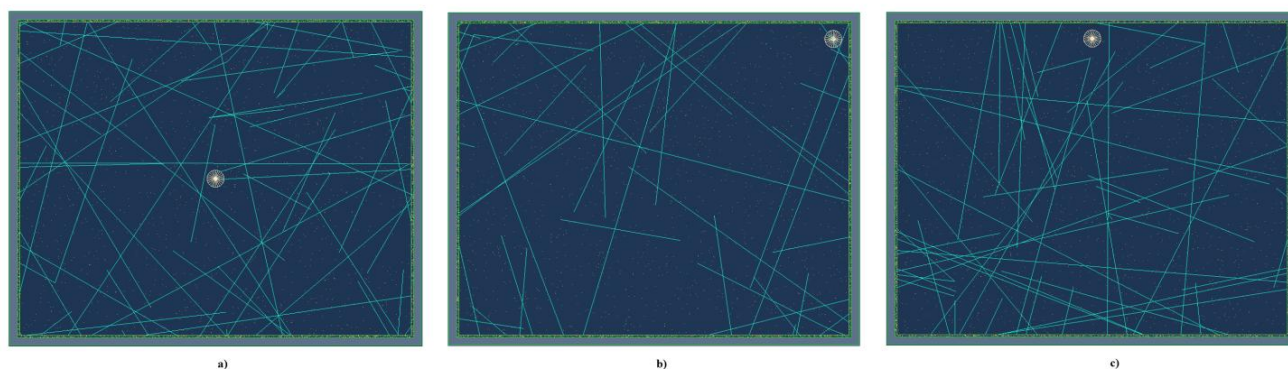
Broj uzorka	Gama indeks	D (nGy h ⁻¹)		Relativno odstupanje D [%]*	E (mSv y ⁻¹)	
		Procenjena	Simulirana		Procenjena	Simulirana
1	1,34	40,5	58,3	30,5	0,199	0,286
2	1,33	41,7	57,8	27,8	0,205	0,284
3	1,18	35,7	54,4	34,5	0,175	0,267
4	0,98	31,0	43,6	28,9	0,152	0,214
5	0,21	6,4	9,1	29,1	0,032	0,045
6	1,05	31,4	51,1	38,6	0,154	0,251
Preporučena vrednost/prosek u svetu	$\leq 1^2$	55 ³		-	$\leq 1^4$	

²Preporučena vrednost data u Ref. (UNSCEAR, 2000),

³Svetski prosek za građevinske materijale dat u Ref. (UNSCEAR, 2008),

⁴Preporučena vrednost data u Ref. (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018),

*relativno odstupanje izračunate (procenjene) vrednosti (relacija 6.4a) od simulirane (relacija 8.3).



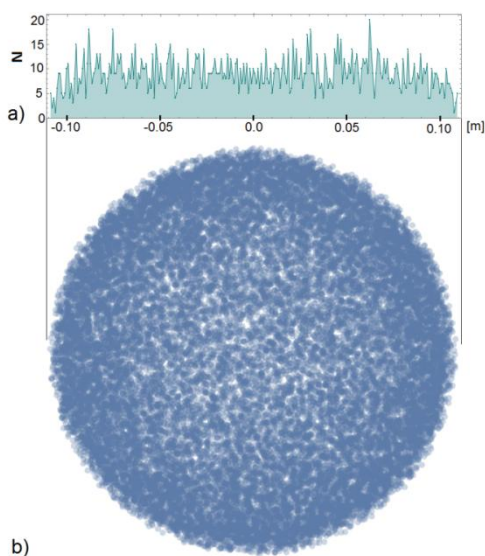
Slika 8.8 Tri analizirana položaja vodenog cilindra u prostoriji dimenzija 4 m \times 5 m \times 2,8 m: u centru prostorije (a), u uglu prostorije (b) i na sredini dužeg bočnog zida u prostoriji (c).

Pored ovoga, ispitivan je i uticaj položaja vodenog cilindra u prostoriji na vrednost jačine apsorbovane doze gama zračenja. U simulacijama su zidovi i pod prekriveni uzorkom granita broj 1 (Tabela 8.6), dok je vodeni cilindar postavljen na tri različita položaja: a) u centru sobe, b) u uglu sobe,

i c) blizu sredine duže bočne strane prostorije, Slika 8.8. Za ove tri pozicije utvrđeno je da su dobijene jačine apsorbovane doze: $58,3 \text{ nGy h}^{-1}$, $71,0 \text{ nGy h}^{-1}$ i $68,4 \text{ nGy h}^{-1}$, što ukazuje na najvišu vrednost apsorbovane doze u uglu sobe. Dobijene vrednosti su iznad svetskog proseka od 55 nGy (UNSCEAR, 2008).

Pored toga, ispitivan je uticaj male varijacije gustine granita na deponovanu energiju unutar vodenog cilindra, tj. jedna simulacija je posvećena ovom problemu (kod uzorka broj 5 iz Tabele 8.6), smanjenjem gustine granita sa 2750 kg m^{-3} na 2600 kg m^{-3} , dok su svi ostali uslovi simulacije sačuvani. Relativna razlika između jačine apsorbovane doze za pomenute dve gustine bila je zanemarljivo mala – samo $0,021\%$. Stoga je upotreba prosečne gustine granita u svetu u svim postavljenim simulacijama razumna.

Raspodela tačaka interakcije po prečniku vodenog cilindra analizirana je i prikazana na Slici 8.9. Kao što se može videti, broj tačaka interakcije je malo niži u sredini cilindra i u spoljašnjoj zapremini sloja, u poređenju sa regionom radijalnih rastojanja između 5 cm i 10 cm od centra gde je bio veći broj interakcija.



Slika 8.9 Distribucija tačaka interakcije duž prečnika vodenog cilindra (a), gustina tačaka interakcije – pogled odozgo (b).

Bilo je od izuzetne važnosti analizirati slučaj uticaja gama linije ^{226}Ra na $186,2 \text{ keV}$ na jačinu apsorbovane doze, pošto se ova linija nije koristila tokom gama spektrometrijskih merenja koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , zbog interferencije sa gama linijom ^{235}U na $185,7 \text{ keV}$ (Bikit et al., 2003; Corte et al, 2005). S druge strane, u naknadno sprovedenim simulacijama je uračunata gama linija na $186,2 \text{ keV}$, zajedno sa ostalim linijama iz Tabele 8.8. Iz tog razloga, dodatni simulacioni ciklus izveden je na sledeći način. U cilju provere specifičnog doprinosa gama linije na $186,2 \text{ keV}$ apsorbovanoj dozi koja potiče direktno od raspada ^{226}Ra , ova linija je izostavljena iz simulacije, ostavljajući samo one linije koje proizilaze iz produkata raspada ^{222}Rn (tj. od ^{214}Pb i ^{214}Bi). Dakle, isključivanjem gama linije na $186,2 \text{ keV}$ (kvantnog prinosa $3,2\%$) iz simulacije za uzorak 2 (koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K od 158 Bq kg^{-1} , 90 Bq kg^{-1} i 1060 Bq kg^{-1}), dobijena je jačina apsorbovane doze od $57,7 \text{ nGy h}^{-1}$, koja je niža za oko $0,2\%$ nego u slučaju kada je ova linija bila prisutna u simulaciji za analizirani uzorak ($57,8 \text{ nGy h}^{-1}$, Tabela 8.9).

S druge strane, doprinos gama linija od ^{235}U (143,8 keV, 163,3 keV, 185,7 keV, 205,3 keV kvantnih prinosa od 10,9%, 5%, 57,5% i 5%, respektivno) je takođe ispitan na sledeći način. U prirodnim uzorcima odnos koncentracije aktivnosti od ^{235}U i ^{238}U je oko 4,6% (Olszevski et al., 2016). Ako se pretpostavlja sekularna radioaktivna ravnoteža između ^{226}Ra i ^{238}U , to nadalje podrazumeva i odnos između ^{235}U i ^{226}Ra od oko 4,6%. Pod ovim uslovima, simulacije su ponovo izvedene za uzorak 2, što je rezultiralo brzinom doze od 58 nGy h^{-1} . Drugim rečima, prisustvo ^{235}U dovodi do povećanja doze za oko 0,35%. Prema ovim analizama, može se zaključiti da su relativni doprinosi same gama linije ^{226}Ra na 186,2 keV, kao i gama linije od ^{235}U jačini apsorbovane doze manji od 0,5%.



Slika 8.10 Merenje jačine doze gama zračenja od balk uzorka granita dozimetrom Exploranium u kontaktnoj geometriji u gvozdenoj zaštiti debljine 25 cm.

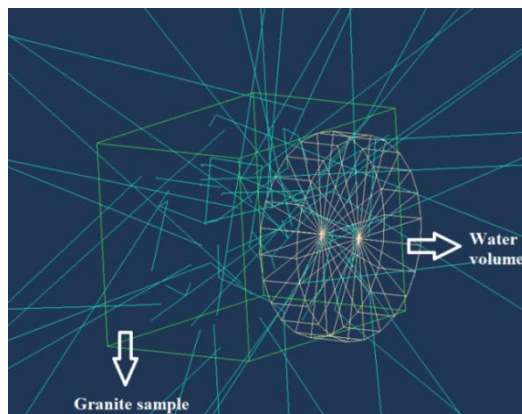
Najpotpunije poređenje rezultata dobijeno Monte Karlo simulacijama sa izmerenim vrednostima apsorbovane doze bilo bi moguće samo ako se u stvarnosti obezbedi standardna prostorija prekrivena unutrašnjim slojem granita debljine 3 cm, sa poznatim koncentracijama aktivnosti radionuklida. Međutim, u nedostatku takve standardne prostorije, validacija Monte Karlo simulacija poređenjem simuliranih rezultata sa rezultatima merenja urađena je na sledeći način. Granitni uzorak („Carmen red“), dimenzija $11,2 \text{ cm} \times 9 \text{ cm} \times 7,7 \text{ cm}$ i mase 1,817 kg, korišćen je kao izvor gama zračenja čija je brzina doze eksperimentalno merena u kontaktnoj geometriji. U tu svrhu je korišćen prenosni detektor Exploranium, koji radi u režimu jačine doze. Kako bi se umanjila jačina doze iz pozadine, uzorak granita i dozimetar Exploranium postavljeni su u unutrašnjost gvozdene komore sa zidovima debljine 25 cm (Slika 8.10).

Pozadinska doza u gvozdenoj komori bila je 3 nGy h^{-1} , dok je jačina doze u prisustvu uzorka granita (u kontaktnoj geometriji sa dozimetrom) bila 35 nGy h^{-1} , što je rezultiralo neto brzinom doze od 32 nGy h^{-1} od analiziranog uzorka granita.

Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K su izmerene metodom gama spektrometrije i za analizirani uzorak granita iznose $94 \pm 4 \text{ Bq kg}^{-1}$, $123 \pm 10 \text{ Bq kg}^{-1}$, $1200 \pm 100 \text{ Bq kg}^{-1}$, i ovi podaci su korišćeni kao ulazni parametri za Monte Karlo simulacije apsorbovane doze u blizini površine ovog osnovnog uzorka granita. Uzimajući u obzir ove vrednosti, masu uzorka i ukupan broj simuliranih raspada (10^5 raspada ^{226}Ra , $1,31 \times 10^5$ raspada ^{232}Th i $12,8 \times 10^5$ raspada ^{40}K), ekvivalentno vreme iznosi $t_{\text{eq}} = 0,1625 \text{ h}$. Geometrijska postavka u simulaciji prikazana je na Slici 8.11. Vodeni cilindar u kontaktu sa uzorkom granita imao je prečnik $d = 9 \text{ cm}$ i debljinu $h = 2 \text{ cm}$ (što daje masu vode $m_{\text{water}} = 0,127 \text{ kg}$), dok je deponovana energija unutar ove zapremine iznosila $E_{\text{dep}} = 6,0876 \times 10^{-10} \text{ J}$. Prema ovim simuliranim vrednostima, utvrđeno je da simulirana jačina apsorbovane doze u blizini površine uzorka granita iznosi:

$$D_{\text{sim}} = \frac{E_{\text{dep}}}{m_{\text{water}} \cdot t_{\text{eq}}} = 29,5 \text{ nGy h}^{-1} \quad (8.4)$$

Dakle, relativna razlika izmerene i simulirane jačine apsorbovane doze iz uzorka granita bila je $\approx 8\%$. Dobijeno dobro slaganje među eksperimentalnim i simuliranim rezultatima potvrđuje da ova metoda simulacije Monte Karlo pruža najpouzdaniji pristup u poređenju s drugim pristupima izračunavanja.



Slika 8.11 Geometrijska postavka vodenog cilindra u kontaktnoj geometriji sa uzorkom granita.

Nadalje, pronađen je raspon koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za koje je razlika u rezultatima Monte Karlo simulacija i onih dobijenih pomoću relacije (6.4a), značajna jer govori da li je prekoračena preporučena godišnja efektivna doza. Ovo je veoma bitno jer može uticati na odluku o isključivanju ovakvih materijala od korištenja u zgradama. Dakle, tražen je raspon koncentracija aktivnosti radionuklida gde su Monte Karlo simulacije i relacija (6.4a) dale različite rezultate u vezi sa prekoračenjem nivoa efektivne doze od 0,3 mSv. Za sledeće koncentracije aktivnosti: 130 Bq kg⁻¹, 130 Bq kg⁻¹ i 1100 Bq kg⁻¹ za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , respektivno. Godišnja efektivna doza dobijena u simulacijama iznosila je 0,31 mSv (tj. > 0,3 mSv), dok je relacija (6.4a) dala vrednost 0,22 mSv (tj. < 0,3 mSv). Takođe, ako su koncentracije aktivnosti veće: 170 Bq kg⁻¹, 170 Bq kg⁻¹ i 1500 Bq kg⁻¹ za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , respektivno, tada godišnja efektivna doza dobijena u simulacijama iznosi 0,41 mSv (što je iznad 0,3 mSv), dok relacija (6.4a) daje vrednost od 0,29 mSv, što je još uvek manje od 0,3 mSv. To dalje znači da izvan intervala koncentracija aktivnosti (130-170) Bq kg⁻¹ za ^{226}Ra , (130-170) Bq kg⁻¹ za ^{232}Th i (1100- 1 500) Bq kg⁻¹ za ^{40}K efektivne doze određene simulacijama i relacijom (6.4a) su ispod, ili iznad granice od 0,3 mSv (mada su vrednosti i dalje međusobno različite za oko 40%).

Cilj ovog poglavlja doktorske disertacije bio je procena jačine apsorbovane doze iz granita korišćenjem Monte Karlo simulacija, pružajući mogućnost da se u unutrašnjosti modela prostorije standardnih dimenzija uključe sve elektromagnetne interakcije gama zraka koje se emituju iz granitne matrice. Ljudsko telo predstavljeno je vodenim cilindrom u koji se deponuje energija gama zračenja. Pored toga, rezultati jačine apsorbovane doze i godišnje efektivne doze su upoređeni sa rezultatima jačina apsorbovanih doza i godišnjih efektivnih doza izračunatih upotrebom uobičajenih standardnih relacija. Analizom rezultata jačina apsorbovanih doza i godišnjih efektivnih doza dobijenih Monte Karlo simulacijama i korišćenjem standardne jednačine (relacije 6.4a) ustanovljeno je da su simulirane vrednosti oko 30% - 40% veće od onih teorijski procenjenih. Ove razlike u dobijenim jačinama apsorbovanih doza mogu rezultirati u različitoj interpretaciji radioloških štetnosti, što dovodi do zaključka viših godišnjih efektivnih doza ako se uzmu u obzir simulisani rezultati u odnosu na one procenjene teorijskim putem. Nadalje, to može uzrokovati u nekim slučajevima višak doze, nastao od

granitnog materijala i drugih građevinskih materijala sa većim sadržajem ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , u odnosu na godišnju granicu od 0,3 mSv (EC, 1999). Stoga je važno otkriti moguće izvore odstupanja između simuliranih i procenjenih rezultata. Jedan od mogućih razloga je pojednostavljenje situacije u kojoj je relacija (6.4a) izvedena. Jačine doza gama zračenja u središtu standardne sobe izračunate su na osnovu sume odvojeno izračunatih jačina doze koja potiču od zidova, poda i plafona. Dakle, doprinos povratnog rasejanja gama zračenja u sobi u pogledu prisustva svih zidova, poda i plafona nije uzet u obzir. S druge strane, u simulaciju je uključen efekat povratnog rasejanja gama fotona i njihova složena interakcija sa unutrašnjosti prostorije, kroz praćenje interakcija svakog pojedinačnog fotona. Štaviše, jedan drugi mogući uzrok nepodudarnosti između simuliranih rezultata i rezultata upotrebom standardne jednačine mogla bi biti činjenica da je u simulacijama apsorbovana jačina doze dobijena unutar vode u cilindru, dok je za tačku u centru prostorije dobijen rezultat iz relacije (6.4a). Sa praktičnog stanovišta, povećanje vrednosti specifičnih brzina doza u relaciji (6.4a) za približno 40% (tj. na vrednosti 0,17, 0,20 i 0,0134, izraženo u nGy h^{-1} po Bq kg^{-1} , za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , respektivno) doveli bi do realnije procene apsorbovane doze za određene koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u uzorcima granita. Međutim, rezultati izračunati na takav način, čak i iz modifikovane relacije (6.4a), predstavljala bi samo relativno grubu procenu apsorbirane doze u odnosu na rezultate simulacije. Nadalje, kao što je preporučeno u (EU, 2014), izračunavanje doze mora uzeti u obzir faktore kao što su gustina, debljina materijala kao i faktori koji se odnose na vrstu zgrade i nameravanu upotrebu materijala. Stoga, dobijanje univerzalne relacije za izračunavanje jačine apsorbovane doze samo na osnovu specifičnih jačina doze i izmerenih koncentracija aktivnosti nije jednostavan zadatak. Međutim, konačna odluka o upotrebi analiziranog građevinskog materijala zasniva se na izračunatoj godišnjoj efektivnoj dozi, koja u nekim slučajevima može biti potcenjena. Pored spoljašnje ekspozicije, ukupna doza može biti veća od 1 mSv godišnje. Na primer, u slučaju granita, koncentracije aktivnosti ^{226}Ra i ^{232}Th u opsegu (130-170) Bg kg^{-1} i ^{40}K u opsegu oko (1 100-1 500) Bg kg^{-1} , pored eksterne ekspozicije od $\approx 70 \text{ nGy h}^{-1}$ (iznad prosečne vrednosti jačine apsorbovane doze na otvorenom), premašuju 1 mSv, ako bi se koristile simulirane vrednosti. Spoljašnja izloženost na otvorenom, neobično visoka, ako se materijal koristi za zgradu u kojoj se nalaze deca i novorođenčad. Trošeći većinu svog vremena, ako su u zgradi prisutni dodatni izvori gama zračenja, onda podcenjivanje 30-40% manje doze sigurno se ne može zanemariti, te se ovakav pristup može koristiti za sve atipične slučajeve koji se dešavaju u praksi.

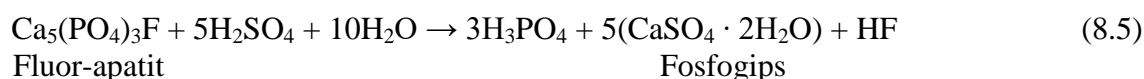
Vrednosti apsorbovane doze dobijene za vodeni cilindar smešten u uglu i blizu sredine duže bočne strane u prostoriji je za oko 20% veća od vrednosti koja je dobijena za simuliranu vrednost u centru prostorije. Dobijeni rezultati su nešto viši nego u (Mustonen, 1984), gde je objavljeno da su razlike dobijene za različite položaje u opsegu 5–10%, što sugeriše centar prostorije kao najrepresentativniji položaj za procenu jačine apsorbovane doze gama zračenja, kako je i uzeto u obzir pri proceni specifičnih brzina doze u relaciji (6.4a). Pošto je utvrđeno da je najveća vrednost apsorbovane doze u simulacijama u uglu sobe, godišnja efektivna doza u odnosu na ovaj položaj prostorije može premašiti 0,3 mSv, dok vrednost koja odgovara centru sobe, bila je ispod ove vrednosti. Shodno tome, potrebno je preispitati položaj u kome treba proceniti vrednost jačine apsorbovane doze, posebno imajući na umu da veliki deo vremena tokom godine čovek provede tokom spavanja uz sam zid prostorije ili cedeći uz njega.

Često korišćene formule za procenu jačine apsorbovane doze pokazale su sistematska odstupanja i pokazale podcunjene vrednosti u poređenju sa vrednostima jačine apsorbovane doze dobijene simulacijama za iste uslove. Imajući u vidu široku upotrebu granita ili, uopšte, nekih drugih građevinskih materijala, može se primeniti dalji simulacioni pristup radi pouzdanije procene jačina apsorbovanih doza i godišnje efektivne doze koje bi uključile sve analizirane efekte i slučajeve. Ovo je posebno važno za različite geometrije prostorije i različite vrste građevinskih materijala u unutrašnjosti prostorije. Stoga neki budući radovi zasnovani na simulacijskom pristupu mogu obuhvatati analizu

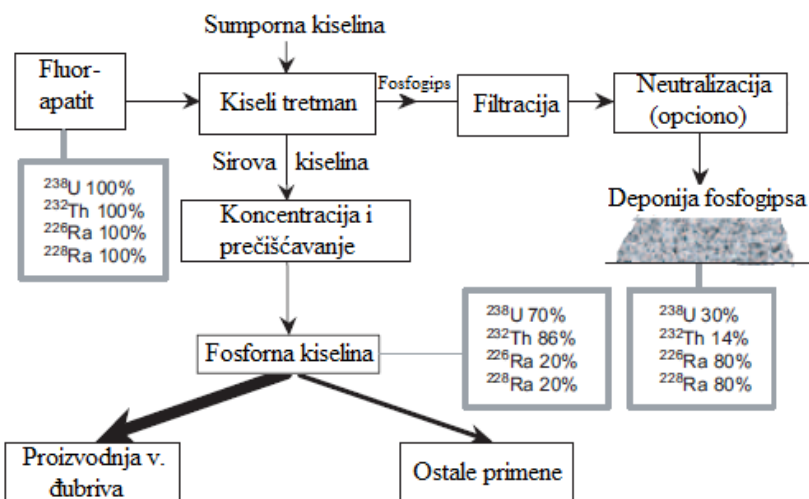
različitih vrsta građevinskih materijala (mermer, keramičke pločice, gips-karton ploče), uticaj različitih gustina matrice i hemijskog sastava na jačinu apsorbovane doze gama zračenja, kao i različitu geometriju prostorije (sa, na primer, manjim zapreminama), koji uključuju prozore i vrata. Kako bi se prikazala najrealnija situacija i stekla, što je više moguće, tačna metoda za određivanje apsorbovane doze, ovo može predstavljati dobar osnov za dalja istraživanja.

8.2 Fosfogips i prirodni gips

Fosfogips (PG), je materijal koji nastaje kao nus-proizvod iz proizvodnje fosforne kiseline (H_3PO_4) tzv. „mokrim postupkom“ koja se koristi za proizvodnju veštačkih đubriva (Calin et al., 2015; Cuadri et al., 2014). Po svom sastavu fosfogips je uglavnom je u obliku kalcijum sulfata dihidrata ($CaSO_4 \cdot 2H_2O$). Industrijska proizvodnja fosforne kiseline i fosfogipsa se može prikazati reakcijom (8.5) (Cuadri et al., 2014; Potiriadis et al., 2011).



Pri proizvodnji jedne tone fosforne kiseline nastane 5 tona fosfogipsa (Papastefanou et al., 2006). Nastali fosfogips se razlikuje od prirodnog gipsa po tome što može sadržati u sebi mnoštvo nečistoća: fosfate, sulfate i fluorida, teške metale i metale u tragovima (olovo, arsen, fluorin, kadmijum, cink, hrom, bakar i antimon), (Calin et al., 2015; Nizevičiene et al., 2018; Pacheco-Torgal et al., 2012). Blok šema proizvodnje fosforne kiseline date ne na Slici 8.12.



Slika 8.12 Blok šema proizvodnje fosforne kiseline, sa naznakom distribucije radionuklida (IAEA, 2003).

Fosfogips se klasifikuje kao *NORM* materijal i u sebi najčešće sadrži prirodne radioaktivne elemente iz niza ^{238}U - ^{226}Ra , ^{232}Th kao i ^{40}K (Schroeyers, 2017). Ovaj materijal obično sadrži povećanu koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra (period poluraspada 1620 godina) od nekoliko do nekoliko stotina puta veću nego prirodni gips u zavisnosti od sadržaja urana u početnoj rudi ($Ca_5(PO_4)_3F$ - fluor-apatitu), (Gijbels et al., 2018; Nuccetelli et al., 2015; Papastefanou et al., 2006). Sa Slike 8.12 se može videti da

se oko 80% ukupnog udela ^{226}Ra koncentriše upravo u otpadnom fosfogipsu, dok se ^{238}U i ^{232}Th koncentrišu u samoj fosfornoj kiselini (IAEA, 2003).

Deponije fosfogipsa zauzimaju velike površine na Zemlji i predstavljaju potencijalnu ekološku i radiološku opasnost za izlaganje ljudi. U svetu se svake godine proizvede oko 300 miliona tona fosfogipsa. Zbog kontaminacije, samo se 15 % fosfogipsa proizvedenog u svetu reciklira u proizvodnju građevinskog materijala, dok je 85% fosfogipsa odloženo na otvorenom bez ikakvog tretmana (Lopez, et al., 2011; Pacheco-Torgal et al., 2012). Procenjuje se da se u srpskoj hemijskoj industriji godišnje proizvede oko 810 000 tona otpadnog fosfogipsa, od čega se prema nezvaničnim podacim samo mali deo reciklira u proizvodnju cementa.

Korišćenje fosfogipsa sa povećanim sadržajem ^{226}Ra predstavlja dvostruku opasnost za izlaganje javnost, kako u pogledu izloženosti gama zračenju tako i u opasnosti od inhalacije ^{222}Rn i njegovih produkata raspada (Maduar, 2011), zbog toga je njegova upotreba limitirana. ^{222}Rn je radioaktivni gas, periods poluraspada 3,8 dana, veoma je mobilan iz građevinskih materijala sa povećanim sadržajem ^{226}Ra i predstavlja veliki zdravstveni hazard (Gijbels et al., 2018; Maduar, 2011).

Koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u fosfogipsu se može kretati od 200 do 3000 Bq kg⁻¹ (USEPA, 1990). Prema američkim preporukama iz 2002. godine da bi se fosfogips mogao koristiti za proizvodnju građevinskog materijala koncentracija aktivnosti ^{226}Ra ne sme biti veća od preporučenih 370 Bq kg⁻¹ (USEPA, 2002). Upotreba fosfogipsa kao građevinskog materijala npr. u Brazilu je moguća ako koncentracija aktivnosti ^{226}Ra iznosi manje od 1000 Bq kg⁻¹ (Borges et al., 2013). Prema zakonskoj regulativi Srbije dozvoljena je upotreba onih građevinskih materijala čiji nivo radioaktivnosti ne prelazi godišnju efektivnu dozu od 1 mSv y⁻¹ (Sl. Glasnik RS 36/18, 2018). Ova regulativa je usklađena sa direktivom Evropske Unije (EU, 2014).



Slika 8.13 (a) Odlagalište fosfogipsa u Srbiji; (b) i (c) sirov i osušen uzorak fosfogipsa (uzorak PG4, iz Tabele 8.11).

Neka od vršenih istraživanja potencijalne primene fosfogipsa u svetu su: upotreba za izgradnju puteva kao modifikator bitumena za fleksibilne kolovozne puteve (Cuadri et al., 2014), aditiv u keramičkoj proizvodnji (Contreras et al., 2018), vezivni materijal u građevinskoj industriji (Nizevičiene et al., 2018; Rashad, 2017), valorizacija u proizvodnji opeke (Ajam et al., 2009, 2019), primena u poljoprivredi (Papastefanou et al., 2006). U građevinskoj industriji glavna potencijalna primena je u proizvodnji cementa gipsanih ploča i maltera (Chandara et al., 2009; Lopez et al., 2011; Rashad, 2017). Gipsane ploče (gips-karton ploče) imaju široku primenu u građevinarstvu, proizvode se različitih dimenzija i za različite nemene. Korišćenje materijala od gipsa i fosfogipsa za izgradnju kuća smanjuje troškove i do 30% u odnosu na standardnu gradnju (Maduar et al., 2011). Gipsanim pločama se obično

oblažu zidovi i plafoni u kućama, stanovima i poslovnom prostoru. Zidovi se zbog čvrstine najčešće oblažu dvostrukim gipsanim pločama. Standardne dimenzije ovih ploča su obično 2000-3000 mm dužine, 1250 mm širine i 9,5-15 mm debljine.

U ovom poglavlju data je radiološka i hemjska karakterizacija uzoraka fosfogipsa a dobijene vrednosti su zbog sličnosti njegove strukture poređene sa vrednostima dobijenim za prirodni gips. Radiološka karakterizacija je izvršena kako u pogledu gama zračenja tako i u pogledu procene unutrašnje koncentracije radona u zatvorenom prostoru od potencijane upotrebe u građevinarstvu za sve analizirane uzorke. Izgled odlagališta fosfogipsa u Srbiji kao i sirovog i suvog uzorka fosfogipsa PG4 iz Tabele 8.11 prikazani su na Slici 8.13. Hemijska karakterizacija je izvršena u smislu sadržaja glavnih elemenata, kao i pogledu sadržaja gavnih mineraloških komponenti.

Tabela 8.10 Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th , i ^{40}K u NG i GB uzorcima.

Uzorak	Naziv	Zemlja porekla	Masa uzorka (g)	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})		
				^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
NG1	Prirodni gips	Severna Makedonija	176,1	7,1±0,5	2,3±0,3	19±4
NG2	Prirodni gips	Bosna i Hercegovina	191,3	8,43±0,22	1,5±0,4	160±4
GB1	Gips-karton ploča	Srbija	102,3	6,2±1,0	2,1±0,6	23±7
GB2	Gips-karton ploča	Bugarska	126,7	5,1±1,0	5,2±0,7	169±9
Opseg				5,10-8,43	1,5-5,2	19-169
srednja vrednost ± standardna devijacija				6,7±0,6	2,8±0,6	93±36

Tabela 8.11 Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th , i ^{40}K u uzorcima fosfogipsa proizvedenih u Srbiji.

Uzorak	Priprema	Masa uzorka (g)	Sadržaj vlage (%)	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})		
				^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
PG1	Sirov	150,9	15,8	488±15	2,8±1,0	< 12
PG2	Sirov	179,5	172	520±11	3,4±1,0	< 10
PG3	Sušen na 110 °C	190,6	<1	737±8	3,3±1,0	12±6
PG4	Sušen na 110 °C	183,3	<1	512±5	4,5±0,9	< 5
PG5	Sušen na 110 °C	207,2	<1	626±14	2,3±0,9	117±7
PG6	Sušen na 110 °C	228,6	<1	649±9	2,1±0,8	< 17
PG7	Sušen na 110 °C	219,8	<1	609±4	3,9±0,8	105±6
PG8	Sušen na 110 °C	236,6	<1	656±4	3,1±0,9	101±6
Opseg				488-737	2,1-4,5	< 5-117
Srednja vrednost ± standardna devijacija				600±28	3,18±0,26	47±16
Prosek u svetu				50¹	50¹	500¹

¹dato u Ref. (UNSCEAR,1993).

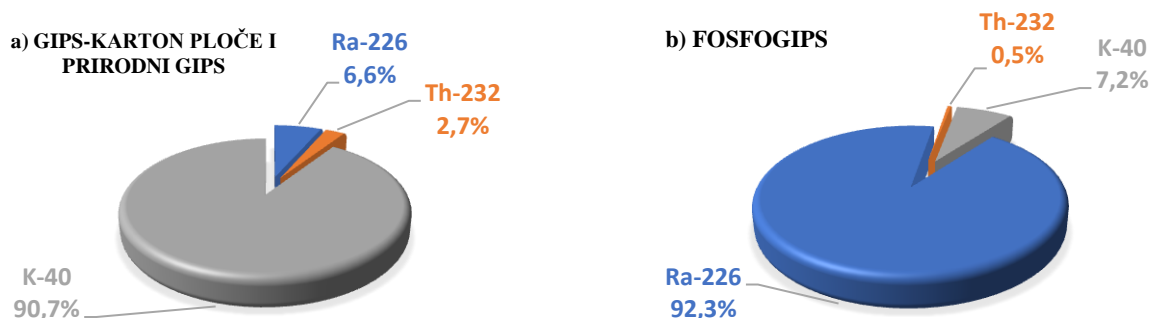
Izmerene koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u uzorcima prirodnog gipsa (NG) i komercijalnih gipsanih ploča (GB) dati su u Tabeli 8.10. Prosečne vrednosti za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K iznose 6,7±0,6 Bq kg^{-1} za ^{226}Ra , 2,8±0,6 Bq kg^{-1} za ^{232}Th i 93±36 Bq kg^{-1} za ^{40}K . Sve dobijene vrednosti su ispod prosečnih vrednosti za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za građevinske materijale u svetu (50 Bq kg^{-1} za ^{226}Ra , 50 Bq kg^{-1} za ^{232}Th i 500 Bq kg^{-1} za ^{40}K) (UNSCEAR,1993). Ove vrednosti su uporedive sa rezultatima za prirodni gips u svetu, Tabela 8.13. Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u odnosu na njihove prosečne vrednosti u uzorcima prirodnog gipsa i gips-karton ploča je 6,6 % za ^{226}Ra , 2,7 % za ^{232}Th i

90,7 % za ^{40}K , Slika 8.14a. Zastupljenost radionuklida u prirodnom gipsu je uporediva sa rezultatima datim u radu (Gul et al., 2014).

Izmerene koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 8 uzoraka fosfogipsa proizvedenog u Srbiji date su u Tabeli 8.11. Merenja su vršena za 2 sirova uzorka sa udelom vlage od 15,8 % i 17,2 % i 6 uzoraka sušenih na 110 °C. Dobijene prosečne vrednosti za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K iznose $600\pm 28 \text{ Bq kg}^{-1}$ za ^{226}Ra $3,2\pm 0,3 \text{ Bq kg}^{-1}$ za ^{232}Th i $47\pm 16 \text{ Bq kg}^{-1}$ za ^{40}K . Dobijene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra su 12 puta veće od prosečne vrednosti za građevinske materijale u svetu od 50 Bq kg^{-1} , dok su koncentracije aktivnosti ^{232}Th i ^{40}K ispod prosečnih vrednosti u svetu za građevinske materijale (UNSCEAR, 1993). Dobijene vrednosti koncentracije aktivnosti ^{226}Ra kod svih uzoraka fosfogipsa su iznad granice od 370 Bq kg^{-1} za korišćenje u građevinskoj industriji (USEPA, 2002). Dobijene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K su uporedive sa rezultatima u radovima autora (Cuadri et al., 2014; Lopez-Coto et al., 2014; Papastefanou et al., 2006; El-Bahi et al., 2017; Madruga et al., 2018; Nuccetelli et al., 2015), datih u Tabeli 8.13. Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u odnosu na njihove prosečne vrednosti u uzorcima fosfogipsa je 92,3 % za ^{226}Ra , 0,5 % za ^{232}Th i 7,2 % za ^{40}K , Slika 8.14b.

Tabela 8.12 Koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u uzorcima mešavina prirodnog gipsa (NG2) i fosfogipsa (PG4) iz Tabele 8.10 i 8.11, respektivno.

Uzorak	mas. % materijala u mešavini		M (g)	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})		
	NG	PG		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
NG2	100	0	191,3	$8,43\pm 0,22$	$1,5\pm 0,4$	160 ± 4
M1	99	1	233,7	$13,5\pm 0,3$	$2,77\pm 0,24$	159 ± 8
M2	98	2	237,7	$17,2\pm 0,3$	$2,89\pm 0,23$	156 ± 7
M3	97,5	2,5	228,8	$20,8\pm 0,5$	$3,2\pm 0,5$	150 ± 8
M4	95	5	240,6	$35,1\pm 0,4$	$3,56\pm 0,23$	142 ± 4
M5	90	10	236,0	$58,7\pm 0,7$	$3,08\pm 0,24$	126 ± 7
M6	80	20	225,7	108 ± 2	$4,0\pm 0,4$	110 ± 7
M7	75	25	240,6	132 ± 2	$3,59\pm 0,27$	102 ± 7
M8	50	50	220,1	264 ± 3	$3,7\pm 0,4$	85 ± 7
PG4	0	100	183,3	512 ± 5	$4,5\pm 0,9$	< 5



Slika 8.14 Relativna zastupljenost u odnosu na prosečne vrednosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u prirodnom gipsu i gips-karton pločama (a) i fosfogipsu (b) iz Tabele 8.10 i 8.11, respektivno.

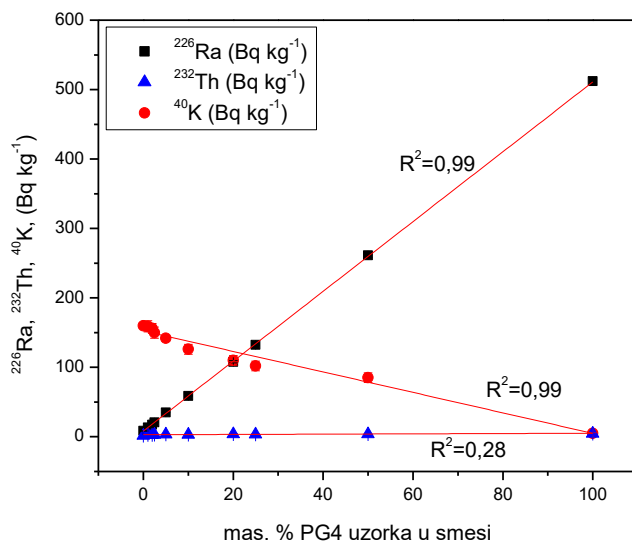
Zbog povećanog sadržaja ^{226}Ra u uzorcima fosfogipsa, napravljena je smeša prirodnog gipsa i fosfogipsa, čiji je nivo radioaktivnosti dalje praćen, a sve u cilju ispitivanja radioloških mogućnosti za potencijalne upotrebe fosfogipsa u građevinarstvu. Napravljeno je 8 smeša prirodnog gipsa (NG2 iz

Tabele 8.10) i fosfogipsa (PG4 iz Tabele 8.11) sa masenim udelom fosfogipsa od 1% do 50%. Dobijene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u smešama date su u Tabeli 8.12. Koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u svim mešavinama je ispod preporučenih 370 Bq kg^{-1} (USEPA, 2002). Na Slici 8.15 je prikazana korelacija između masenog (%) udela PG4 u mešavinama NG2 i PG4 i koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u mešavini. Dobijena je zavisnost sa korelacionim faktorima (R^2) 0,99, 0,28 i 0,99 za korelacije ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K sa udelom fosfogipsa u smeši, respektivno, što ukazuje na linearno povećanje koncentracije aktivnosti ^{226}Ra i smanjenje ^{40}K sa povećanjem udela PG4. Uspostavljena korelacija za ^{232}Th ukazuje na smanjenje koncentracija aktivnosti sa povećanjem udela PG4 u smeši ali sa dosta nižim korelacionim faktorom, usled niskih koncentracija aktivnosti $< 5 \text{ Bq kg}^{-1}$ u polaznim NG2 i PG4 uzorcima.

Tabela 8.13 Vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za fosfogips i prirodni gips u drugim zemljama u svetu. – opseg; (srednja vrednost \pm standardna devijacija).

Zemlje porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			Broj uzoraka	Reference
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K		
Fosfogips (PG)					
Južna Afrika	109 \pm 18	189 \pm 155	< 100	19	Msila et al., 2015
Španija	590 \pm 34	8,2 \pm 0,7	< 18	-	Cuadri et al., 2014
Španija	1054 \pm 32	13 \pm 3	59 \pm 7	-	Contreras et al., 2018
Španija	210-1280 (550 \pm 260)	-	-	42	Lopez-Coto et al., 2014
Brazil	18,34 \pm 0,34	17,43 \pm 0,21	Nedetektabilno	-	Narloch et al. 2019
Brazil	95 \pm 11	181 \pm 1	99 \pm 15	27	Borges et al., 2013
Kina	21,2	28,4	267,4	-	Ma et al., 2018
Turska	30,6-563,3	5,6-26,7	< MDA-19,4	20	Gezer et al., 2012
Grčka	261-688 (508)	2,7-11,1	5-95	10	Papastefanou et al., 2006
Indija	300	10	5	-	Sahu et al., 2014
Egipat	397-702 (550)	11.5-147.3 (79)	785-954 (870)	2	El-Bahi et al., 2017
Egipat	482 \pm 13,2	-	72 \pm 4,9	-	El-Didamony et al., 2012
Portugal	663-802 (735 \pm 70)	-	-	3	Madruga et al., 2018
Rusija	50,9 \pm 5,7	65,2 \pm 6,4	< 40	-	Nizevičiene et al., 2018
Češka Republika	115	95	25	22	Nucetelli et al., 2015
UK	700	60	20	66	Nucetelli et al., 2015
Tunis	215	15	-	-	Ajam et al., 2009
Indija	449-939 (818 \pm 100)	-	-	20	Haridasan et al., 2009
Jordan	302-442 (376 \pm 62)	4-7 (4 \pm 2)	23-88 (40 \pm 32)	-	Al-Jundi et al., 2008
Evropska Unija	390-1100	20-160	60-300	-	EC, 1999
Srbija	488-737 (600\pm28)	2.1-4.5 (3,18\pm0,26)	< 5-117 (47,38\pm16,44)	8	Ovo istraživanje
Prirodni gips (NG)					
Turska	0,8-36,8 (7,2)	1,3-18,2 (3,4)	9,0-188,0 (40,7)	38	Turhan, 2010
Portugal	2,0-6,6 (3,6 \pm 2,6)	-	13-19 (16,0 \pm 4,1)	3	Madruga et al., 2018
Brazil	1,91 \pm 0,10	1,14 \pm 0,06	Not detectable	-	Narloch et al. 2019
Pakistan	2,98-8,23 (4,59 \pm 2,10)	1,68-11,23 (4,47 \pm 3,1)	12,50-171,75 (72,58 \pm 4,1)	15	Gul et al., 2014
Mađarska	22 \pm 3	<LD	13 \pm 3	-	Kardos et al., 2015
Evropska Unija	10-70	10-100	80-200	-	EC, 1999
Bosna i Hercegovina	8,43\pm0,22	1,5\pm0,4	160\pm4	1	Ovo istraživanje
Severna Makedonija	7,1\pm0,5	2,3\pm0,3	19\pm4	1	Ovo istraživanje

Posle sušenja i mlevenja, 2 kg uzorka PG8 iz Tabele 8.11 je razdvojeno u 6 homogenih frakcija od > 2 mm do $< 0,063$ mm da bi se pokazao uticaj veličine čestica na distribuciju radionuklida u pojedinačnim frakcijama. Dobijene vrednosti raspodele koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za PG8 uzorak po frakcijama date su u Tabeli 8.14. Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za balk uzorak PG8 bile su $656 \pm 4 \text{ Bq kg}^{-1}$, $3,1 \pm 0,9 \text{ Bq kg}^{-1}$ i $101 \pm 6 \text{ Bq kg}^{-1}$, respektivno, date u Tabeli 8.11.



Slika 8.15 Korelacije između masenog udela fosfogipsa (PG4) i koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u mešavinama prirodnog gipsa i fosfogipsa.

Iz Tabele 8.14 se može videti da se distribucija ^{226}Ra u analiziranim frakcijama fosfogipsa raste sa smanjenjem veličine čestica u uzorku PG8. Distribucija ^{226}Ra se kreće od $416 \pm 16 \text{ Bq kg}^{-1}$ za frakciju > 2 mm do $926 \pm 11 \text{ Bq kg}^{-1}$ za frakciju $< 0,063$ mm. Distribucija ^{232}Th se kreće od $2,3 \pm 0,8 \text{ Bq kg}^{-1}$ za frakciju $< 2-1$ mm do $5,2 \pm 1,0 \text{ Bq kg}^{-1}$ za frakciju $< 0,063$ mm. Opseg ^{40}K se kreće od $62 \pm 6 \text{ Bq kg}^{-1}$ za frakciju > 2 mm do $162 \pm 11 \text{ Bq kg}^{-1}$ za frakciju $< 0,063$ mm. Efekat povećanja koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K sa smanjenjem veličine čestica u pojedinačnoj frakciji je primećen i u radovima (El-Didamonoy et al., 2012; Rutherford et al., 1996), što se može objasniti time da se radijum u najvećoj meri vezuje za najsitnije frakcije u balk uzorku.

Tabela 8.14 Distribucija radionuklida (Bq kg^{-1}) u uzorku PG8 razdvojenog po frakcijama i vrednosti faktora obogaćenja radionuklida u frakcijama (EF).

Frakcija (mm)	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			EF_{Ra}	EF_{Th}	EF_{K}
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K			
> 2	416 ± 16	$2,6 \pm 0,8$	62 ± 6	$0,63 \pm 0,02$	$0,84 \pm 0,35$	$0,61 \pm 0,07$
$< 2-1$	518 ± 10	$2,3 \pm 0,8$	86 ± 7	$0,79 \pm 0,02$	$0,74 \pm 0,34$	$0,85 \pm 0,09$
$< 1-0,5$	506 ± 14	$3,5 \pm 1,1$	80 ± 7	$0,77 \pm 0,02$	$1,13 \pm 0,48$	$0,79 \pm 0,08$
$< 0,5-0,25$	762 ± 16	$3,6 \pm 0,9$	111 ± 7	$1,16 \pm 0,03$	$1,19 \pm 0,45$	$1,10 \pm 0,10$
$< 0,25-0,063$	812 ± 12	$4,6 \pm 0,8$	146 ± 9	$1,24 \pm 0,02$	$1,48 \pm 0,50$	$1,45 \pm 0,12$
$< 0,063$	926 ± 11	$5,2 \pm 1,0$	162 ± 11	$1,41 \pm 0,02$	$1,68 \pm 0,58$	$1,60 \pm 0,14$
Opseg	416-926	2,3-5,2	62-162	0,63-1,41	0,74-1,68	0,61-1,60
Ukupno u balk uzorku	656 ± 4	3,1 ± 0,9	101 ± 6	1	1	1

Izvršena merenja koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u odnosu na veličinu frakcije pokazala su značajno smanjenje koncentracije aktivnosti čak i do 37 % niže vrednosti (za frakcije > 2 mm) u odnosu na

ukupnu koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra u PG8 balk uzorku. Dobijeni rezultat je uporediv sa rezultatom u radu (El-Didamony et al., 2012).

U Tabeli 8.14 date su vrednosti faktora obogaćenja (EF) radionuklida u različitim frakcijama u poređenju sa balk uzorkom fosfogipsa PG8. Faktori obogaćenja za pojedinačni radionuklid izračunati su korišćenjem relacije (8.6):

$$EF = \frac{\text{Sadržaj radionuklida u frakciji}}{\text{Sadržaj radionuklida u balk uzorku}} \quad (8.6)$$

Faktor obogaćenja (EF), kao bezdimenziona veličina, definiše se kao odnos sadržaja određenog radionuklida (koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th ili ^{40}K) u različitim frakcijama i koncentracije aktivnosti ovih radionuklida u balk uzorku fosfogipsa. Obogaćenje ^{226}Ra u frakciji $< 0,063$ mm je $1,41 \pm 0,05$ puta veće u poređenju sa vrednosti ^{226}Ra u balk PG8 uzorku. U ranije objavljenoj publikaciji autora (Rutherford et al., 1996) za određene manje frakcije u opsegu $20 - 53$ μm , nađeno je da obogaćenje ^{226}Ra čak oko 5 puta veće u odnosu na vrednost u balk uzorku. Najveće vrednosti faktora obogaćenja za ^{232}Th i ^{40}K takođe su uočene kod najmanje frakcije $< 0,063$ mm i iznosile su $1,68 \pm 0,58$ i $1,60 \pm 0,14$, respektivno, Tabela 8.14.

Dobijene vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}), gama indeksa (I_γ), unutrašnjeg i spoljašnjeg hazard indeksa (H_{in} , H_{ex}), jačine apsorbovane doze (D), godišnje efektivne doze (E) i brzine površinske eshalacije radona (E_S) za NG, GB, PG i uzorke mešavina prirodnog gipsa i fosfogipsa (M), date su u Tabeli 8.15.

Vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti su ispod preporučene vrednosti od 370 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 2000) za sve uzorke NG i GB i srednja vrednost iznosi $18 \pm 3 \text{ Bq kg}^{-1}$. Vrednosti gama indeksa su ispod preporučene vrednosti $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000) za sve uzorke i prosečna vrednost iznosi $0,067 \pm 0,014$. Vrednosti unutrašnjeg i spoljašnjeg hazard indeksa za sve uzorke su ispod preporučenih vrednosti $H_{in} \leq 1$ i $H_{ex} \leq 1$ (Narloch et al., 2019) i srednje vrednosti iznose $0,07 \pm 0,01$ i $0,05 \pm 0,01$, respektivno. Vrednosti jačine apsorbovane doze zračenja su ispod prosečne vrednosti za građevinske materijale u svetu od 55 nGy h^{-1} (UNSCEAR, 2008), i srednja vrednost iznosi $17 \pm 3 \text{ nGy h}^{-1}$. Takođe, godišnje efektivne doze za NG i GB uzorke su ispod preporučenih 1 mSv y^{-1} (Sl. Glasnik RS 36/18, 2018; EU, 2014) i prosečna vrednost iznosi $0,08 \pm 0,2 \text{ mSv y}^{-1}$, Tabela 8.15.

Za sve PG uzorke vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti su iznad preporučene vrednosti od 370 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 2000) i prosečna vrednost iznosi $607 \pm 29 \text{ Bq kg}^{-1}$. Vrednosti gama indeksa su iznad preporučene vrednosti $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000) za sve uzorke i prosečna vrednost iznosi $2,03 \pm 0,10$. Vrednosti unutrašnjeg i spoljašnjeg hazard indeksa za sve uzorke su iznad preporučenih vrednosti $H_{in} \leq 1$ i $H_{ex} \leq 1$ (Alali et al., 2018; Narloch et al., 2019) i srednje vrednosti iznose $3,26 \pm 0,15$ i $1,64 \pm 0,08$, respektivno. Dobijena prosečna vrednost jačine apsorbovane doze je iznad prosečne vrednosti za građevinske materijale u svetu od 55 nGy h^{-1} (UNSCEAR, 2008), i srednja vrednost iznosi $559 \pm 27 \text{ nGy h}^{-1}$. Takođe, godišnje efektivne doze za uzorke PG1 – PG8 u iznad preporučenih 1 mSv y^{-1} (Sl. Glasnik RS 36/18, 2018; EU, 2014) i prosečna vrednost iznosi $2,74 \pm 0,13$, Tabela 8.15.

Za sve uzorke mešavina prirodnog gipsa i fosfogipsa (M1 – M8) vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti su ispod preporučene vrednosti od 370 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 2000), i prosečna vrednost iznosi $96 \pm 28 \text{ Bq kg}^{-1}$. Vrednosti gama indeksa su iznad preporučene vrednosti $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000) za sve uzorke i prosečna vrednost iznosi $0,33 \pm 0,09$. Vrednosti unutrašnjeg hazard indeksa za sve uzorke su ispod preporučene vrednosti $H_{in} \leq 1$ (Narloch et al., 2019) osim uzorka M8 (sa udelom 50 % PG4 uzorka) i srednja vrednost iznosi $0,48 \pm 0,15$. Vrednosti spoljašnjeg hazard indeksa za sve uzorke mešavina su ispod preporučene vrednosti $H_{ex} \leq 1$ (Alali et al., 2018) i srednja

vrednost iznosi $0,26 \pm 0,08$. Vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja su kod uzoraka M1-M4 (sa udelom 1 – 5 % PG4 uzorka) ispod prosečne vrednosti za građevinske materijale u svetu od 55 nGy h^{-1} (UNSCEAR, 2008) dok su za uzorke M5-M8 (sa udelom 10 – 50 % PG4 uzorka) iznad te vrednosti, i srednja vrednost iznosi $88 \pm 26 \text{ nGy h}^{-1}$. Godišnje efektivne doze su u ispod preporučenih 1 mSv y^{-1} (Sl. Glasnik RS 36/18, 2018; EU, 2014) kod svih uzoraka, osim uzorka M8 (sa udelom 50% PG4 uzorka) i prosečna vrednost iznosi $0,44 \pm 0,13 \text{ mSv y}^{-1}$, Tabela 8.15.

Tabela 8.15 Vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (R_{eq}), gama indeksa (I_γ), unutrašnjeg i spoljašnjeg hazard indeksa (H_{in} , H_{ex}), jačina apsorbovanih doza gama zračenja (D), godišnjih efektivnih doza (E) i brzina površinske ekshalacije radona (E_S) za NG, GB, PG i uzorke mešavina prirodnog gipsa i fosfogipsa (M).

Uzorak	R_{eq} (Bq kg ⁻¹)	I_γ	H_{in}	H_{ex}	D (nGy h ⁻¹)	E (mSv y ⁻¹)	E_S (Bq m ⁻² h ⁻¹)
NG1	11,9±0,8	0,042±0,003	0,051±0,003	0,032±0,002	10,60±0,08	0,0520±0,0004	0,098±0,007
NG2	22,9±0,8	0,089±0,003	0,085±0,002	0,062±0,002	22,37±0,07	0,1097±0,0004	0,116±0,003
GB1	11,0±1,5	0,039±0,005	0,046±0,006	0,030±0,004	9,9±0,2	0,0485±0,0008	0,09±0,14
GB2	25,6±1,7	0,099±0,006	0,083±0,006	0,069±0,004	24,1±0,2	0,1182±0,0009	0,07±0,14
Opseg	11,0-25,6	0,039-0,099	0,046-0,085	0,030-0,069	9,9-24,1	0,0485-0,1182	0,07-0,12
sr. vr.±SD	18±3	0,067±0,014	0,07±0,01	0,05±0,01	17±3	0,08±0,2	0,09±0,01
PG1	493±15	1,64±0,05	2,65±0,08	1,33±0,04	453±2	2,222±0,009	3,93±0,12
PG2	526±11	1,75±0,04	2,83±0,06	1,42±0,03	483±1	2,369±0,007	4,18±0,09
PG3	743±8	2,48±0,03	4,00±0,04	2,01±0,02	683±1	3,349±0,005	5,93±0,06
PG4	519±5	1,73±0,02	2,79±0,03	1,40±0,01	476,4±0,6	2,337±0,003	4,12±0,04
PG5	638±15	2,14±0,05	3,42±0,08	1,73±0,04	588±2	2,884±0,008	5,04±0,11
PG6	653±9	2,18±0,03	3,52±0,05	1,77±0,02	601±1	2,947±0,005	5,22±0,07
PG7	620±4	2,07±0,02	3,31±0,02	1,67±0,01	570,3±0,5	2,798±0,002	4,87±0,03
PG8	668±4	2,24±0,02	3,58±0,02	1,81±0,01	615,1±0,5	3,017±0,002	5,28±0,03
Opseg	493-743	1,64-2,48	2,65-4,00	1,33-2,01	453-683	2,222-3,349	3,93-5,93
sr. vr.±SD	607±29	2,03±0,10	3,26±0,15	1,64±0,08	559±27	2,74±0,13	4,82±0,23
M1	29,6±1,0	0,112±0,003	0,116±0,003	0,080±0,002	28,27±0,09	0,1387±0,0004	0,186±0,004
M2	33,3±0,9	0,124±0,003	0,137±0,002	0,090±0,002	31,64±0,08	0,1552±0,0004	0,236±0,004
M3	36,9±1,2	0,135±0,004	0,156±0,004	0,100±0,003	34,81±0,12	0,1707±0,0006	0,286±0,007
M4	49,7±0,7	0,177±0,002	0,229±0,002	0,134±0,002	46,61±0,07	0,2287±0,0003	0,483±0,005
M5	72,8±1,1	0,253±0,004	0,355±0,004	0,197±0,003	67,60±0,11	0,3316±0,0006	0,807±0,010
M6	122±2	0,417±0,006	0,622±0,009	0,330±0,005	112,7±0,2	0,553±0,001	1,48±0,02
M7	145,3±1,4	0,493±0,005	0,750±0,006	0,393±0,003	133,9±0,2	0,657±0,001	1,82±0,02
M8	279±3	0,937±0,010	1,47±0,02	0,753±0,008	256,1±0,4	1,256±0,002	3,63±0,04
Opseg	30-279	0,112-0,937	0,12-1,47	0,08-0,75	28-256	0,14-1,26	0,19-3,63
sr. vr.±SD	96±28	0,33±0,09	0,48±0,15	0,26±0,08	88±26	0,44±0,13	1,12±0,39
Preporučena vrednoost/prosek u svetu	370 ²	<1 ²	<1 ³	<1 ⁴	55 ⁵	<1 ⁶	-

²preporučena vrednost data u Ref. (UNSCEAR, 2000);

³preporučena vrednost data u Ref. (Narloch et al., 2019);

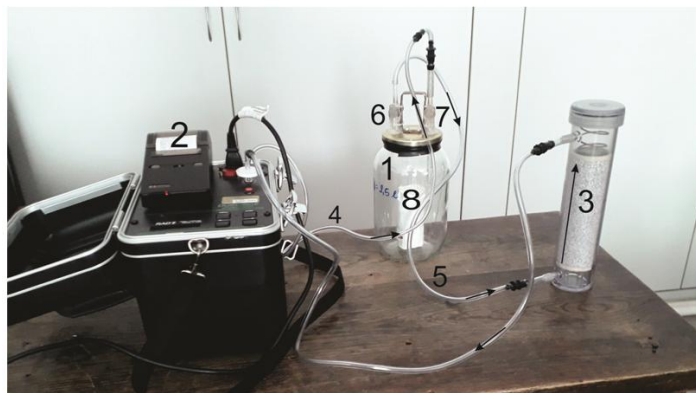
⁴preporučena vrednost data u Ref. (NEA-OECD, 1979);

⁵svetski prosek dat u Ref. (UNSCEAR, 2008);

⁶preporučena vrednost data u Ref. (EU, 2014); SD=standardna devijacija.

Da bi se odredila brzina površinske ekshalacije radona (E_S) i koncentracija aktivnosti radona u prostoriji (C_{Rn}) standardnih dimenzija pomoću relacija (3.11) i (3.22), respektivno, potrebno je poznavanje emanacionog koeficijenta (ε) čija se vrednost može odrediti prema relaciji (3.38). Za određivanje koeficijenta emanacije korišćen je aktivni uređaj RAD7 mereći koncentraciju radona iz pripremljenih uzoraka. Za merenja su korišćeni praškasti uzorci prirodnog gipsa i fosfogipsa umotani u mikro fiber filter papir dimenzija 5 cm u prečniku i visine 10 cm (Narloch et al., 2019). Za ovaj

eksperiment korišćena je eksperimentalna postavka prikazana na Slici 8.16. Uzorak je smešten u posebno konstruisanu komoru od debelog stakla sa metalnim zatvaračem zapremine $2,5 \times 10^{-3} \text{ m}^3$ sa dve slavine koje služe za puštanje radonskog gasa u sistem (elementi 1, 6 i 7 na Slici 8.16). Smer kruženja radona prikazano je strelicama. Vazduh sa radonom kruži kroz sistem brzinom $0,5 \text{ l min}^{-1}$ zahvaljujući pumpi koja je integralna komponenta aktivnog uređaja RAD7. Za apsorpciju vlage u sistemu korišćena je cev sa kalcijum sulfatom (CaSO_4), (element 3 na Slici 8.16).



Slika 8.16 (1) Komora od debelog stakla sa metalnim zatvaračem, (2) aktivni uređaj RAD7, (3) odvlaživač (CaSO_4), (4) i (5) plastične cevi, (6) i (7) slavine za puštanje radonskog gasa iz komore i (8) uzorak materijala čija se emanacija ^{222}Rn meri.

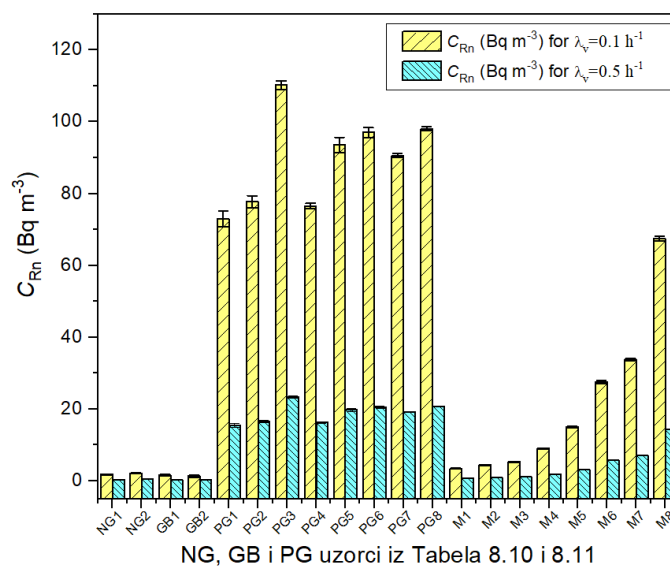
Vrednosti parametara potrebnih za određivanje koeficijenta emanacije radona, kao i dobijene vrednosti za uzorke NG2 i PG4 dati su u Table 8.16. Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u NG2 i PG4 uzorcima iznose $8,43 \pm 0,22$ i $512 \pm 5 \text{ Bq kg}^{-1}$, respektivno. Merenja ekshalacije radona su vršena od trenutka zatvaranja komore u vremenskom trajanju 4 dana u ciklusima po 1 h (ukupno 96 ciklusa po uzorku). Nakon iscrtavanja krive emanacije uz uslov $t \rightarrow \infty$ procenjene su ravnotežne koncentracije radona koje nastaju za oko 40 dana. Procenjena ravnotežna koncentracija radona uređajem RAD7 nakon snimanja krive emanacije za uzorak NG2 iznosi $44 \pm 10 \text{ Bq m}^{-3}$, dok za uzorak PG4 iznosi $1378 \pm 39 \text{ Bq m}^{-3}$. Dobijene vrednosti emanacionog koeficijenta radona su $(6,70 \pm 0,04)\%$ za NG2 uzorak i $(3,92 \pm 0,11)\%$ za PG4 uzorak, što je u saglasnosti sa normalnim granicama za emanacioni koeficijent radona (1 – 30)% (Bikit et al., 2011; Del Claro et al., 2017, Narloch, et al., 2019).

Tabela 8.16 Parametri korišćeni za određivanje koeficijenta emanacije za NG2 i PG4 uzorke i dobijene vrednosti koeficijenta emanacije radona ε (%).

Uzorak	M (g)	C_{Ra} (Bq kg^{-1})	C_{eq} (Bq m^{-3})	ε (%)
NG2	194,0	$8,43 \pm 0,22$	44 ± 10	$6,70 \pm 0,04$
PG4	171,8	512 ± 5	1378 ± 39	$3,92 \pm 0,11$

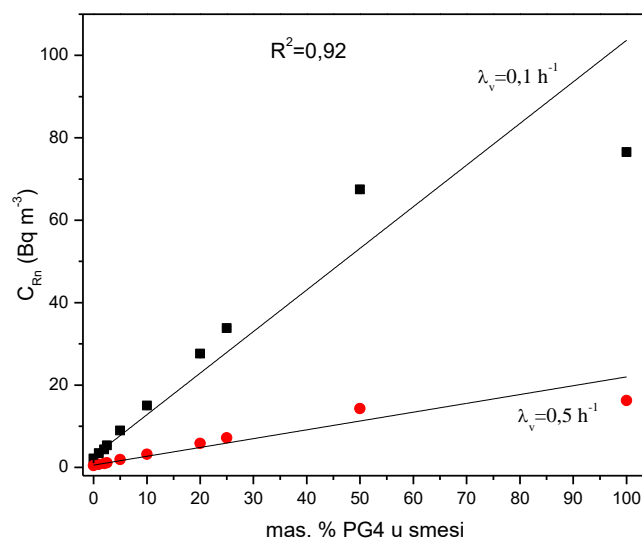
Za određivanje brzine površinske ekshalacije radona (E_S) za uzorke NG, GB kao i mešavine prirodnog gipsa i fosfogipsa korišćena je vrednost emanacionog koeficijenta dobijena za uzorak NG2 ($6,70 \pm 0,04\%$), dok je za PG uzorke korišćena vrednost ($3,92 \pm 0,11\%$) dobijena za uzorak fosfogipsa PG4. Dobijene vrednosti brzine površinske ekshalacije radona za sve uzorke date su u Tabeli 8.15. Za proračune je korišćena debljina gipsanih ploča $d=3 \text{ cm}$ i gustina $\rho = 1800 \text{ kg m}^{-3}$. Prosečna brzina površinske ekshalacije radona je iznosila $0,09 \pm 0,01 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ za NG i GB uzorke, $4,82 \pm 0,23 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$

za PG uzorke i $1,12 \pm 0,39 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ za uzorke mešavina prirodnog gipsa i fosfogipsa (srednja vrednost \pm standardna devijacija).



NG, GB i PG uzorci iz Tabela 8.10 i 8.11

Slika 8.17 Procenjene koncentracije radona u zatvorenoj prostoriji (C_{Rn}) od korišćenja prirodnog gipsa, komercijalnih gips-karton ploča, fosfogipsa, kao i mešavina prirodnog gipsa i fosfogipsa iz Tabela 8.10 i 8.11.

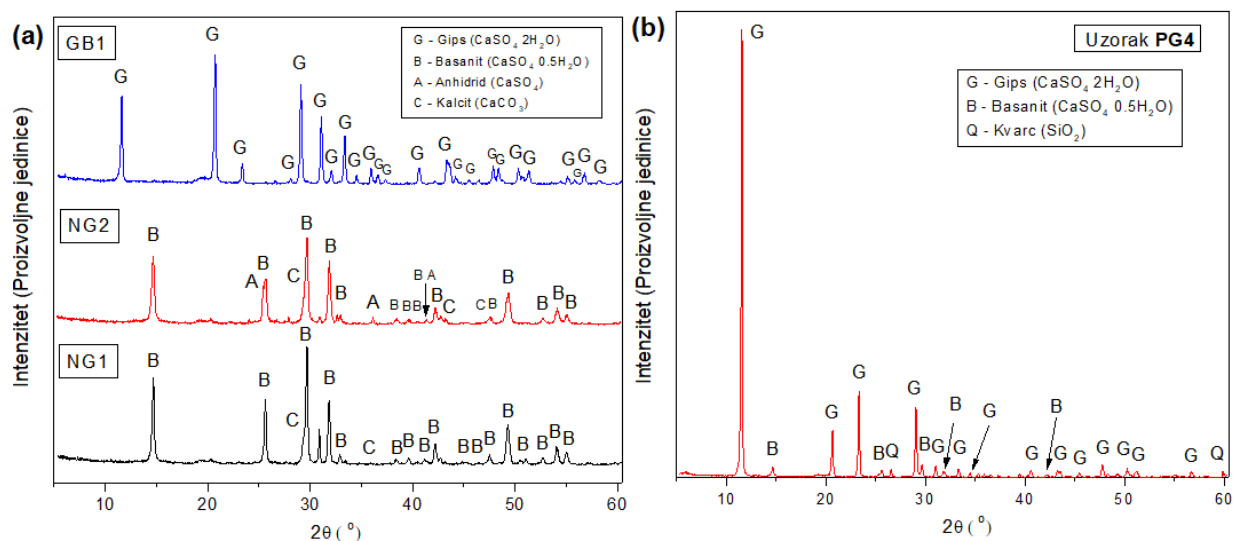


Slika 8.18 Korelacija između unutrašnjih koncentracija radona prostoriji (C_{Rn}) i udela PG4 fosfogipsa u smešama iz Tabele 8.12.

Procena koncentracije radona u zatvorenom prostoru (C_{Rn}) izvršena je korišćenjem relacije (3.22) za slabu ($\lambda_v = 0,1 \text{ h}^{-1}$) i normalnu provetrenost ($\lambda_v = 0,5 \text{ h}^{-1}$) u prostoriji (Aykamis et al., 2013). Odnos površine prekrivene gipsanim pločama i zapremine vazduha u prostoriji uzet je da ima vrednost $S/V = 2 \text{ m}^{-1}$. Procenjene vrednosti koncentracije radona za potencijalno izrađene gips-karton ploče od ovih materijala u zatvorenom prostoru prikazane su na Slici 8.17. Prosečna koncentracija radona u zatvorenom prostoru za lošu provetrenost iznosi $1,72 \pm 0,16 \text{ Bq m}^{-3}$, $90 \pm 5 \text{ Bq m}^{-3}$ i $21 \pm 7 \text{ Bq m}^{-3}$ za uzorke prirodnog gipsa (NG i GB uzorci), uzorke fosfogipsa (PG) i smeše uzoraka prirodnog gipsa (M) i fosfogipsa, respektivno. Dobijene vrednosti za sve uzorke bile su ispod donje granice od 100 Bq m^{-3}

preporučene od strane Svetske zdravstvene organizacije (WHO, 2009), osim uzorka PG3 gde je koncentracija radona u zatvorenom prostoru iznosila $110,2 \pm 1,2 \text{ Bq m}^{-3}$. Prosečne vrednosti unutrašnje koncentracije radona za normalnu provetrenost iznose $0,36 \pm 0,03 \text{ Bq m}^{-3}$ za NG i GB uzorke, $19,0 \pm 0,9 \text{ Bq m}^{-3}$ za PG uzorke i $4,4 \pm 1,5 \text{ Bq m}^{-3}$ za mešavine NG i PG uzoraka, respektivno. Sve dobijene vrednosti za normalnu provetrenost bile su ispod granice od 100 Bq m^{-3} (WHO, 2009). Dobijene koncentracije radona u zatvorenom prostoru za PG uzorke pri normalnoj provetrenosti su uporedive sa rezultatima iz prethodne studije za upotrebu PG u zgradama (Maduar et al., 2011). Na Slici 8.18 prikazana je korelacija između mas. % PG4 u smešama i procenjenih unutrašnjih koncentracija radona u prostoriji potencijalno obložene gipsanim pločama izrađenih od ovakvih smeša NG i PG. Dobijena je jaka linearna zavisnost sa korelacionim faktorom $R^2 = 0,92$.

Dosadašnja razmatranja o radiološkoj karakteristici fosfogipsa proizvedenog u Srbiji uz procene radijacionog rizika od njegovog korišćenja daju sledeće zaključke. Prosečna koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u PG uzorcima je oko 600 Bq kg^{-1} , što je oko 90 puta veće od prosečne koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u GB uzorcima korišćenim u Srbiji. Primetno je povećanje distribucije ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K sa smanjenjem veličine čestica u PG uzorku. Može se zaključiti da koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u PG uzorku mogu biti smanjene čak i do 37% za određenu veličinu frakcija ($> 2 \text{ mm}$) od vrednosti za balk uzorak, što je važno za praktičnu upotrebu fosfogipsa. Što se tiče potencijalne upotrebe fosfogipsa za proizvodnju gips-karton ploča, prema dobijenim vrednostima hazard indeksa i godišnjih efektivnih doza zračenja utvrđeno je da postoji značajan radijacioni rizik za izloženost gama zračenju pri potencijalnom korišćenju fosfogipsa u enterijeru. Stoga se preporučuje upotreba fosfogipsa u mešavini sa prirodnim gipsom, čime se nivo radioaktivnosti smanjuje, ali i optimizuje radijacioni rizik na prihvatljiv nivo. Za sve PG uzorke u slučaju normalne provetrenosti prostorije, može se zaključiti da nema značajne izloženosti ljudi radonu. Sve vrednosti dobijene za normalnu provetrenost u prostoriji su ispod donje granice koju preporučuje Svetska zdravstvena organizacija od 100 Bq m^{-3} . Sve dobijene vrednosti unutrašnje koncentracije radona pri normalnoj provetrenosti prostorije neznatno iznad vrednosti na otvorenom prostoru.



Slika 8.19 (a) XRD šema uzoraka prirodnog gipsa (NG1 i NG2) i komercijalne gipsane ploče (GB1) iz Tabele 8.10; (b) XRD šema PG4 uzorka fosfogipsa iz Tabele 8.11.

Na Slici 8.19a prikazana je XRD analiza uzoraka prirodnog gipsa NG1, NG2 i komercijalne gipsane ploče GB1 iz Tabele 8.10. Zbog niskog intenziteta pikova, XRD analiza uzorka fosfogipsa

PG4 (koji je korišćen za pravljenje smeša) prikazana je odvojeno na Slici 8.11b. Analiza i identifikacija mineralnih faza u XRD šemama izvršena je korišćenjem *ICDD* baze podataka za rendgensku difrakciju za praškaste uzorke sa oznakama: za Gips 33-0211 i 76-1746; Basanit 41-0224; Anhidrid 72-0916; Kalcit 72-1937 i Kvarc 85-1780. Glavne mineralne faze prisutne u uzorcima prirodnog gipsa NG1 i NG2 su basanit ($\text{CaSO}_4 \cdot 0,5\text{H}_2\text{O}$), anhidrid (CaSO_4) i kalcit (CaCO_3), dok je gips ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) glavna mineraloška faza u uzorku komercijalne gipsane ploče GB1. Prisustvo gipsa, basanita i kvarca (SiO_2) kao propratne nečistoće zabeleženo je u uzorku fosfogipsa PG4. Uočene kristalne faze prisutne u uzorku fosfogipsa PG4 su slične sa XRD analizom fosfogipsa iz Kine (Li et al., 2015).

Tabela 8.17 XRF elementarna analiza NG, GB i PG uzoraka izražena u mas. %.

Uzorak	Na	Mg	Al	Si	P	S	K	Ca	Ti	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	Sr	Zr
Prirodni gips (NG)																
NG1	0,13	0,85	0,31	0,28	0,001	22,16	0,047	29,41	0,001	0,004	0,066	0,002	0,004	0,005	0,14	0,04
NG2	0,52	0,78	0,50	1,38	0,09	21,33	0,52	27,98	0,009	0,004	0,189	0,002	0,002	0,001	0,09	0,03
Gips-karton ploče (GB)																
GB1	0,21	0,22	0,25	0,47	0,07	22,05	0,08	29,51	0,002	0,002	0,11	-	0,008	0,004	0,02	0,006
GB2	0,45	0,18	0,17	0,19	0,011	22,41	0,59	29,28	0,002	0,005	0,038	0,001	0,004	0,005	0,02	0,007
Fosfogips (PG)																
PG4	0,008	0,25	0,10	1,42	0,33	21,31	0,012	29,75	0,002	0,003	0,023	0,001	0,003	0,004	0,07	0,03
PG5	0,24	0,38	0,22	4,48	0,36	20,36	0,41	25,79	0,002	0,005	0,032	0,002	0,001	0,003	0,08	0,02
PG6	0,008	0,42	0,004	6,35	0,40	20,02	0,053	24,19	0,005	0,003	0,037	0,001	-	0,003	0,07	0,02
PG7	0,26	0,45	0,19	1,35	0,26	22,18	0,37	27,51	0,002	0,003	0,034	0,002	0,001	0,002	0,09	0,03
PG8	0,21	0,23	0,26	3,28	0,23	20,95	0,35	27,34	0,001	0,003	0,023	0,002	0,003	0,004	0,06	0,03

U Tabeli 8.17 data je XRF analiza glavnih elemenata prisutnih u NG, GB i nekim PG uzorcima iz Tabela 8.10 i 8.11. Primećeno je da su glavni elementi - S i Ca bili prisutni u svim uzorcima sa udelom $S > 20\%$ i $Ca > 24\%$. Ostali analizirani elementi bili su znatno manje zastupljeni. Takođe, može se zaključiti da PG uzorci sadrže mnogo više Si i P kao nečistoće iz hemijskih tretmana u poređenju sa NG i GB uzorcima. Da bi se uporedile vrednosti hemijske karakterizacije, elementarna analiza je izražena preko oksida glavnih elemenata i data u Tabeli 8.18. U Tabeli 8.19 data je hemijska karakterizacija fosfogipsa i prirodnog gipsa proizvedenih u drugim zemljama u svetu. Poređenjem rezultata datih u Tabelama 8.18 i 8.19 uočava se da fosfogips analiziran u ovoj studiji sadrži dosta više kvarca (peska) kao propratne nečistoće čak do 13,6%, dok su vrednosti za ostale okside uporedive sa vrednostima za fosfogips i prirodni gips u drugim zemljama.

Tabela 8.18 XRF elementarna analiza NG, GB i PG uzoraka u izražena u mas. %, data za glavne okside analiziranih elemenata.

Uzorak	Na_2O	MgO	Al_2O_3	SiO_2	P_2O_5	SO_3	K_2O	CaO	Ukupno
Prirodni gips (NG)									
NG1	0,18	1,40	0,59	0,60	0,0023	55,18	0,06	41,17	99,17
NG2	0,70	1,29	0,95	2,95	0,21	53,11	0,62	39,17	99,00
Gips-karton ploče (GB)									
GB1	0,28	0,36	0,47	1,01	0,16	54,90	0,10	41,31	98,60
GB2	0,61	0,30	0,32	0,41	0,03	55,80	0,71	40,99	99,16
Fosfogips (PG)									
PG4	0,01	0,41	0,19	3,04	0,76	53,06	0,01	41,65	99,13
PG5	0,32	0,63	0,42	9,59	0,82	50,70	0,49	36,11	99,07
PG6	0,01	0,69	0,01	13,59	0,92	49,85	0,06	33,87	99,00
PG7	0,35	0,74	0,36	2,89	0,60	55,23	0,44	38,51	99,12
PG8	0,28	0,38	0,49	7,02	0,53	52,17	0,42	35,48	96,76

Tabela 8.19 Hemijski sastav fosfogipsa i prirodnog gipsa u drugim zemljama u svetu.

Zemlja porekla	Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	P ₂ O ₅	SO ₃	K ₂ O	CaO	Reference
Fosfogips (PG)									
Španija	0,13	0,04	0,40	2,40	0,95	52,41	0,03	40,30	Cuadri et al., 2014
Južna Afrika	-	-	0,23	1,37	1,28	51,01	-	43,65	Mashifana et al., 2019
Rusija	-	0,04	0,13	0,37	0,82	53,48	-	38,60	Nizevičiene et al., 2018
Kina	0,068	0,04	0,47	6,41	0,58	41,39	0,05	30,32	Ma et al., 2018
Malezija	-	0,97	0,16	0,93	-	42,00	0,03	37,00	Chandara et al., 2009
Egipat	0,14	-	-	2,27	1,56	41,10	0,08	30,20	El-Didamony et al., 2012
Prirodni gips (NG)									
Malezija	-	-	0,63	1,90	-	41,00	0,13	35,00	Chandara et al., 2009
Italija	-	3,66	0,85	3,00	0,01	36,20	-	30,10	Telesca et al., 2013

8.3 Sirovinski materijali u keramičkoj industriji

Osnovne komponente koje se koriste za proizvodnju keramičkih materijala su aluminosilikati, silikati, karbonati i oksidi. Za proizvodnju tradicionalne građevinske keramike se koriste kaolini, gline, feldspati, kvarcni pesak, dolomit, kreda, glinica i dr. Za izradu glazura kao zaštitnog i estetskog sloja se koriste feldspati, dolomit, kvarc, kalcit kao i minerali cirkonijuma (Terzić et al., 2007).

Polazna sirovina (kompozit) za klasičnu keramiku uvek sadrži tri komponente: kaolin i glinu, kao osnovne plastične sirovine, topitelj (feldspati) koji reguliše termičku obradu i opošćivač (obično kvarcni pesak –SiO₂) koji smanjuje plastičnosti, olakšava oblikovanje i sušenje. Ove mineralne sirovine koje se koriste u tehnologiji klasične keramike su uglavnom silikati i aluminosilikati, a manjim delom karbonati i sulfati (Milošević, 1998).

8.3.1 Keramička i opekarska glina

Gline predstavljaju monomineralne ili polimineralne sirovine i obično su sedimentnog porekla, po sastavu hidratizirani aluminosilikati. Oko 79% gline proizvedene u svetu se koristi u proizvodnji građevinske keramike (Milošević, 1998). Gline se obično dele na kaolinske gline, plastične gline, opekarske gline les i crvenicu (Kiš, 2001). U ovom istraživanju će biti razmatrane i analizirane samo kaolin i opekarske gline.

Kaolin je alumino-slimikatna glina (obično bele boje) hemijskog sastava Al₂O₃·2SiO₂·2H₂O, što znači da se sastoji od dva sloja kristala (silicijum-kiseonik tetraedarski sloj spojen sa glinicom oktaedarskog sloja) povezanih naizmenično. U svom sastavu kaolin obično sadrži minerale kaolinit, kvarc kao liskun i ostatke drugih stena (Kiš, 2001). Kaolin je sirovina koja se intenzivno koristi kao plastična osnova u keramičkoj industriji za proizvodnju keramičkih pločica, a naročito je pogodan za izradu porcelana i vatrostalne keramike (Mokobia 2011; Turhan 2009; Walley El-Dine et al., 2004). U keramičkim masama udeo kaolina se kreće oko 50%. Sve keramičke gline, sadrže mineral kaolinit oko 99 masenih % (Tecilazić Stevanović, 1973). Mineral kaolinit je nosilac vatrostalnosti zbog visoke tačke topljenja od 1750 °C. Pri pečenju kaolinita u rasponu od 300 do 800 °C dolazi do postepenog raspadanja, dolazi do odvajanja vode i stvaranja tzv. metakaolinita. Daljim žarenjem na oko 900 °C dolazi do stvaranja silimanita, koji na oko 1100 °C prelazi u mulit (Liebscher and Willert, 1967).

Za proizvodnju zidnih keramičkih pločica koriste se belo-žute vatrostalne i crveno obojene teško i lako topljive gline, koje kao primese ne sadrže gips, karbonate i pirit. Za proizvodnju ovih keramičkih pločica preporučuje se kaolinitno-ilitni mineraloški sastav bez dodatnih primesa. Kod proizvodnje podnih keramičkih pločica koriste se vatrostalne i teško topljive gline u intervalu sinterovanja od 600

do 1000°C. Sadržaj kvarca ne sme biti manji od 16%, a sadržaj oksida gvožđa ne veći od 12%. Preporučeni sadržaj mineralnih faza kaolinitno-ilitna i ilitno-kaolinitna ali ne i montmorilonitska glina (Milošević, 1998).

Opekarska glina je najčešća glina za proizvodnju tipičnih građevinskih materijala: blokova, cigle i crepa. Njene osobine mogu da variraju u širokom opsegu. Obično sadrže veliki broj primesa kao što su oksidi gvožđa kalcijum karbonata, magnezijum karbonata, dolomite, a nekada i gipsa. Jedini uslov koji ove gline, kojih ima u izobilju u našoj zemlji, treba da ispune jeste plastičnost za oblikovanje i postizanje vitifikacije u temperaturnom opsegu od 800 do 1100 °C. Nalazišta opekarskih glina se obično nalaze u blizini fabrika za proizvodnju opeke (Tecilazić Stevanović, 1973).

Srbija je tradicionalno poznata po proizvodnji građevinskih blokova i fasadne cigle. Jedna od najvećih fabrika za ovu vrstu proizvodnje je “Zorka Opeka” iz Donjeg Crniljeva u čijoj se blizini nalazi i površinski kop opekarske gline “Jovanovića Brdo” sa koga se vrši eksploatacija gline poslednjih 40 godina. Izgled površinskog kopa opekarske kaolinitno-ilitne gline firme “Zorka Opeka” iz Donjeg Crniljeva prikazan je na Slici 8.20. Sa ovog nalazišta vrši se eksploatacija 4 vrste opekarske gline označene kao: crvena, šarena, žuta i tamna glina. Žuta glina je osnovna komponenta za proizvodnju opeke u ovoj fabrici. Udeo žute gline u kompozitnoj smeši pri proizvodnji građevinskih blokova je oko 50%, crvene i šarene oko 30% i tamne 20%. Za proizvodnju fasadne cigle udeo crvene i šarene gline je oko 60%, žute 20%, tamna 10% uz dodatak humusa od oko 10%. Za proizvodnju obojene opeke vrši se dodatak manganskih aditiva od oko 3%.

U daljem tekstu biće razmatrana radiološka svojstva kaolina i opekarske gline sa aspekta radioaktivnosti i procene radijacionog rizika za radnike koji se izloženi u keramičkim industrijama prilikom rada sa ovim sirovinskim materijalima. Data je mineraloška i hemijska karakterizacija 4 vrste opekarske gline “Jovanovića brdo”.



Slika 8.20 Izgled površinskog kopa opekarske gline “Jovanovića brdo” (Donje Crniljevo, Srbija). Izgled analiziranih uzoraka 4 vrste opekarskih glina sušenih 6-8 h na 105 °C pripremljenih za gama spektrometrijska merenja (1) tamna glina, (2) šarena glina, (3) crvena glina i (4) žuta glina.

U Tabeli 8.20 data je lista 14 analiziranih uzoraka sirovog kaolina koji se koriste u srpskim keramičkim industrijama sa zemljama uvoza, izmerenim vrednostima koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K i vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}). Iz Tabele 8.20 se može videti da je glavna zemlja uvoza kaolina u Srbiji Bosna i Hercegovina, odnosno rudnik “Motajica”, na severu Republike Srpske.

Vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti, gama indeksa, alfa indeksa, spoljašnjeg i unutrašnjeg hazard indeksa, jačine apsorbovane doze i godišnje efektivne doze za kaolin u drugim zemljama, kao i poređenje sa vrednostima za glinu, feldspat i kvarc kao sirovine koje se koriste u keramičkim industrijama, date su u Tabeli 8.30.

Tabela 8.20 Lista 14 uzoraka kaolina sa zemljama porekla, izmerenim vrednostima koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K i vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}).

Broj uzorka	Naziv uzorka	Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			Ra_{eq}
			^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
1	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	272±15	114±10	1000±80	512±22
2	Sirovi kaolin	Bosnia and Herzegovina	139±9	86±8	1220±90	356±16
3	Kaolin-premier	Češka Republika	77±9	163±21	220±70	327±32
4	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	112±5	73±5	1090±60	300±10
5	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	125±9	85±7	1190±80	338±15
6	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	118±5	75±5	1110±60	311±10
7	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	107±10	74±13	890±130	281±23
8	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	112±4	105±5	1110±70	347±10
9	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	123±7	86±6	1210±90	339±13
10	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	150±10	118±11	800±70	380±19
11	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	159±6	122±8	830±60	397±14
12	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	131±10	99±8	1230±80	367±16
13	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	125±7	91±5	1170±70	345±11
14	Sirovi kaolin	Bosna i Hercegovina	124±9	109±8	1170±80	370±16
Opseg			77-272	73-163	220-1230	281-512
Srednja vrednost±standardna devijacija			134±44	100±25	1017±271	355±55
Prosečna/preručena vrednost			50¹	50¹	500¹	370²

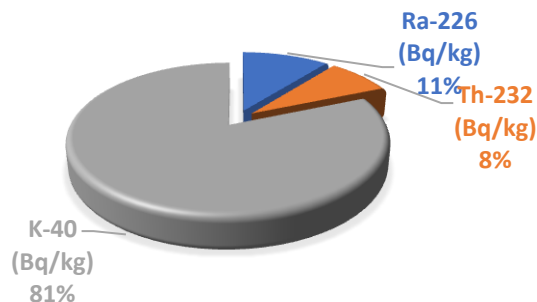
¹Prosečna vrednost za građevinske materijale u svetu data u Ref. (UNECEAR, 1993),

²Preporučena vrednost data u Ref. (NEA-OECD, 1979).

U ispitivanim uzorcima kaolina vrednosti koncentracije aktivnosti ^{226}Ra kreću se u rasponu od 77±9 Bq kg^{-1} (uzorak broj 3 iz Češke Republike) do 272±15 Bq kg^{-1} (uzorak broj 1, iz Bosne i Hercegovine). Koncentracija aktivnosti ^{232}Th izmerena je u opsegu od 73±5 Bq kg^{-1} (uzoraka broj 4 iz Bosne i Hercegovine) do 163±21 Bq kg^{-1} (uzorak broj 3 iz Češke Republike). Uzorak broj 12 iz Bosne i Hercegovine sadrži najveću koncentraciju ^{40}K koja iznosi 1230±80 Bq kg^{-1} , dok je najmanja koncentracija izmerena kod uzorka broj 3 iz Češke Republike 220±70 Bq kg^{-1} , Tabela 8.20. Prosečne vrednosti koncentracija aktivnosti iznose 134±44 Bq kg^{-1} , 100±25 Bq kg^{-1} i 1017±271 Bq kg^{-1} za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , respektivno. Dobijene prosečne vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K su 2,68, 2,0 i 2,03 puta, veće od prosečnih vrednosti za građevinske materijale od 50 Bq kg^{-1} , 50 Bq kg^{-1} i 500 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 1993), respektivno. Izmerene vrednosti su uporedivi sa rezultatima datim u radovima (Chang et al., 2008; Turhan, 2009), Tabela 8.30. Prosečna relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u uzorcima kaolina iznosi: 11%, 8% i 81%, respektivno, Slika 8.21.

Vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}) za uzorke kaolina su ispod preporučene vrednosti od 370 Bq kg^{-1} (NEA-OECD, 1979) kod većine uzoraka (osim uzoraka broj 1, 10 i 11). Dobijeni rezultati su uporedivi sa kaolinom iz Turske (Turhan, 2009), datim u Tabeli 8.20.

Dobijene vrednosti gama indeksa za sve uzorke kaolina su iznad preporučene vrednosti $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000) i uporedive su sa rezultatima za kaoline dati u radovima (Todorović et al., 2014a; Turhan, 2009). Vrednosti alfa indeksa kod 13/14 uzoraka kaolina su ispod preporučene vrednosti od $I_\alpha \leq 1$ (Joel et al., 2018), Tabela 8.21, i uporedivi su sa vrednostima datim u radu (Turhan et al., 2009). Vrednosti unutrašnjeg hazard indeksa kod svih uzoraka su iznad preporučene vrednosti $H_{in} \leq 1$ (Narloch et al., 2019) za sve uzorke kaolina, i dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima u radu atutora (Agaguunodo et al., 2018). Dobijene vrednosti spoljašnjeg hazard indeksa prekoračuju preporučenu vrednost $H_{ex} \leq 1$ (Alali et al., 2018) kod tri uzorka iz Bosne i Hercegovine (uzorci broj 1, 10 i 11) i uporedive su sa rezultatima datih u radu (Walley El-Dine et al., 2004).



Slika 8.21 Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u 14 uzoraka kaolina koji se koristi u srpskim keramičkim industrijama.

Prosečna vrednosti jačine apsorbovane doze za svih 14 uzoraka kaolina iznosi $40 \pm 6 \text{ nGy h}^{-1}$ i ispod je prosečne vrednosti od 55 nGy h^{-1} za građevinske materijale u svetu (UNSCEAR, 2008), Tabela 5. Dobijene vrednosti jačina apsorbovanih doza su uporedive sa rezultatima iz istraživanja (Agaguunodo et al., 2018; Todorović et al., 2014a) Procenjene godišnje efektivne doze za profesionalno izložena lica, prema relaciji 6.5b koja u keramičkoj industriji provedu oko 800h godišnje su daleko ispod preporučene vrednosti od 20 mSv godišnje (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 86/11 i 50/18, 2018). Dobijeni rezultati godišnjih efektivnih doza su uporedivi sa rezultatima u radovima (Agaguunodo et al., 2018; Todorović et al., 2014a), dati u Tabeli 8.30.

Tabela 8.21 Vrednosti gama indeksa (I_γ), alfa indeksa (I_α), unutrašnjeg i spoljašnjeg hazard indeksa (H_{in} , H_{ex}), jačine apsorbovane doze (D) i godišnje efektivne doze (E) za 14 uzoraka kaolina koji se koriste u srpskim keramičkim industrijama. (SD = Standardna Devijacija)

Broj uzoraka	I_γ	I_α	H_{in}	H_{ex}	D (nGy h^{-1})	E ($\mu\text{Sv y}^{-1}$)
1	1,85±0,08	1,36±0,08	2,12±0,09	1,38±0,06	58,2±2,3	32,6±1,3
2	1,29±0,06	0,70±0,05	1,34±0,06	0,96±0,04	40,4±1,6	22,6±0,9
3	1,14±0,11	0,39±0,05	1,1±0,1	0,88±0,09	34,2±2,1	19,1±1,8
4	1,1±0,04	0,56±0,03	1,11±0,04	0,81±0,03	34,1±0,9	19,1±0,5
5	1,24±0,05	0,63±0,05	1,25±0,06	0,91±0,04	38,3±1,5	21,5±0,8
6	1,14±0,04	0,59±0,03	1,16±0,04	0,84±0,03	35,3±0,9	19,8±0,5
7	1,1±0,08	0,54±0,05	1,05±0,08	0,76±0,06	31,7±2,2	17,8±1,2
8	1,27±0,04	0,56±0,02	1,24±0,03	0,94±0,03	38,8±0,9	21,7±0,5
9	1,25±0,05	0,62±0,04	1,25±0,05	0,92±0,04	38,4±1,2	21,5±0,7
10	1,36±0,07	0,75±0,05	1,43±0,07	1,03±0,05	42,2±1,9	23,6±1,1
11	1,42±0,05	0,80±0,03	1,50±0,05	1,07±0,04	44,1±1,3	24,7±0,7
12	1,34±0,06	0,66±0,05	1,35±0,06	0,99±0,04	41,4±1,6	23,2±0,9
13	1,26±0,04	0,63±0,04	1,27±0,04	0,93±0,03	39,0±1,1	21,8±0,6
14	1,35±0,06	0,62±0,05	1,33±0,06	1,00±0,04	41,4±1,6	23,2±0,9
Opseg	1,1-1,85	0,39-1,36	1,05-2,12	0,76-1,38	31,7-58,2	17,8-32,6
Prosek±SD	1,29±0,19	0,70±0,22	1,32±0,26	0,96±0,15	40±6	22,3±0,9
Preporučene/prosečna vrednost	$\leq 1^3$	$\leq 1^4$	$\leq 1^5$	$\leq 1^6$	55^7	$\leq 20000^8$

³Preporučena vrednost data u Ref. (UNSCEAR, 2000); ⁴Preporučena vrednost data u Ref. (Joel et al., 2018); ⁵Preporučena vrednost data u Ref. (Narloch et al., 2019); ⁶Preporučena vrednost data u Ref. (Alali et al., 2018); ⁷Prosečna vrednost za građevinske materijale u svetu data u Ref. (UNSCEAR, 2008); ⁸Preporučena vrednost za radnike data u Ref. (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 86/11 i 50/18, 2018).

Vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K i radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}) za 4 vrste opekarske gline sa površinskog kopa "Jovanovića brdo" iz Donjeg Crniljeva, kao i opekarskog kompozita dati su u Tabeli 8.22. Najviše koncentracije aktivnosti sva tri

radionuklida izmerena su u žutoj glini. Kao što se može videti vrednosti koncentracija aktivnosti ovih radionuklida kod svih uzoraka glina su oko prosečnih vrednosti za građevinske materijale dati u (UNSCEAR, 1993) i dosta su niže u odnosu na analizirane uzorke kaolina. Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ovih radionuklida su uporedive sa rezultatima za gline iz Severne Koreje, Turske, Indije, Kameruna i Nigerije, dati u Tabeli 8.30. Zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u svakoj od analiziranih opekarskih glina data je na Slici 8.22, gde se može videti da su ova tri radionuklida u približno istoj meri zastupljena u sve 4 vrste gline.

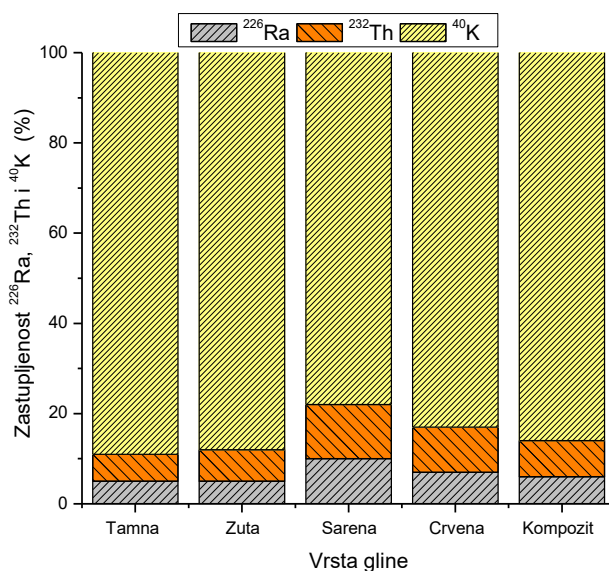
Vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti su ispod preporučene vrednosti od 370 Bq kg^{-1} (NEA-OECD, 1979) kod svih uzoraka i uporedive su sa rezultatima u radu (Joshua et al., 2009; Ngachin et al., 2007; Raghu et al., 2017), Tabela 8.30.

Tabela 8.22 Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 4 vrste opekarske gline sa kopa “Jovanovica brdo”, Donje Crniljevo, Srbija, i kompozita koji se koristi za proizvodnju opeke.

Vrsta gline	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			Ra_{eq} (Bq kg^{-1})
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
Tamna	36 ± 2	40 ± 2	598 ± 26	139 ± 5
Žuta	47 ± 3	63 ± 3	800 ± 40	199 ± 7
Šarena	46 ± 2	55 ± 2	367 ± 16	153 ± 4
Crvena	38 ± 3	54 ± 4	435 ± 19	149 ± 7
Kompozit	40 ± 4	53 ± 2	551 ± 24	158 ± 6
Opseg	36-47	40-63	367-800	139-199
Prosek±SD	41±2	53±4	550±75	160±21
Prosečna/preporučena vrednost	50^1	50^1	500^1	370^2

¹prosečna vrednost za građevinske materijale u svetu data u Ref. (UNSCEAR, 1993);

²preporučena vrednost data u Ref. (NEA-OECD, 1979).



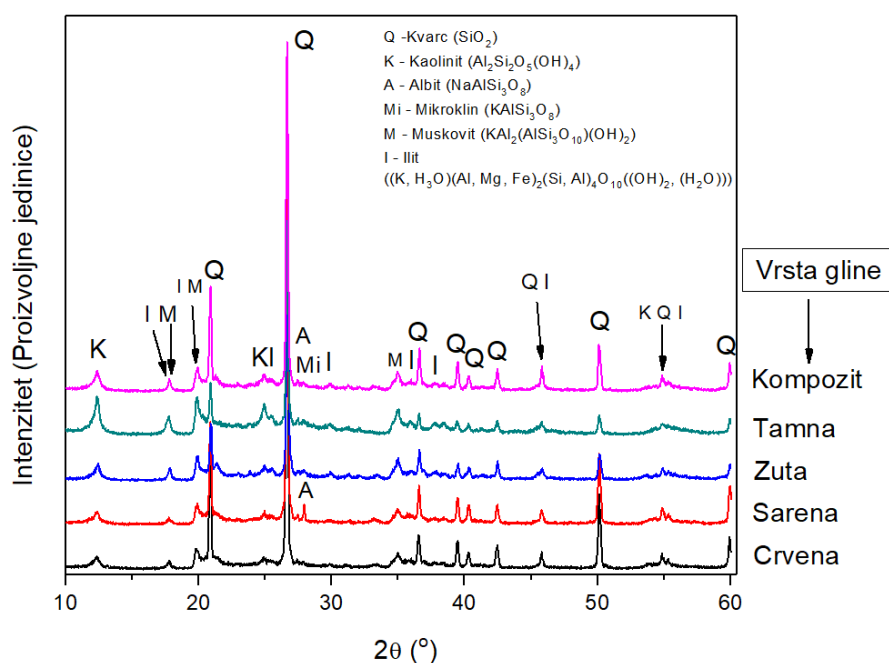
Slika 8.22 Zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u ukupnoj koncentraciji aktivnosti za tamnu, žutu, šarenu, crvenu glinu i kompozit koji se koristi za proizvodnju opeke u fabrici “Zorka Opeka”.

Vrednosti hazard indeksa, jačina apsorbovanih doza i godišnjih efektivnih doza procenjene za izloženost radnika u keramičkoj industriji dati su u Tabeli 8.23. Sve dobijene vrednosti su ispod preporučenih i uporedive su sa vrednostima za gline u drugim zemljama date u Tabeli 8.30.

Table 8.23 Vrednosti gama indeksa (I_γ), alfa indeksa (I_α), unutrašnjeg i spoljašnjeg hazard indeksa (H_{in} , H_{ex}) jačina apsorbovanih doza zračenja (D) i godišnje efektivne doze (E) procenjene za izloženost od 800 h godišnje za uzorke opekarske gline i kompozita.

Vrsta gline	I_γ	I_α	H_{in}	H_{ex}	D (nGy h ⁻¹)	E (μSv y ⁻¹)
Tamna	0,519±0,015	0,18±0,01	0,47±0,01	0,38±0,01	15,66±0,45	8,8±0,4
Žuta	0,738±0,022	0,24±0,02	0,66±0,02	0,54±0,01	22,14±0,67	12,4±0,5
Šarena	0,551±0,013	0,23±0,01	0,54±0,01	0,41±0,01	16,74±0,40	9,4±0,3
Crvena	0,542±0,023	0,19±0,02	0,50±0,02	0,40±0,02	16,30±0,69	9,1±0,6
Kompozit	0,582±0,018	0,20±0,02	0,54±0,02	0,43±0,01	17,51±0,60	9,8±0,5
Opseg	0,519-0,738	0,18-0,24	0,47-0,66	0,38-0,54	15,66-22,14	8,8-12,4
Prosek±standardna devijacija	0,59±0,04	0,21±0,01	0,45±0,07	0,43±0,03	18±1	9,9±0,7

Na Slici 8.23 data je XRD mineraloška karakterizacija sve 4 vrste gline sa površinskog kopa "Jovanovića brdo". Glavne mineralne faze prisutne u svim uzorcima su kvarc i kaolinit, praćeni manjim fazama albita i muskovita i ilita. Što potvrđuje pripadnost grupi kaolinitno-ilitnih glina. Može se uočiti da sve vrste glina imaju skoro identičan mineraloški sastav, sa manjim varijacijama udela mineraloških faza. Uočava se da tamna glina ima veći udeo kaolinita, ilita i muskovita, a dosta manji udeo kvarcne faze za razliku od ostalih glina. XRD mineralošku analizu potvrđuju i rezultati XRF analize.



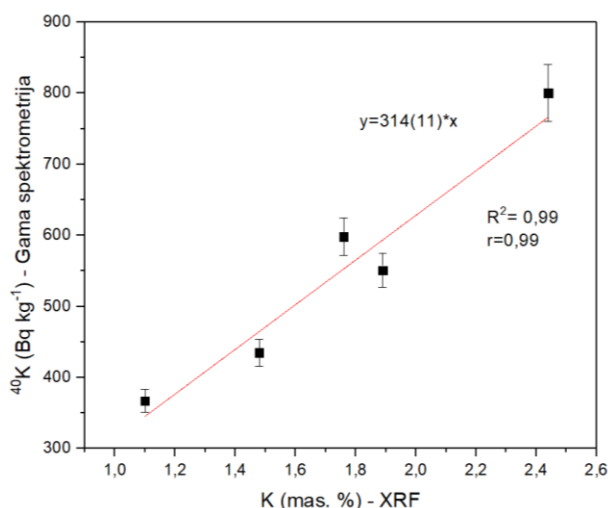
Slika 8.23 XRD šema za 4 vrste gline sa površinskog kopa "Jovanovića brdo" i kompozita za proizvodnju opeke koji se koristi u fabrici "Zorka Opeka" (Donje Crniljevo, Srbija).

Rezultati XRF analize glavih elemenata u uzorcima opekarske gline dati su u Tabeli 8.24. XRF analiza izvršena je kod uzoraka sušenih 6-8 h na 105 °C i samlevenih u avanu do finog i homogenog praha. Nakon XRF analize ustanovljeno je prisustvo Si u rasponu od 27,30 % kod tamne gline do 30,75 % kod crvene gline, Al u rasponu od 12,6 % kod žute gline do 15,4 kod tamne gline, zatim Fe od 1,6 - 4 %, potom K oko 2 % i Na oko 1 %. Sadržaj ostalih elemenata je <1%, Tabela 8.24.

Tabela 8.24 XRF analiza elemenata prisutnih u uzorcima 4 vrste gline i uzorku kompozita izražena u mas. %.

Vrsta gline	Na	Mg	Al	Si	S	Cl	K	Ca	Mn	Fe
Crvena	0,49	1,07	12,69	30,75	<0,001	0,029	1,48	0,25	0,054	3,54
Šarena	0,94	1,11	14,46	29,96	<0,001	0,031	1,10	0,23	0,013	2,62
Tamna	0,47	1,94	15,43	27,30	0,57	<0,001	1,76	1,82	<0,001	1,59
Žuta	0,22	0,53	12,59	30,39	<0,001	0,058	2,44	0,28	0,024	4,01
Kompozit	0,36	1,12	14,15	29,81	<0,001	0,026	1,89	0,35	0,035	2,94

Izmerene vrednosti primordijalnog kalijuma metodom gama spektrometrije date u Tabeli 8.22 daju dobro slaganje sa izmerenim vrednostima za prirodni kalijum određen XRF metodom u svim uzorcima. Sa Slike 8.24 može se uočiti da korelaciona funkcija između izmernih vrednosti ove dve merne tehnike ima oblik: $y=(314\pm 11)\cdot x$, što ukazuje na to da 1 mas. % prirodnog kalijuma sadrži oko 314 Bq kg⁻¹ primordijalnog ⁴⁰K, što je uporedivo sa rezultatom od 318 Bq kg⁻¹ datim u radu (Pilakouta et al., 2017), što potvrđuje ispravnost i dobru kalibrisanost obe merne tehnike.

**Slika 8.24** Korelacija između radioaktivnog (primordijalnog) ⁴⁰K izmerenog gama spektrometrijom i prirodnog K izmerenog XRF metodom za uzorke opearskih glina.

Na osnovu analize glavnih elemenata izvršen je prikaz sadržaja glavnih oksida u uzorcima glina, Tabela 8.25. Dobijene vrednosti ukazuju na ispravnost XRF analize elemenata, jer dobijena ukupna zastupljenost oksida ne prelazi 100%.

Tabela 8.25 XRF analiza glavnih oksida prisutnih u uzorcima 4 vrste gline i uzorku kompozita izražena u mas. %.

Vrsta gline	Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	SO ₃	K ₂ O	CaO	MnO ₂	Fe ₂ O ₃	Ukupno
Crvena	0,66	1,77	23,98	65,81	<0,0025	1,78	0,35	0,085	5,06	99,49
Šarena	1,27	1,83	27,33	64,11	<0,0025	1,32	0,32	0,021	3,75	99,96
Tamna	0,63	3,20	29,16	58,42	1,42	2,11	2,55	<0,0016	2,27	99,77
Žuta	0,30	0,87	23,80	65,03	<0,0025	2,93	0,39	0,038	5,73	99,10
Kompozit	0,49	1,85	26,74	63,79	<0,0025	2,27	0,49	0,055	4,20	99,89

8.3.2 Feldspat

Feldspat je mineral koji formira magmatske i metamorfne stene i formira oko 60% Zemljine kore. Feldspati čine grupu srodnih minerala koji su po svom hemijskom sastavu aluminosilikati natrijuma (albit), kalijuma (ortoklas i mikroklin) i kalcijuma (anortit). Keramička industrija koristi uglavnom K-feldspate sa udelom K_2O od 5-14%. Kalijumski feldspati obično sadrže manju količinu natrijumskih feldspata. Minerali feldspata uglavnom su beli, ali ih ima i u drugim bojama (roze, žuta, braon crvena, zelena, plava) i odlikuje ih visoka tvrdoća (6, prema Mosovoj skali). Zbog velike tvrdoće feldspat se često koristi za proizvodnju keramike (oko 30%) kao i za proizvodnju stakla (oko 70%) (KIš, 2001; Milošević, 1998; Walley El-Dine et al., 2011). U proizvodnji keramike feldspat je drugi najvažniji sastojak posle gline. Sa dodatkom feldspata u proizvodnji keramičkih pločica, poboljšava se čvrstoća, žilavost i trajnost krajnjeg proizvoda. Feldspat utiče na smanjenje temperature stvaranja tečnog sistema (snižava temperaturu topljenja), što dovodi do cementiranja kristalnih faza drugih keramičkih sastojaka (Silva et al., 2019). U proizvodnji keramičkih pločica udeo feldspata je oko 35% (Luo et al., 2017).

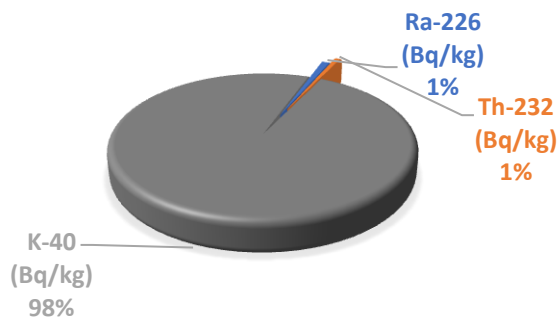
U Tabeli 8.26 data je lista 19 uzoraka feldspata sa zemljama porekla koji se koriste u srpskim keramičkim industrijama sa izmerenim vrednostima koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K i vrednostima radijumskog ekvivalentnog indeksa (Ra_{eq}).

Tabela 8.26 Lista 19 uzoraka feldspata sa zemljama porekla, izmerenim vrednostima koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K i vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}).

Broj uzorka	Naziv uzorka	Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			Ra_{eq}
			^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
1	Feldspat	Nemačka	28±5	16±5	3620±270	329±23
2	Feldspat	Češka Republika	16±2	11±2	3580±130	307±11
3	Feldspat	Ukraina	10,4±2,5	10,4±2,6	3810±220	318±18
4	Feldspat Ž 75 K 13 D	Češka Republika	5,4±0,5	7,6±0,5	1910±70	163±8
5	Feldspat Ž 75 K 13 D	Češka Republika	7,2±0,5	5,1±0,4	290±20	37±5
6	Feldspat	Češka Republika	7,6±2,8	4,6±0,4	2310±200	192±55
7	Feldspat	Italija	12±2	6,8±0,4	2960±160	249±18
8	Nakaflux feldspat	Italija	5,0±0,2	7,5±0,8	1250±60	112±7
9	Feldspat	Bosna i Hercegovina	37±4	15,2±0,8	3340±240	316±27
10	Feldspat	Italija	14±2	11,2±0,6	1990±200	183±22
11	Feldspat FS 930 L/M 10	Nemačka	11±2	9,5±0,7	2550±90	221±10
12	Mleveni feldspat 0-8 mm	Severna Makedonija	46±4	42±4	80±17	112±7
13	Feldspat	Češka Republika	8,2±0,8	7,5±0,6	2320±100	197±11
14	Feldspat	Nemačka	16±2	12±2	3720±250	320±28
15	Mleveni feldspat	Severna Makedonija	63±5	69±6	45±6	165±10
16	Feldspat	Češka Republika	16±2	11,2±0,8	3580±130	307±14
17	Feldspat FS900SF	Nemačka	13,2±2,2	8,2±0,7	4210±150	349±17
18	FELDSPAT 0-4 mm	Rumunija	48±4	5,1±0,4	940±60	128±8
19	Feldspat EX 10	Italija	52±4	36±3	67±7	109±6
Opseg			5-63	4,6-69	45-4210	37-349
Srednja vrednost±standardna devijacija			22±4	16±4	2241±320	217±21
Prosečna/preroručena vrednost			50¹	50¹	500¹	370²

¹Prosečna vrednost za građevinske materijale u svetu data u Ref. (UNECEAR, 1993),

²Preporučena vrednost data u Ref. (NEA-OECD, 1979).



Slika 8.25 Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u 19 uzoraka feldspata koji se koriste u srpskim keramičkim industrijama.

Tabela 8.27 Vrednosti gama indeksa (I_γ), alfa indeksa (I_α), unutrašnjih i spoljašnjih hazard indeksa (H_{in} , H_{ex}), jačina apsorbovanih doza (D) i godišnjih efektivnih doza (E) za 19 uzoraka feldspata koji se koriste u srpskim keramičkim industrijama. (SD = Standardna Devijacija)

Broj uzoraka	I_γ	I_α	H_{in}	H_{ex}	D (nGy h ⁻¹)	E (μSv y ⁻¹)
1	1,46±0,09	0,15±0,03	1,02±0,07	0,94±0,06	43±3	22,6±1,5
2	1,35±0,04	0,09±0,01	0,91±0,03	0,87±0,03	39,3±1,2	21,2±0,7
3	1,42±0,07	0,05±0,01	0,93±0,05	0,90±0,05	41±2	22,0±1,2
4	0,69±0,02	0,027±0,003	0,46±0,01	0,44±0,01	20,0±0,7	11,2±0,4
5	0,15±0,01	0,036±0,003	0,12±0,01	0,099±0,005	4,4±0,2	2,4±0,1
6	0,82±0,07	0,038±0,004	0,54±0,04	0,52±0,04	24±2	13,3±1,1
7	1,06±0,05	0,060±0,010	0,71±0,04	0,67±0,03	31±2	17,3±0,9
8	0,47±0,02	0,025±0,001	0,32±0,01	0,30±0,01	13,7±0,6	7,6±0,3
9	1,31±0,08	0,185±0,020	0,95±0,05	0,85±0,05	39±2	21,6±1,3
10	0,77±0,07	0,07±0,01	0,53±0,04	0,49±0,04	22,4±2	12,5±1,1
11	0,93±0,03	0,055±0,010	0,63±0,02	0,60±0,02	27,1±0,9	15,2±0,5
12	0,39±0,02	0,23±0,02	0,43±0,03	0,30±0,02	12,2±0,8	6,8±0,4
13	0,84±0,03	0,041±0,004	0,56±0,02	0,53±0,02	24,3±1,0	13,6±0,5
14	1,35±0,08	0,082±0,005	0,91±0,05	0,86±0,05	39±2	22,0±1,4
15	0,57±0,03	0,32±0,03	0,62±0,04	0,45±0,03	17,7±1,0	9,9±0,6
16	1,30±0,04	0,08±0,01	0,87±0,03	0,83±0,03	37,9±1,3	21,2±0,7
17	1,49±0,05	0,066±0,011	0,98±0,03	0,94±0,03	43,1±1,5	24,2±0,8
18	0,50±0,02	0,24±0,02	0,47±0,03	0,34±0,02	15,5±0,8	8,7±0,4
19	0,38±0,02	0,260±0,02	0,43±0,02	0,29±0,02	11,9±0,6	6,7±0,4
Opseg	0,15-1,49	0,03-0,32	0,12-0,98	0,10-0,94	4,4-43,1	2,4-24,2
Prosek±SD	0,90±0,09	0,11±0,02	0,64±0,06	0,59±0,06	26±3	14,7±1,5
Preporučene/prosečna vrednost	≤ 1³	≤ 1⁴	≤ 1⁵	≤ 1⁶	55⁷	≤ 20000⁸

³Preporučena vrednost data u Ref. (UNSCEAR, 2000); ⁴Preporučena vrednost data u Ref. (Joel et al., 2018); ⁵Preporučena vrednost data u Ref. (Narloch et al., 2019); ⁶Preporučena vrednost data u Ref. (Alali et al., 2018); ⁷Prosečna vrednost za građevinske materijale u svetu data u Ref. (UNSCEAR, 2008); ⁸Preporučena vrednost za radnike data u Ref. (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 86/11 i 50/18, 2018).

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra za 19 uzoraka feldspara se kreću u opsegu od $5,0\pm 0,2$ Bq kg⁻¹ (uzorak broj 8 iz Italije) do 63 ± 5 Bq kg⁻¹ (uzorak broj 15 iz Severne Makedonije). Prosečna vrednost koncentracije aktivnosti ^{226}Ra iznosi 22 ± 4 Bq kg⁻¹ (srednja vrednost ± standardna devijacija) i ispod je prosečne vrednosti od 50 Bq kg⁻¹ (UNSCEAR, 1993). Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{232}Th se kreću u intervalu od $4,6\pm 0,4$ Bq kg⁻¹ (uzorak broj 6 iz Češke Republike) do 69 ± 6 Bq kg⁻¹ (uzorak broj 15 iz Severne Makedonije). Prosečna vrednost koncentracije

aktivnosti ^{232}Th iznosi $16\pm 4 \text{ Bq kg}^{-1}$ i ispod je prosečne vrednosti od 50 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 1993). Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{40}K se kreću u opsegu od $45\pm 6 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 15 iz Severne Makedonije) do $4210\pm 150 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 17 iz Nemačke). Prosečna vrednost koncentracije aktivnosti ^{40}K za 19 uzoraka feldspata iznosi $2241\pm 320 \text{ Bq kg}^{-1}$ i 4,5 puta je veća od prosečne vrednosti od 500 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 1993). Izmerene vrednosti su uporedive sa vrednostima datim u istraživanjima (Todorović et al., 2014a; Viruthagiri et al., 2013), Tabela 8.30. Relativna zastupljenost u odnosu na prosečne vrednosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u uzorcima feldspata iznosi 1%, 1% i 98% respektivno, Slika 8.25.

Dobijene vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti su ispod preporučene vrednosti od 370 Bq kg^{-1} (NEA-OECD, 1979) za sve uzorke, i srednja vrednost iznosi $217\pm 21 \text{ Bq kg}^{-1}$. Vrednosti su uporedive sa vrednostima datim za feldspate u radu (Pantelić et al., 2014a), Tabela 8.30.

Vrednosti gama indeksa, alfa indeksa, unutrašnjeg i spoljašnjeg hazard indeksa, jačine apsorbovane doze i godišnje efektivne doze zračenja za 19 uzoraka feldspata date su u Tabeli 8.27.

Vrednosti gama indeksa prelaze preporučenu vrednost $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000) za 8/14 uzoraka i prosečna vrednost iznosi $0,90\pm 0,09$. Procenjene vrednosti gama indeksa su uporedive sa rezultatima datim u radu (Todorović et al., 2014a), Tabela 8.30. Vrednosti alfa indeksa i unutrašnjeg hazard indeksa su oko i ispod preporučenih vrednosti, $I_\alpha \leq 1$ i $H_{in} \leq 1$, (Joel et al., 2018; Narloch et al., 2019) za sve uzorke feldspata, a dobijene vrednosti su uporedive sa vrednostima datim u radu (Pantelić et al., 2014a), Tabela 8.30. Procenjene vrednosti spoljašnjeg hazard indeksa su ispod preporučene vrednosti $H_{ex} \leq 1$ kod svih uzoraka, a dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima datim u radu (Chang et al., 2008; Pantelić et al., 2014a).

Dobijene vrednosti jačina apsorbovanih doza zračenja za sve uzorke feldspata su ispod prosečne vrednosti od 55 nGy h^{-1} (UNSCEAR, 2008) i uporedive su sa rezultatima datim u radu (Todorović et al., 2014a), Tabela 8.30. Procenjene vrednosti godišnjih efektivnih doza za radnike u keramičkoj industriji koji su godišnje oko 800 h izloženi zračenju pri radu sa ovim materijalima, za sve uzorke su ispod preporučene vrednosti od 20 mSv y^{-1} (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 86/11 i 50/18, 2018). Dobijeni rezultati su uporedivi sa rezultatima u radovima (Pantelić et al., 2014a; Todorović et al., 2014a), ako se uzme u obzir da je u tim istraživanjima izvršena procena doza za 7000 h godišnje, Tabela 8.30.

8.3.3 Kvarcni pesak

Kvarcni pesak (ili kvarc) je jedan od najrasprostranjenijih materijala u Zemljinoj kori i najčešći mineral koji se može naći u prirodi. Kvarc je jedan od mnogih kristalnih oblika silicijum dioksida (SiO_2) koji ima tetraedarsku strukturu (svaki atom silicijuma je vezan za četiri atoma kiseonika). Kvarc je sastojak magmatskih i metamornih stena. Tvrdća kvarca prema Mosovoj skali je 7, a njegova gustina u rasponu $2,60\text{-}2,66 \text{ g cm}^{-3}$. Obično je bezbojan u prirodi, mada postoje i varijacije u bojama, ali su manje zastupljene. 90-95% kvarca u svetu se koristi u građevinarstvu dok se samo oko 5% koristi u keramičkoj industriji. Kvarc se u keramičkoj industriji koristi kao opšćivač. Obično se nalazi u svojoj alfa fazi koja je stabilna ispod $573 \text{ }^\circ\text{C}$, dok je beta faza stabilna na višim temperaturama. Stene bogate kvarcom najčešće se koriste u industriji opeke i keramike (Beddiaf et al., 2015; Milošević, 1998). Korišćenje kvarca kao dodatne komponente u proizvodnji keramičkih pločica, zbog više stabilnosti na visokim temperaturama dovodi do smanjenja deformacija finalnih proizvoda. Količina kvarca koja se koristi u proizvodnji keramičkih pločica je obično oko 15% (Luo et al., 2017).

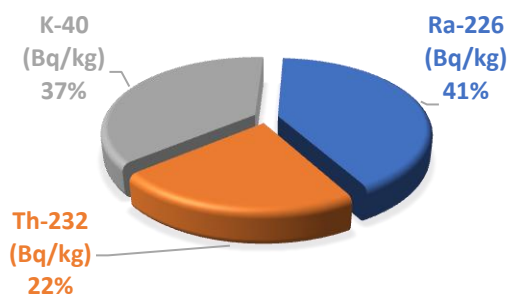
U Tabeli 8.28 data je lista 20 uzoraka kvarcnog peska sa zemljama porekla koji se koristi u srpskim keramičkim industrijama sa izmerenim vrednostima koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K i vrednostima radijumskog ekvivalentnog indeksa (Ra_{eq}).

Tabela 8.28 Lista 20 uzoraka kvarcnog peska sa zemljama porekla, vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K i vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}).

Broj uzorka	Naziv uzorka	Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			Ra_{eq}
			^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
1	Kvarcni pesak - SINTERLINE+G2	Rusija	282±15	382±17	150±15	839±29
2	Kvarcni pesak – CARBOPROP	Rusija	127±8	154±11	110±20	355±18
3	Kvarcni pesak – CARBOPROP	Rusija	121±8	150±10	103±20	343±16
4	Kvarcni pesak	Indija	65±4	319±11	80±5	527±16
5	Kvarcni pesak	Italija	22±2	19±2	200±20	65±4
6	Drobljeni kvarc	Austrija	7,2±0,7	7,2±0,5	370±40	46±5
7	Kvarc	Španija	366±24	66±7	1090±80	544±27
8	Kvarcni pesak	Italija	32±3	3,7±0,2	38±2	40±3
9	Ceresit kvarc	Poljska	21±3	4,8±0,3	170±15	41±3
10	Peskane kvarcne ploče	Italija	24±3	20±2	400±40	83±6
11	Kvarcni pesak MSP-22	Slovenija	7,0±0,7	3,8±0,2	45±3	16±1
12	Kvarcni pesak – CARBOPROP	Rusija	127±8	154±11	110±12	355±18
13	Kvarcni pesak - Sinterlite+G2	Rusija	282±15	382±17	150±11	839±29
14	Kvarcni pesak MESH 120	Nemačka	29±3	95±9	62±5	169±13
15	Kvarc	Velika Britanija	4,1±0,4	2,8±0,3	31±3	10±1
16	Kvarc	Italija	32±3	2,5±0,3	33±2	38±3
17	Kvarc QUARZO Z MP 0555/00	Italija	2300±120	290±23	150±10	2726±124
18	Kvarcni pesak-COLORITQUARTZ 1,2-1,8 mm	Nemačka	15±2	11±2	91±8	38±4
19	Quartz Carbon Granuclo Mix	EU	16±2	8,4±0,8	26±2	30±2
20	Quartz Mocha Granucol Mix	EU	27±3	30±3	85±7	76±5
Opseg			4,1-2300	2,5-382	26-1090	10-2726
Srednja vrednost±standardna devijacija			195±109	105±29	175±51	359±133
Prosečna/preručena vrednost			50¹	50¹	500¹	370²

¹Prosečna vrednost za građevinske materijale u svetu data u Ref. (UNECEAR, 1993),

²Preporučena vrednost data u Ref. (NEA-OECD, 1979).



Slika 8.26 Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u 20 uzoraka kvarca koji se koriste u srpskim keramičkim industijama.

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra za uzorke kvarcnog peska su u rasponu od $4,1\pm 0,4 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 15 iz Velike Britanije) do $2300\pm 120 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 17 iz Italije). Prosečna vrednost koncentracije aktivnosti ^{226}Ra za sve uzorke kvarcnog peska iznosi $195\pm 109 \text{ Bq kg}^{-1}$ i 3,9 puta je veća od prosečne vrednosti za građevinske materijale koja iznosi 50 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 1993). Vrednosti koncentracija aktivnosti ^{232}Th kod uzoraka kvarcnog peska se kreću u opsegu od $2,5\pm 0,3 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 16 iz Italije) do $382\pm 17 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 13 iz Rusije). Prosečna vrednost koncentracije aktivnosti ^{232}Th za sve uzorke kvarcnog peska iznosi $105\pm 29 \text{ Bq kg}^{-1}$ i 2,1 puta

je veća od prosečne vrednosti za građevinske materijale koja iznosi 50 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 1993). Koncentracije aktivnosti ^{40}K izmerene za 20 uzoraka kvarcnog peska se kreću u intervalu od $26 \pm 2 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 19 iz EU) do $1090 \pm 80 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 7 iz Španije). Prosečna vrednost koncentracije aktivnosti ^{40}K za sve uzorke kvarcnog peska iznosi $175 \pm 51 \text{ Bq kg}^{-1}$ i 2,8 puta je manja od prosečne vrednosti za građevinske materijale koja iznosi 500 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 1993). Dobijene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K su uporedive sa rezultatima za kvarcni pesak u Indiji, Srbiji, Turskoj i Severnoj Koreji, date u Tabeli 8.30. Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K iznosi 41%, 22% i 378%, respektivno, Slika 8.26.

Vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti prelaze preporučenu vrednost od 370 Bq kg^{-1} (NEA-OECD, 1979) samo kod 5 uzoraka kvarcnog peska (uzorci 1, 4, 7, 13, 17 iz Tabele 8.28) i uporedive su sa rezultatima u radu autora (Pantelić et al., 2014a), Tabela 8.30.

Tabela 8.29 Vrednosti gama indeksa (I_γ), alfa indeksa (I_α), unutrašnjeg i spoljašnjeg hazard indeksa (H_{in} , H_{ex}), jačine apsorbovane doze (D) i godišnje efektivne doze (E) za 20 uzoraka kvarcnog peska koji se koriste u srpskim keramičkim inustrijama. ($SD = \text{Standardna Devijacija}$)

Broj uzoraka	I_γ	I_α	H_{in}	H_{ex}	D (nGy h^{-1})	E ($\mu\text{Sv y}^{-1}$)
1	2,91±0,09	1,41±0,08	3,03±0,10	2,27±0,08	88,8±2,8	50±2
2	1,23±0,06	0,64±0,04	1,30±0,06	0,96±0,05	37,9±1,8	21±1
3	1,19±0,06	0,61±0,04	1,25±0,06	0,93±0,04	36,5±1,7	20±1
4	1,83±0,06	0,33±0,02	1,60±0,05	1,42±0,04	53,2±1,6	29,8±0,9
5	0,24±0,01	0,11±0,01	0,23±0,01	0,17±0,01	7,2±0,4	4,0±0,2
6	0,18±0,01	0,036±0,004	0,14±0,01	0,124±0,009	5,4±0,4	3,0±0,2
7	1,91±0,09	1,83±0,12	2,46±0,13	1,47±0,07	64±3	36±2
8	0,14±0,01	0,160±0,015	0,20±0,02	0,109±0,008	4,7±0,4	2,6±0,2
9	0,15±0,01	0,105±0,015	0,17±0,02	0,111±0,009	4,8±0,4	2,7±0,2
10	0,31±0,02	0,120±0,015	0,29±0,02	0,225±0,014	9,5±0,6	5,3±0,3
11	0,057±0,003	0,035±0,004	0,062±0,004	0,043±0,002	1,80±0,09	1,01±0,05
12	1,23±0,06	0,64±0,04	1,30±0,06	0,96±0,05	38±2	21±1
13	2,90±0,10	1,41±0,08	3,03±0,1	2,27±0,08	89±3	49,7±1,7
14	0,59±0,05	0,145±0,015	0,54±0,04	0,46±0,04	17,4±1,3	9,7±0,7
15	0,038±0,002	0,021±0,002	0,039±0,003	0,028±0,002	1,18±0,07	0,66±0,04
16	0,13±0,01	0,160±0,015	0,19±0,02	0,103±0,008	4,5±0,4	2,5±0,2
17	9,17±0,42	11,5±0,6	13,6±0,7	7,37±0,34	318±15	178±8
18	0,14±0,01	0,08±0,01	0,14±0,01	0,10±0,01	4,2±0,4	2,4±0,2
19	0,10±0,01	0,08±0,01	0,12±0,01	0,081±0,006	3,3±0,3	1,87±0,15
20	0,27±0,02	0,135±0,015	0,28±0,02	0,206±0,014	8,3±0,6	4,6±0,3
Opseg	0,04-9,17	0,021-11,5	0,04-13,6	0,028-7,4	1,2-318	0,66-178
Prosek±SD	1,23±0,45	0,98±0,54	1,50±0,65	0,97±0,36	40±15	22±9
Preporučene/prosečna vrednost	$\leq 1^3$	$\leq 1^4$	$\leq 1^5$	$\leq 1^6$	55 ⁷	$\leq 20000^8$

³Preporučena vrednost data u Ref. (UNSCEAR, 2000); ⁴Preporučena vrednost data u Ref. (Joel et al., 2018); ⁵Preporučena vrednost data u Ref. (Narloch et al., 2019); ⁶Preporučena vrednost data u Ref. (Alali et al., 2018); ⁷Prosečna vrednost za građevinske materijale u svetu data u Ref. (UNSCEAR, 2008); ⁸Preporučena vrednost za radnike data u Ref. (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 86/11 i 50/18, 2018).

Procenjene vrednosti gama indeksa, alfa indeksa, unutrašnjeg i spoljašnjeg hazard indeksa, jačine apsorbovane doze i godišnje efektivne doze zračenja za 20 uzoraka kvarcnog peska dati su u Tabeli 8.29.

Vrednosti gama indeksa prelaze preporučenu vrednost $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000) kod 8/20 uzoraka kvarcnog peska. Procenjene vrednosti alfa indeksa su kod 4/20 uzoraka iznad preporučene vrednosti

$I_{\alpha} \leq 1$ (Joel et al., 2018), dok vrednosti unutrašnjeg hazard indeksa prelaze preporučenu vrednost $H_{in} \leq 1$ (Narloch et al., 2019) kod 8/20 uzoraka kvacnog peska, Tabela 8.29. Dobijene vrednosti gama indeksa, alfa indeksa i unutrašnjeg hazard indeksa su uporedive sa vrednostima datim u radu (Pantelić et al., 2014a), Tabela 8.30. Vrednosti spoljašnjeg hazard indeksa su iznad preporučene vrednosti $H_{ex} \leq 1$ (Alali et al., 2018) i veće su od onih procenjenih za kvarcni psak iz Srbije i Severne Koreje, date u Tabeli 8.30.

Dobijena prosečna vrednosti jačine apsorbovane doze gama zračenja za 20 uzoraka kvarcnog peska iznosi 40 ± 15 nGy h⁻¹ i ispod je prosečne vrednosti od 55 nGy h⁻¹ (UNSCEAR, 2008). Dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima za kvarcni pesak u radu (Pantelić et al., 2014a), Tabela 8.30. Vrednosti godišnjih efektivnih doza procenjenih za izloženost radnika od 800 h su daleko ispod preporučene vrednosti od 20 mSv y⁻¹ (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 86/11 i 50/18, 2018).

Tabela 8.30 Poređenje vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , radioloških hazard indeksa (Ra_{eq} , I_γ , I_α , H_{in} , H_{ex}), jačine apsorbovane doze (D) i godišnje efektivne doze (E) za sirovinne materijale koji se koriste u Srbiji i drugim zemljama u svetu. – opseg; (prosek \pm standardna devijacija).

Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)			Ra_{eq} (Bq kg ⁻¹)	I_γ	I_α	H_{in}	H_{ex}	D (nGy h ⁻¹)	E (mSv y ⁻¹)	Reference
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K								
Kaolin											
Nigerija	18,5-64,2 (38,17)	48,7-98,3 (65,11)	31,3-156,5 (93,90)	118,23-172,37 (138,51)	0,42-0,61 (0,48)	0,09-0,32 (0,19)	0,37-0,61 (0,48)	0,32-0,47 (0,37)	51,04-73,7 (59,56)	0,06-0,09 (0,07)	Agaguunodo et al., 2018
Turska	16,5-125,9 (82,0 \pm 37,3)	24,0-184,0 (94,8 \pm 49,2)	15,0-1635,2 (463,6 \pm 544,9)	115,7-476,8 (253,1 \pm 132,5)	0,4-1,8 (0,90 \pm 0,49)	0,1-0,6 (0,41 \pm 0,19)	-	-	-	-	Turhan, 2009
Egipat	59,8-8499	95,8-1079	8,2-269,7	187,8-10185	1,3-68,4	-	-	0,51-27,5	85,5-4405,9	-	Walley El-Dine et al., 2004
Srbija	178 \pm 15	87 \pm 12	400 \pm 80	-	1,16 \pm 0,09	-	-	-	37,4 \pm 2,6	0,183 \pm 0,013	Todorović et al., 2014a
Indija	13,6-113,5 (51,4)	30,5-169,4 (90,6)	54,7-338,9 (201,4)	-	-	-	-	-	-	-	Viruthagiri et al., 2013
Turska	17,5-130,5 (80,3 \pm 9,8)	23,4-180,8 (89,2 \pm 11,1)	17,1-1948,7 (494,8 \pm 152,1)	-	-	-	-	-	-	-	Turhan et al., 2011
Severna Koreja	1,88-42,4 (11,3 \pm 14,0)	<3,04-126 (23,8 \pm 42,4)	117-1140 (330 \pm 354)	-	-	-	-	0,038-0,715 (0,190 \pm 0,245)	-	-	Chang et al., 2008
Srbija	77-272 (134\pm44)	73-163 (100\pm25)	220-1230 (1017\pm271)	281-512 (355\pm55)	1,1-1,85 (1,29\pm0,19)	0,39-1,36 (0,70\pm0,22)	1,05-2,12 (1,32\pm0,26)	0,76-1,38 (0,96\pm0,15)	31,74-58,20 (40\pm6)	17,8-32,6* (22,3\pm0,9)*	Ova studija
Glina											
Severna Koreja	38,9-68,8 (48,9 \pm 13,5)	60,9-118 (77,7 \pm 27,2)	510-639 (591 \pm 59)	-	-	-	-	0,467-0,764 (0,555 \pm 0,141)	-	-	Chang et al., 2008
Turska	8,6-141 (45,2 \pm 5,4)	4-176,3 (51,6 \pm 5,7)	63,3-1103,6 (571,9 \pm 40,9)	-	-	-	-	-	-	-	Turhan et al., 2011
Indija	10,6-48,6 (28,7)	27,7-68,7 (44,8)	68,2-340,5 (163,9)	-	-	-	-	-	-	-	Viruthagiri et al., 2013
Kamerun	22,81-25,79 (24 \pm 2)	41,78-45,13 (44 \pm 2)	447,6-451,95 (449 \pm 2)	121,02	-	-	-	0,32	58,46	0,29	Ngachin et al., 2007
Nigerija	28,7 \pm 22,2	67,1 \pm 10,0	479 \pm 73	162	0,59	-	-	0,44	17,0	0,09	Joshua et al., 2009
Indija	<MDA-454 (71,98)	<MDA-192 (40,2)	21,84-481,35 (313,71)	154,86	0,55	0,36	0,61	0,42	136,83	0,17	Raghu et al., 2017
Srbija	36-47 (41\pm2)	40-63 (53\pm4)	367-800 (550\pm75)	1139-199 (160\pm21)	0,52-0,74 (0,59\pm0,04)	0,18-0,24 (0,21\pm0,01)	0,47-0,66 (0,45\pm0,07)	0,38-0,54 (0,43\pm0,03)	15,66\pm22,14 (18\pm1)	8,8-12,4* (9,9\pm0,7)*	Ova studija

* izraženo u $\mu\text{Sv y}^{-1}$.

Tabela 8.30 (Nastavak)

Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)			Ra_{eq} (Bq kg ⁻¹)	I_{γ}	I_{α}	H_{in}	H_{ex}	D (nGy h ⁻¹)	E (mSv y ⁻¹)	Reference
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K								
Feldspat											
Srbija	<5-158 (54±29)	<3-163 (69±40)	<10-3,192 (320 ± 760)	<10-274 (177)	-	<0,03-079 (0,27)	<0,04-1,11 (0,62)	<0,03-0,74 (0,48)	<9-255 (151)	<0,04-1,25 (0,74)	Pantelić et al., 2014a
Indija	5,7-40,2	4,8-51,6	24,7-2113,2	-	-	-	-	-	-	-	Viruthagiri et al., 2013
Srbija	28±5	16±5	3620±270	-	1,38±0,10	-	-	-	40±3	0,198±0,014	Todorović et al., 2014a
Egipat	9,5-183675,7	6,1- 94314,2	0-7894,6	106,4- 319153,0	-	-	-	-	47,3-141205	-	Walley El-Dine et al., 2011
Severna Koreja	10,2-199 (47,6±56,4)	6,25-111 (54,2±38,9)	983-1860 (1320±250)	-	-	-	-	0,318-1,07 (0,613±0,243)	-	-	Chang et al., 2008
Turska	1,7-41,5	9,0-66,9	11,5-3634	-	-	-	-	-	-	-	Turhan et al., 2011
Srbija	5-63 (22±4)	4,6-69 (16±4)	45-4210 (2241±320)	37-349 (217±21)	0,15-1,49 (0,90±0,09)	0,03-0,32 (0,11±0,02)	0,12-0,98 (0,64±0,06)	0,10-0,94 (0,59±0,06)	4,4-43,1 (26±3)	2,4-24,2* (14,7±1,5)*	Ova studija
Kvarcni pesak											
Indija	6,7-38,3 (24,1)	9,4-43,7 (28,4)	50,3-302,4 (189,1)	-	-	-	-	-	-	-	Viruthagiri et al., 2013
Srbija	<5-94 (21±24)	<3-385 (61±120)	<10-340 (46±95)	<10-645 (111)	-	<0,03-0,47 (0,10)	<0,04-1,99 (0,36)	<0,03-1,74 (0,30)	<9-510 (90)	<0,04-2,50 (0,44)	Pantelić et al., 2014a
Turska	3,1-43,4 (13,7±3,1)	2,9-44,8 (11,3±3,2)	49,5-485,8 (221,7±47,6)	-	-	-	-	-	-	-	Turhan et al., 2011
Severna Koreja	5,43-11,5 (7,52±2,19)	10,4-18,5 (13,8±2,5)	0,066-1030 (531±374)	-	-	-	-	0,081-0,306 (0,184±0,081)	-	-	Chang et al., 2008
Srbija	4,1-2300 (195±109)	2,5-382 (105±29)	26-1090 (175±51)	10-2726 (359±133)	0,04-9,17 (1,23±0,45)	0,021-11,5 (0,98±0,54)	0,04-13,6 (1,50±0,65)	0,028-7,4 (0,97±0,36)	1,2-318 (40±15)	0,66-178* (22±9)*	Ova studija

* izraženo u $\mu\text{Sv y}^{-1}$.

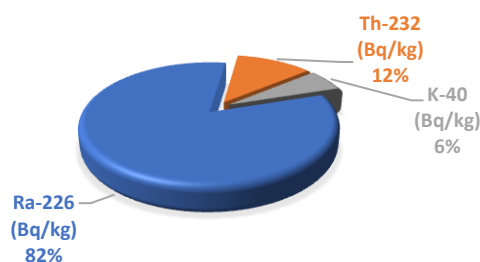
8.3.4 Cirkonijumski minerali

Cirkonijum (Zr) kao element je u prirodi prisutan u obliku silikatnog minerala cirkonijum-silikata ($ZrSiO_4$) – cirkona koji je rasprostranjen po čitavom svetu. Tipična gustina cirkonijumskih minerala (*eng. zirconium minerals*) je između 4200 kg m^{-3} i 4500 kg m^{-3} . Za kristale cirkona mogu biti vezane različite nečistoće kao i neki radionuklidi iz serije ^{238}U i ^{232}Th , te mogu imati povećan nivo radioaktivnosti (Attallah, et al., 2017; Ballesteros et al., 2008; Righi et al., 2005). Tipične koncentracije aktivnosti ^{238}U i ^{232}Th u prirodnom cirkonu se kreću u rasponu od 1000 Bq kg^{-1} do 5000 Bq kg^{-1} i od 500 Bq kg^{-1} do 1000 Bq kg^{-1} , respektivno (Turhan et al., 2011). Izmerene vrednosti ^{226}Ra za neke italijanske cirkone dostižu vrednosti od 6900 Bq kg^{-1} (Todorović et al., 2016), dok je prijavljena vrednost za uzorke cirkona iz Severne Koreje i do 11000 Bq kg^{-1} (Chang et al., 2008). Najveći svetski izvoznici cirkona su Australija, Južna Afrika, SAD, Vijetnam, Ukrajina, Brazil, Indija i Kina (Fathivand and Amidi, 2009; IAEA, 2007). Prema izveštaju Međunarodne agencije za atomsku energiju, u Australiji i Južnoj Africi godišnje se proizvede oko 400 000 tona cirkona (IAEA, 2007).

Na osnovu izmerenih vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u ranijim istraživanjima sirovinskih materijala koji se koriste u keramičkoj industriji može se zaključiti da cirkon predstavlja jedan od najradioaktivnijih sirovinskih materijala (Turhan et al., 2011; Todorovic et al., 2016; Righi et al., 2005). Povećana koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima cirkona može stvoriti značajnu opasnost od izlaganja gama zračenju kao i od inhalacije radioaktivnog gasa radona (^{222}Rn) i njegovih potomaka kako ljudi tako i profesionalo izloženih lica u keramičkoj industriji. Cirkon pre korišćenja u keramičkoj industriji prolazi kroz process mlevenja gde nastaju fine čestice veličine $\leq 50 \mu\text{m}$ (cirkonsko brašno) (Ballesteros et al., 2008; Righi et al., 2005;). Udisanje ili gutanje finih čestica vezanih za aerosole u vazduhu pri radu sa cirkonijumskom meneralima sa povećanim sadržajem ^{226}Ra predstavlja opasnost za izloženost organizma jonizujućem zračenju, i povećava rizik od nastanka raka pluća (Fathivand and Amidi, 2009; IAEA, 2007; Todorović et al., 2011). Pravilno održavanje higijene u industriji dovoljno je da se minimizira uticaj radijacije koju stvara cirkonsko brašno (Fathivand and Amidi, 2009).

Cirkonijumski minerali se zbog umereno niskog koeficijenta termičkog linearnog širenja, visoke temperature disocijacije, niskog koeficijenta toplotne provodljivosti, visoke hemijske inertnosti koriste kao pigment u glazurama keramičkih pločica (Crespo et al., 2018; Musyarofah Novia et al., 2019; Viruthagiri et al, 2013). Uloga glazure, debljine (0,3 – 0,5) mm je poboljšanje sjaja i stvaranje glatkosti površine keramičke pločice, što je čini vodonepropusnom i otpornom na mehanička oštećenja ili hemikalije (IAEA, 2007).

Srbija je jedna od vodećih zemalja u jugoistочноj Evropi u proizvodnji podnih i zidnih keramičkih pločica sa tradicijom u procesnoj proizvodnji dugoj preko 50 godina. Ogromne količine sirovinskih materijala se svake godine uvoze za proizvodnju keramičkih pločica, neki od njih su i cirkonijumski minerali.



Slika 8.27 Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u 41 uzorku cirkonijumskih mineral korišćenih u srpskim keramičkim industrijama.

Tabela 8.31 Lista uzoraka cirkonijumskih minerala sa zemljama porekla i izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 41 uzorak analiziran u ovoj studiji i korišćen u srpskim keramičkim industrijama.

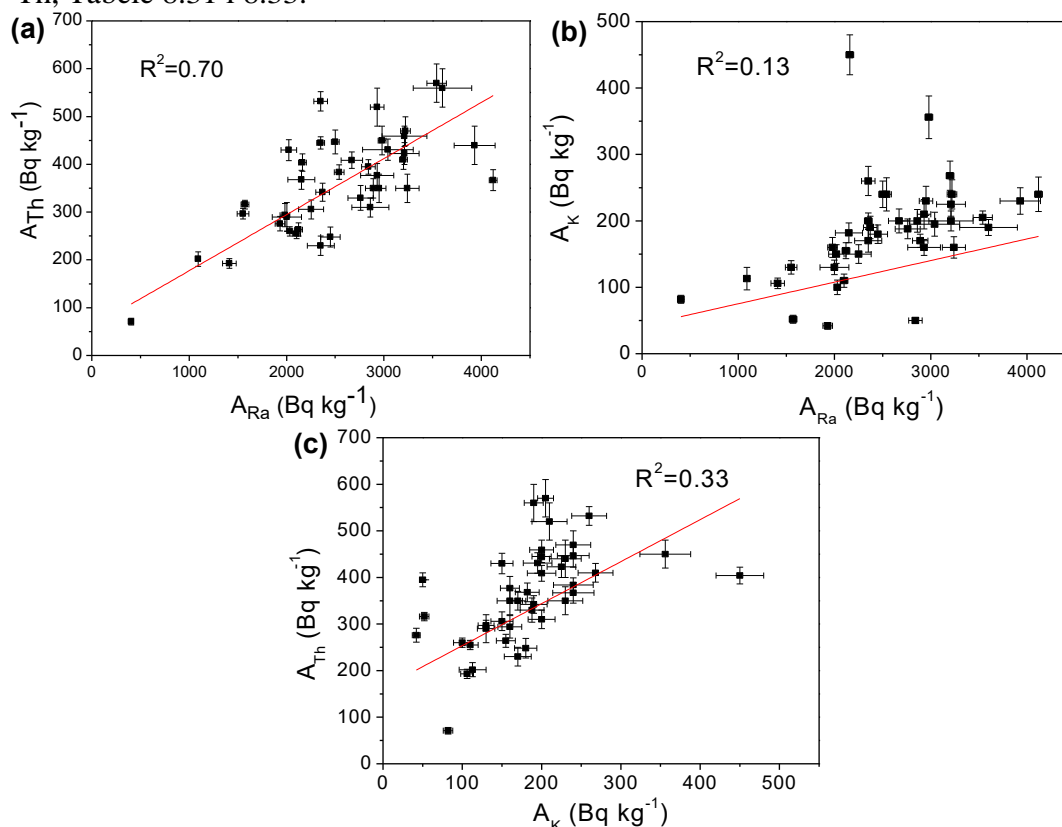
Broj uzorka	Naziv uzorka	Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)		
			^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
1	<i>Circon</i>	Češka Republika	2150±140	368±20	182±15
2	<i>Circosil 300 M</i>	EU	3200±40	410±20	268±22
3	<i>Circon ruda</i>	Francuska	2350±140	230±20	170±17
4	<i>Circon pesak</i>	Francuska	2000±150	290±30	130±11
5	<i>Circon pesak</i>	Francuska	3930±210	440±40	230±20
6	<i>Circon brašno</i>	Nemačka	1550±60	297±11	130±10
7	<i>Circon</i>	Nemačka	2020±80	430±22	150±14
8	<i>Circobit</i>	Italija	1570±40	316±9	52±6
9	<i>Circobit</i>	Italija	2890±80	350±20	170±10
10	<i>Circobit Fu</i>	Italija	2350±70	532±20	260±22
11	<i>Circobit Fu 50</i>	Italija	2760±130	330±26	188±15
12	<i>Circobit</i>	Italija	2670±110	409±17	200±18
13	<i>Circosil 300 M</i>	Italija	3600±300	560±40	190±12
14	<i>Cirkonijum silikat</i>	Italija	3540±100	570±40	205±10
15	<i>Circosil</i>	Italija	1930±50	276±15	42±5
16	<i>Circon</i>	Italija	2250±130	306±20	150±14
17	<i>Circosil</i>	Italija	2160±40	404±18	450±30
18	<i>Circobit</i>	Italija	2860±190	310±20	200±17
19	<i>Circobit Fu</i>	Italija	3220±50	470±30	240±22
20	<i>Circobit Mo/S</i>	Italija	2450±100	248±21	180±14
21	<i>Circobit Fu</i>	Italija	2350±40	445±13	200±12
22	<i>Circosil 300 M</i>	Italija	2950±70	350±30	230±22
23	<i>Zeta Zircon Flour 325 Mesh</i>	Holandija	2840±70	395±15	50±4
24	<i>Zeta Zircon Flour 325 Mesh</i>	Holandija	3210±230	459±21	200±15
25	<i>Circon brašno</i>	Holandija	2030±25	260±10	100±11
26	<i>Circon brašno</i>	Holandija	2120±40	264±14	155±12
27	<i>Termocoat Circon</i>	Slovenija	404±24	71±7	82±6
28	<i>Termocoat At – Cirkobit</i>	Slovenija	1090±24	202±15	113±17
29	<i>Beli cirkonijum - Moka 200m</i>	Slovenija	2500±40	447±25	240±20
30	<i>Zircobit</i>	Slovenija	1410±70	193±10	106±8
31	<i>Circosil Five</i>	Španija	1980±50	294±24	160±15
32	<i>Circosil 300 M</i>	Španija	3040±260	431±22	195±18
33	<i>Circosil</i>	Španija	2540±50	384±15	240±25
34	<i>Circosil</i>	Španija	2370±70	342±19	190±17
35	<i>Zirconium Silicate</i>	Španija	4120±40	367±22	240±26
36	<i>Circon brašno</i>	Španija	2930±70	520±40	210±22
37	<i>Circon brašno</i>	Španija	3240±120	350±30	160±16
38	<i>Cirkonijum silikat</i>	Španija	2980±40	450±30	356±32
39	<i>Zircon Calcine Premium</i>	UK	2930±170	377±25	160±12
40	<i>Zircon Prime Flour</i>	UK	3210±150	423±23	225±18
41	<i>Circon brašno</i>	SAD	2100±40	255±10	110±10
Opseg			40-4120	71-560	42-356
Srednja vrednost±standardna devijacija			2532±117	360±16	183±12
Prosečna vrednost u svetu			50 ¹	50 ¹	500 ¹

¹dato u Ref. (UNSCEAR, 1993).

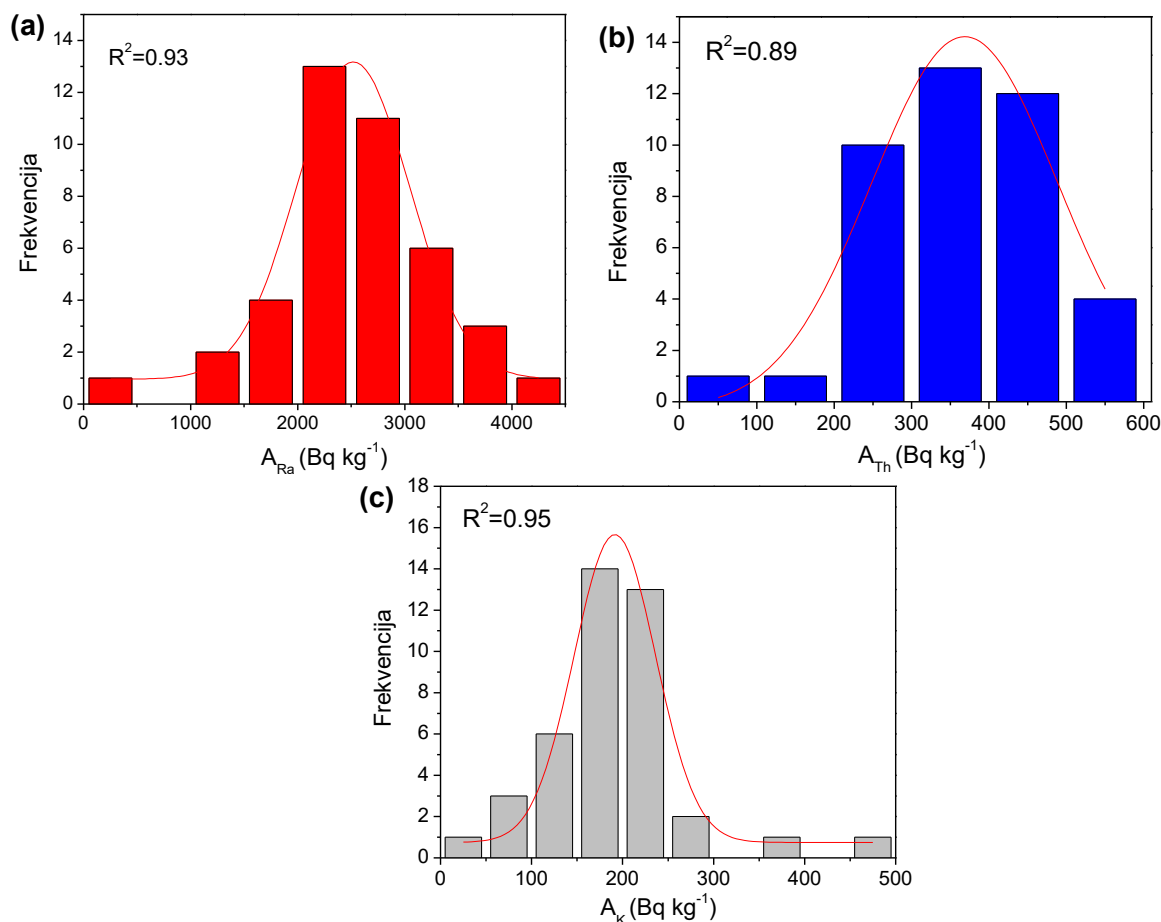
Tipična godišnja efektivna doza za radnike izložene mineralima cirkonijuma je (70–260) $\mu\text{Sv y}^{-1}$ od spoljne izloženosti i (600–3000) $\mu\text{Sv y}^{-1}$ od udisanja prašine, što daje ukupnu godišnju efektivnu dozu od (700–3100) $\mu\text{Sv y}^{-1}$ (Schroeyers, 2017).

Lista analiziranih uzoraka cirkonijumskih minerala sa zemljama porekla koji se koriste u srpskim keramičkim industrijama sa izmerenim vrednostima koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K dati su u Tabeli 8.31.

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra se kreću u intervalu od $404 \pm 24 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 27 iz Slovenije) do $4120 \pm 40 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 35 iz Španije) i prosečna vrednost za svih 41 uzoraka cirkonijumskih minerala iznosi $2532 \pm 117 \text{ Bq kg}^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{232}Th se kreću u rasponu od $71 \pm 7 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 27 iz Slovenije) do $560 \pm 40 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 13 iz Italije) i prosečna vrednost za svih 41 uzoraka cirkonijumskih minerala iznosi $360 \pm 16 \text{ Bq kg}^{-1}$. Izmerene vrednosti ^{40}K se kreću u intervalu od $42 \pm 5 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 15 iz Italije) do $356 \pm 32 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak broj 38 iz Španije) i prosečna vrednost za svih 41 uzoraka cirkonijumskih minerala iznosi $183 \pm 12 \text{ Bq kg}^{-1}$. Prosečne vrednosti ^{226}Ra i ^{232}Th za sve uzorke su drastično iznad prosečnih vrednosti za građevinske materijale u svetu od 50 Bq kg^{-1} , dok su i koncentracije aktivnosti ^{40}K iznad prosečne vrednosti od 500 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 1993). Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K su uporedive sa rezultatima prijavljenim za cirkonijumske minerale iz Belgije, Češke Republike, Nemačke, Italije i Španije (Ballesteros et al., 2008; Fathivand and Amidi, 2009; Todorovic et al., 2016; Madruga et al., 2018; Turhan et al., 2011), dati u Tabeli 8.3. U poređenju sa vrednostima koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za druge sirovinske materijale koji se koriste u keramičkoj industriji (kaolin, glina, kvarc, feldspat), cirkonijumski minerali analizirani u ovoj studiji imaju znatno veći nivo ovih radionuklida, pre svega ^{226}Ra , i ^{232}Th , Tabele 8.31 i 8.33.



Slika 8.28 Korelacije između koncentracija aktivnosti ^{232}Th i ^{226}Ra , ^{40}K i ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 41 uzorak cirkonijumskih minerala iz Tabele 8.31.



Slika 8.29 Frekventivna distribucija koncentracija aktivnosti (a) ^{226}Ra (Bq kg⁻¹), (b) ^{232}Th (Bq kg⁻¹) i (c) ^{40}K (Bq kg⁻¹) za 41 uzorak cirkonijumskih minerala iz Tabele 8.31.

Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u 41 uzorku cirkonijumskih minerala iznosi 82%, 12% i 6%, respektivno, Slika 8.27. Na Slici 8.28 uočene su korelacije između koncentracija aktivnosti ^{232}Th i ^{226}Ra ; ^{40}K i ^{226}Ra ; ^{232}Th i ^{40}K sa korelacionim faktorima (R^2): 0,70, 0,13 i 0,33, respektivno.

Frekventivna distribucija koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u analiziranim uzorcima cirkonijumskih minerala data je na Slici 8.29. Može se uočiti da se distribucije koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K dobro slažu sa Gausovom raspodelom, na šta ukazuju i visoki korelacioni faktori (R^2): 0,93, 0,89 i 0,95, respektivno.

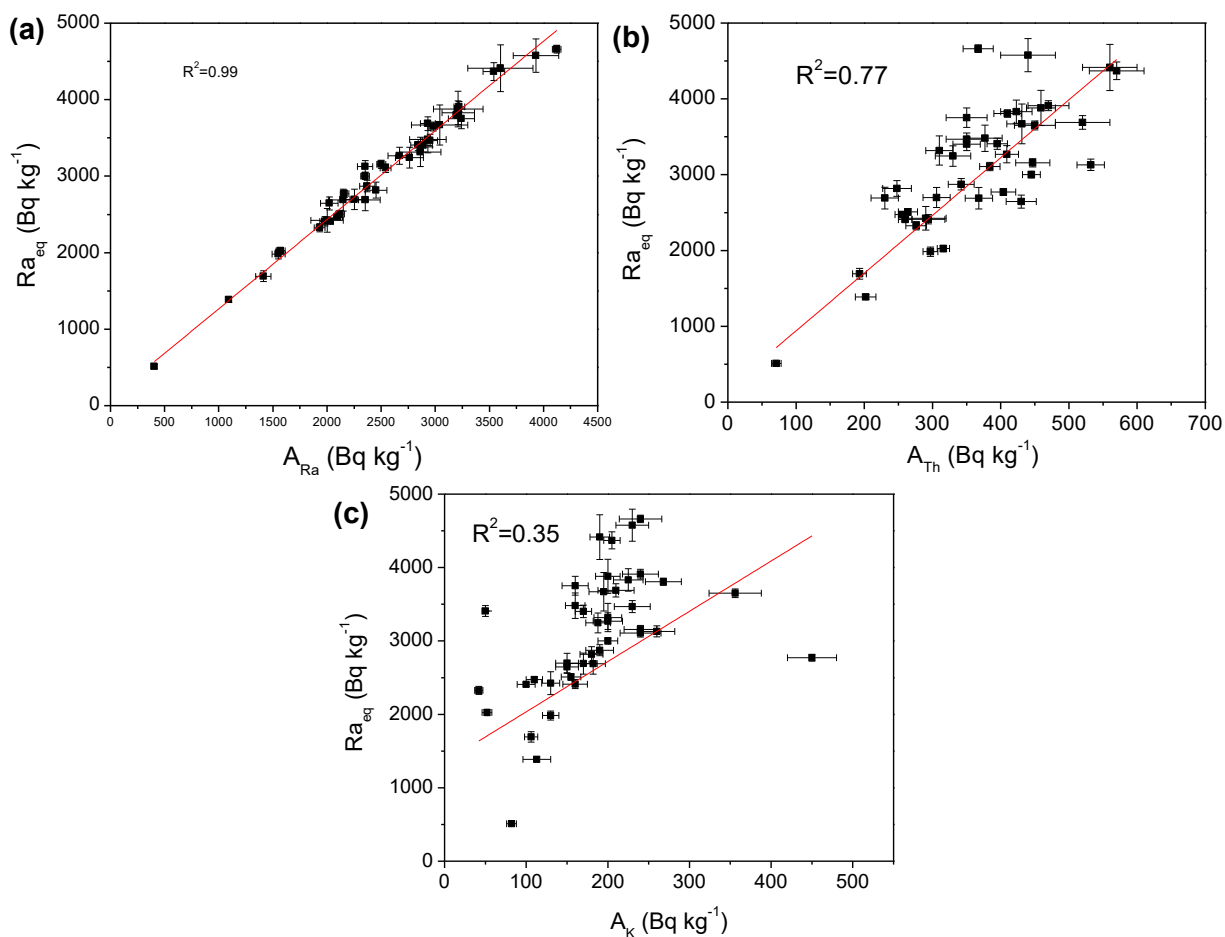
Dobijene vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}), gama indeksa (I_γ), alfa indeksa (I_α), i brzine masene ekshalacije radona date su u Tabeli 8.32.

Dobijene vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}) se kreću u intervalu od 512 ± 26 Bq kg⁻¹ (uzorak broj 27 iz Slovenije) do 4663 ± 51 Bq kg⁻¹ (uzorak broj 35 uz Španije). Prosečna vrednost radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti za svih 41 uzoraka cirkonijumskih minerala iznosi 3062 ± 135 Bq kg⁻¹ (sednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti za sve uzorke su iznad preporučene vrednosti od 370 Bq kg⁻¹ (NEA-OECD, 1979).

Na Slici 8.30 uočena je jaka korelacija između ^{226}Ra i Ra_{eq} sa korelacionim faktorom $R^2=0,99$, dok su između $^{232}\text{Th} - Ra_{eq}$ i $^{40}\text{K} - Ra_{eq}$ dobijeni korelacioni faktori 0,77 i 0,35, respektivno.

Vrednosti gama indeksa se kreću u intervalu od $1,73 \pm 0,09$ (uzorak broj 27 iz Slovenije) do $15,7 \pm 0,2$ (uzorak broj 35 iz Španije). Prosečna vrednost gama indeksa za sve uzorke iznosi $10,3 \pm 0,5$ (sednja vrednost \pm standardna devijacija). Vrednosti gama indeksa za sve uzorke su iznad preporučene

vrednosti od $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000). Dobijene vrednosti gama indeksa u ovom radu su uporedive sa vrednostima prijavljenim u radovima (Madruga et al., 2018; Todorovic et al., 2016), Tabela 8.33.



Slika 8.30 Korelacije između koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K , i radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}) za 41 cirkonijumski mineral analiziran u ovoj studiji.

Vrednosti alfa indeksa se kreću u intervalu od $2,02 \pm 0,12$ (uzorak broj 27 iz Slovenije) do $20,6 \pm 0,2$ (uzorak broj 35 iz Španije). Prosečna vrednost alfa indeksa za sve uzorke iznosi $12,7 \pm 0,6$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Vrednosti alfa indeksa za sve uzorke su iznad preporučene vrednosti od $I_\alpha \leq 1$ (Joel et al., 2018).

Procenjene vrednosti jačine apsorbovane doze gama zračenja (D), godišnje efektivne doze (E), razika od nastanka kancera tokom života ($ELCR$) i alfa doznog ekvivalenta (H_α) dati su na Slici 8.31.

Dobijene vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja (D) kreću se u intervalu od 450 ± 30 $nGy\ h^{-1}$ (uzorak broj 27 iz Slovenije) do 4200 ± 60 $nGy\ h^{-1}$ (uzorak broj 35 iz Španije). Prosečna vrednost jačine apsorbovane doze gama zračenja za sve uzorke cirkonijumskih minerala iznosi 2730 ± 120 $nGy\ h^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti za svih 41 uzoraka cirkonijumskih minerala su drastično iznad prosečne vrednosti od 55 $nGy\ h^{-1}$ za građevinske materijale u svetu (UNSCEAR, 2008).

Tabela 8.32 Vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}) gama indeksa (I_γ), alfa indeksa (I_α) i masene brzine ekshalacije radona (E_M) za 41 uzorak cirkonijumskih minerala analiziranih u ovoj studiji.

Broj uzorka	Ra_{eq} (Bq kg ⁻¹)	I_γ	I_α	E_M (μBq kg ⁻¹ s ⁻¹)
1	2690±143	9,1±0,5	10,8±0,7	13,5±0,9
2	3800±50	12,8±0,2	16,0±0,2	20,2±0,3
3	2692±143	9,0±0,5	11,8±0,7	14,8±0,9
4	2424±156	8,2±0,5	10,0±1,0	12,6±0,9
5	4576±218	15,4±0,7	20,0±1,0	24,8±1,3
6	1984±62	6,7±0,2	7,8±0,3	9,8±0,4
7	2646±86	8,9±0,3	10,1±0,4	12,7±0,5
8	2025±42	6,8±0,2	7,9±0,2	9,9±0,3
9	3403±85	11,4±0,3	14,5±0,4	18,2±0,5
10	3130±76	10,6±0,3	11,8±0,4	14,8±0,4
11	3246±135	10,9±0,5	13,8±0,7	17,4±0,8
12	3270±113	11,0±0,4	13,4±0,6	16,8±0,7
13	4415±305	15±1	18,0±2,0	23,0±2,0
14	4370±115	14,7±0,4	17,7±0,5	22,3±0,6
15	2328±54	7,8±0,2	9,7±0,3	12,2±0,3
16	2699±133	9,1±0,5	11,3±0,7	14,2±0,8
17	2770±50	9,4±0,2	10,8±0,2	13,6±0,3
18	3320±190	11,2±0,6	14,0±1,0	18,0±1,2
19	3910±66	13,2±0,2	16,1±0,3	20,3±0,3
20	2820±100	9,5±0,4	12,3±0,5	15,4±0,6
21	3001±44	10,1±0,2	11,8±0,2	14,8±0,3
22	3468±82	11,7±0,3	14,8±0,4	18,6±0,4
23	3408±73	11,5±0,3	14,2±0,4	17,9±0,4
24	3881±232	13,1±0,8	16,0±1,0	20,2±1,4
25	2409±30	8,1±0,1	10,15±0,13	12,8±0,2
26	2509±45	8,44±0,15	10,6±0,2	13,4±0,3
27	512±26	1,73±0,09	2,02±0,12	2,5±0,2
28	1387±32	4,68±0,11	5,45±0,12	6,9±0,2
29	3157±54	10,7±0,2	12,5±0,2	15,8±0,3
30	1700±70	5,7±0,3	7,1±0,4	8,9±0,4
31	2410±60	8,1±0,2	9,9±0,3	12,5±0,3
32	3671±262	12,4±0,9	15,0±1,0	19,2±1,6
33	3107±54	10,5±0,2	12,7±0,3	16,0±0,3
34	2873±75	9,7±0,3	11,9±0,4	14,9±0,4
35	4663±51	15,7±0,2	20,6±0,2	26,0±0,3
36	3689±90	12,4±0,3	14,7±0,4	18,5±0,4
37	3752±127	12,6±0,4	16,2±0,6	20,4±0,8
38	3650±59	12,3±0,2	14,9±0,2	18,8±0,3
39	3481±174	11,7±0,6	14,7±0,9	18,5±1,1
40	3832±154	12,9±0,5	16,1±0,8	20,2±0,9
41	2473±42	8,31±0,14	10,5±0,2	13,2±0,3
Opseg	512-4663	1,73-15,7	2,02-20,6	2,5-26,0
Prosek±SD	3062±135	10,3±0,5	12,7±0,6	16,0±0,7
Preporučena vrednost	≤370²	≤1³	≤1⁴	-

²preporučena vrednost data u Ref. (NEA-OECD, 1979);

³preporučena vrednost data u Ref. (UNSCEAR, 2000);

⁴preporučena vrednost data u Ref. (Joel et al., 2018);

SD=Standardna Devijacija.

Tabela 8.33 Poređenje koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u cirkonijumskim mineralima analiziranim u ovoj studiji i u drugim zemljama u svetu.

Zemlja porekla	Vrsta uzorka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)			Broj uzoraka	Reference
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K		
Belgija	Cirkon	3100±150	570±35	77±9	10	Fathivand and Amidi, 2009
Češka Republika	Cirkon	19-4700 (3053±255)	5,1-650 (405±34)	70-490 (186±20)	20	Todorović et al., 2016
Egipat	Cirkon - ruda	3341-3817 (3588±125)	884-1063 (982±47,7)	167-353 (217±48,5)	30	Attallah et al., 2017
Egipat	Cirkon pesak	4720-5110 (4910±160)	1120-1250 (1195±48)	170-210 (190±25)	10	El Afifi et al., 2006
Nemačka	Cirkonijumski minerali	2210	470	74	60	Fathivand and Amidi, 2009
Indija	Cirkon	1324-1874 (1593)	197-347 (273)	64-195 (119)	4	Viruthagiri et al., 2013
Italija	Cirkon pesak i brašno	2300-2800	450-540	26-33	10	Righi et al., 2005
Italija	Cirkon	1690-6900 (3381±209)	180-1050 (483±40)	25-700 (204±20)	124	Todorović et al., 2016
Južna Afrika	Cirkon	(4400±210)	(610±35)	(60±8)	60	Fathivand and Amidi, 2009
Južna Afrika	Cirkon	2260-11000 (4700±4200)	402-1970 (921±708)	<17,7-306 (115±133)	4	Chang et al., 2008
Španija	Cirkon pesak i brašno	2681-3615	592-714	<69-<110	5	Ballesteros et al., 2008
Španija	Cirkon	1570-4920 (3161±229)	145-770 (388±27)	30-280 (173±21)	42	Todorović et al., 2016
Španija	Cirkon	49-4130 (2168±1961)	8,8-676 (390±300)	-	5	Madrua et al., 2018
Turska	Cirkon	1667-231 (1973±187)	257-417 (354±49)	57-270 (132±69)	3	Turhan et al., 2011
Srbija	Cirkonijumski minerali	404-4120 (2532±117)	71-560 (360±16)	42-356 (183±12)	41	Ova studija

– opseg; (srednja vrednost ± standardna devijacija).

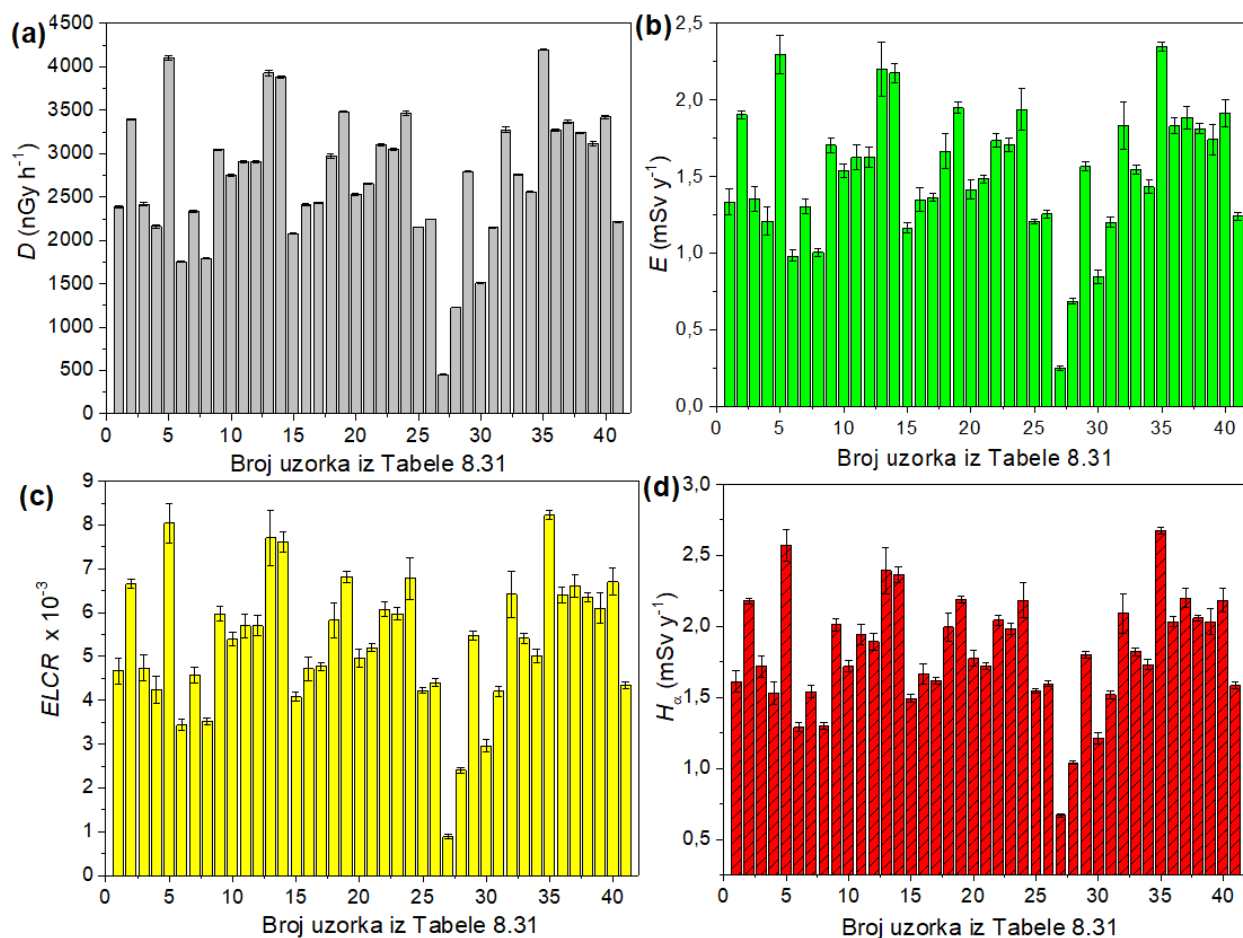
Dobijene vrednosti godišnjih efektivnih doza (E) za vremensku izloženost radnika u keramičkoj industriji od 800 h u toku godine (Todorović et al., 2017) pri radu sa cirkonijumskim mineralima se kreću u intervalu od $0,252\pm 0,015$ mSv y⁻¹ (uzorak broj 27 iz Slovenije) do $2,35\pm 0,015$ mSv y⁻¹ (uzorak broj 35 iz Španije). Prosečna vrednost godišnje efektivne doze za svih 41 uzorak su $1,53\pm 0,07$ mSv y⁻¹ (srednja vrednost ± standardna devijacija). Sve vrednosti godišnjih efektivnih doza prelaze limit od 1 mSv y⁻¹, koji se preporučuje za ljude, ali su ispod 20 mSv y⁻¹ koliko Srbija i Evropska Unija propisuju u svojim Direktivama za profesionalno izložena lica (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 86/11 i 50/18, 2018). Sve dobijene vrednosti godišnjih efektivnih doza prelaze prosečnu vrednost od $0,460$ mSv y⁻¹ za građevinske materijale u svetu (UNSCEAR, 2000).

Procenjene vrednosti rizika od nastanka kancera tokom života ($ELCR$) se kreću u rasponu od $(0,88\pm 0,05)\cdot 10^{-3}$ (uzorak broj 27 iz Slovenije) do $(8,0\pm 0,4)\cdot 10^{-3}$ (uzorak broj 35 iz Španije). Prosečna vrednost rizika od nastanka kancera za svih 41 uzoraka iznosi $(5,4\pm 0,3)\cdot 10^{-3}$ (srednja vrednost ± standardna devijacija). Sve dobijene vrednosti prelaze prosečnu vrednost u svetu za građevinske materijale koja iznosi $0,3\cdot 10^{-3}$ (UNSCEAR, 2000).

Za procenu vrednosti alfa doznog ekvivalenta (H_α) pomoću relacije (6.9) korišćena je vrednost koeficijenta emanacije radona koja je dobijena u ranijim istraživanjima u radu autora (Bikit et al., 2011) koja iznosi 0,3%. Dobijene vrednosti alfa doznog ekvivalenta se kreću u intervalu od $0,668\pm 0,013$ mSv y⁻¹ (uzorak broj 27 iz Slovenije) do $2,67\pm 0,02$ mSv y⁻¹ (uzorak broj 35 iz Španije). Prosečna vrednost alfa doznog ekvivalenta iznosi $1,67\pm 0,08$ mSv y⁻¹ (srednja vrednost ± standardna

devijacija). Dobijene vrednosti alfa doznog ekvivalenta su znatno više od onih procenjenih za uzorke cementa, gipsa, keramike, granita, cigle, betona i drugih građevinskih materijala datim u radovima (Bruzzi et al., 1992; Hassan et al., 2013).

Dobijene vrednosti brzina masenih ekshalacija radona (E_m) za sve uzorke prikazani su u Tabeli 8.32 i kreću se u intervalu od $2,5 \pm 0,2 \mu\text{Bq kg}^{-1} \text{s}^{-1}$ (uzorak broj 27 iz Slovenije) do $26,0 \pm 0,3 \mu\text{Bq kg}^{-1} \text{s}^{-1}$ (uzorak broj 35 iz Španije). Prosečna vrednost brzine masene ekshalacije radona za svih 41 uzoraka cirkonijumskih minerala iznosi $16,0 \pm 0,7 \mu\text{Bq kg}^{-1} \text{s}^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Zbog relativno niskog koeficijenta emanacije (0,3%) koji je dobijen u ranijim istraživanjima (Bikit et al., 2011), dobijene vrednosti brzine masene ekshalacije radona su uporedive sa vrednostima za granite date u radu (Aykamis et al., 2013) kao i za malter, cement i druge uzorake, koji su analizirani u radu (Chowdhury et al., 1998). Ovo se može pripisati velikoj gustini uzoraka cirkonijumskih minerala, odnosno njihove matrice koja iznosi između 4200 kg m^{-3} i 4500 kg m^{-3} . Velika gustina matrice sprečava ekshalaciju iz uzorka cirkona u poređenju sa ostalim građevinskim materijalima koji imaju manju gustinu.



Slika 8.31 Vrednosti jačine apsorbovane doze gama zračenja – D (a), godišnje efektivne doze gama zračenja – E (b), rizika od nastanka kancera tokom života – ELCR (c), i alfa doznog ekvivalenta – H_α (d) za 41 uzorak cirkonijumskih minerala čijem gama i alfa zračenju su potencijalno izloženi radnici u srpskim keramičkim industrijama iz Tabele 8.31.

8.4 Keramičke pločice

Radioaktivnost građevinskih materijala zavisi od radioaktivnosti sirovina koje se koriste za njegovu proizvodnju (Markkanen, 1995). Tako na primer, radioaktivnost keramičkih pločica zavisi od nivoa radioaktivnosti sirovina (kaolin, glina, feldspat, kvarcni pesak, dolomit, cirkon, glinica, i druge sirovine) (Turhan et al., 2011; Luo et al., 2017).

Tehnologija proizvodnje keramike se zasniva na sledećim tehnološkim operacijama: pripremi mase (kompozita), oblikovanju, sušenju i pečenju. Proces oblikovanja obuhvata presovanje i ekstrudiranje kompozitne plastične mase. Pečenje se odvija na temperaturama od 1000 do 1250 °C (Yacine et al., 2016). Za vreme pečenja struktura keramičkih pločica se modifikuje (Turhan et al., 2011) te im ovaj postupak daje karakteristična svojstva: tvrdoću, mehaničku otpornost, hemijsku inertnost i slično (Yacine et al., 2016). Ova svojstva determinišu njihovu dalju primenu u građevinarstvu.

U keramičkim pločicama glavne faze nakon pečenja su mulit i kvarcna faza. Zbog prisustva različitih nečistoća u početnim sirovinama razvijaju se i manja prateće kristalne faze. Konačnu strukturu keramičkih pločica je veoma teško predvideti jer se one tretiraju kao neravnotežni sistem u kom dolazi do razvoja različitih mineralnih faza, koja zasebno ima svoju strukturu. Ovo je direktna posledica činjenice da temperatura pečenja varira tokom vremena. Za vreme hlađenja gotovog proizvoda dolazi do termičkih kontrakcija različitih jedinjenja što dovodi do poroznosti materijala i stvaranja različitih dislokacija, što sve zajedno narušava mehanička svojstva keramičke pločice (El Nouhy, 2013).

Dobijeni porozni materijal idealan je za ekshalaciju i difuziju radona kroz materijal, sve u zavisnosti od koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u materijalu koji je vezan za neku od nečistoća. Brzina ekshalacije radona direktno je proporcionalna koncentraciji aktivnosti ^{226}Ra , međutim postoje i drugi faktori koji mogu uticati na taj proces, kao što je vrsta matrice. Glazura na keramičkoj pločici može delovati kao efikasna barijera za oslobađanje radona iz matrice (biskvita) (Turhan et al., 2011). Potencijalni radiološki problem može biti glazura izrađena od cirkona sa povećanim sadržajem ^{226}Ra , što može biti dodatan izvor radona u zatvorenom prostoru, te ovo ukazuje na potrebna ispitivanja nivoa radioaktivnosti keramičkih pločica u celini i biskvita i glazure.

U Srbiji se keramičke pločice već tradicionalno proizvode i manjim delom izvoze u druge zemlje. Jedna od vodećih fabrika za proizvodnju građevinske keramike je “Zorka Keramika” iz Šapca čiji su uzorci analizirani u ovoj studiji. Glavna sirovina u ovoj fabrici je kaolinilitno-ilitna glina sa površinskih kopova “Bele vode” iz Galovića i “Jovanovića Brdo” iz Donjeg Crniljeva kod Koceljeve, Srbija. Oba nalazišta pripadaju gornje-tamnavskom tercijalnom basenu. Ostale sirovine za proizvodnju se obično uvoze iz drugih zemalja. S obzirom da je potrošnja keramike u Srbiji u velikoj ekspanziji, izvesna količina keramičkih pločica se u Srbiju uvozi iz drugih zemalja, pre svega Italije, Španije i Kine.

Lista 78 analiziranih uzoraka keramičkih pločica sa zemljama porekla, koje se koriste u građevinarstvu u Srbiji sa vrednostima izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K data je u prilogu B (poglavlje 14) ove doktorske disertacije, dok je lista sa glavnim karakteristikama i izmerenim vrednostima za 21 uzorak keramičkih pločica proizvedenih u Srbiji u srpskoj keramičkoj industriji “Zorka Keramika” data u Tabeli 8.35.

Opseg i prosečne vrednosti izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za svih 99 uzoraka keramičkih pločica koje se koriste u Srbiji, a uvoze se iz 9 dugih zemanja ili se u Srbiji proizvode prikazani su u Tabeli 8.34. Dobijene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra se kreću u intervalu od $16 \pm 2 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak iz Hrvatske) do $252 \pm 10 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak iz Italije). Prosečna

vrednost koncentracije aktivnosti ^{226}Ra iznosi $65\pm 3 \text{ Bq kg}^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{232}Th se kreću od $4\pm 1 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak iz Slovenije) do $117\pm 11 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak iz Kine). Prosečna vrednost koncentracije aktivnosti ^{232}Th iznosi $50\pm 2 \text{ Bq kg}^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{40}K se kreću od $< 60 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak iz Italije) do $1110\pm 80 \text{ Bq kg}^{-1}$ (uzorak iz Španije). Prosečna vrednost koncentracije aktivnosti ^{40}K iznosi $598\pm 24 \text{ Bq kg}^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Prosečne vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za svih 99 uzoraka su oko svetskog proseka za ^{232}Th odnosno više za oko 20% za ^{40}K i više za oko 30% za ^{226}Ra od vrednosti datih za građevinske materijale u svetu (UNSCEAR, 1993). Dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima u radu autora (Turhan et al., 2011; Turhan and Varinlioglu, 2012) za Turske keramičke pločice; (Madruga et al., 2018) za Španske keramičke pločice; (Iwaoka et al., 2015), za Japanske keramičke pločice kao i sa rezultatima datim u izveštaju Međunarodne agencije za atomsku energiju iz 2003 godine (IAEA, 2003), Tabela 8.39. Vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 21 uzorak keramičkih pločica proizvedenih u Srbiji su uporedivi sa ranijim istraživanjima radioaktivnosti keramičkih pločica u Srbiji (Krstić et al., 2007; Manić et al., 2015; Todorović et al., 2014a), Table 8.34 i 8.39. Prosečna vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra i ^{232}Th za uzorke proizvedene u Srbiji su oko proseka za građevinske materijale (50 Bq kg^{-1}), dok je prosečna vrednost koncentracije aktivnosti ^{40}K za oko 32% veća u odnosu na prosečnu vrednost u svetu (500 Bq kg^{-1}) (UNSCEAR, 1993).

Table 8.34 Izmerene koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 99 uzoraka keramičkih pločica koje se koriste u građevinarstvu u Srbiji sa zemljama porekla. (SD=standardna devijacija).

Zemlja porekla	Broj uzoraka	Koncentracije aktivnosti (Bq kg^{-1})					
		^{226}Ra		^{232}Th		^{40}K	
		Opseg	Prosek \pm SD	Opseg	Prosek \pm SD	Opseg	Prosek \pm SD
Italija	41	17 \pm 3-252 \pm 10	67 \pm 6	20 \pm 2-94 \pm 8	47 \pm 3	< 60-1000 \pm 80	572 \pm 31
Španija	17	37 \pm 3-111 \pm 9	61 \pm 5	30 \pm 3-77 \pm 7	49 \pm 4	188 \pm 24-1110 \pm 80	637 \pm 69
Kina	9	47 \pm 5-185 \pm 9	102 \pm 13	54 \pm 4-117 \pm 11	90 \pm 10	320 \pm 50-980 \pm 60	606 \pm 69
Hrvatska	4	16 \pm 2-82 \pm 5	41 \pm 13	7 \pm 2-42 \pm 4	21 \pm 7	71 \pm 12-430 \pm 30	290 \pm 75
EU	3	53 \pm 4-116 \pm 10	75 \pm 17	31 \pm 3-66 \pm 5	51 \pm 8	390 \pm 40-710 \pm 60	600 \pm 85
Rumunija	1	28 \pm 2		23 \pm 2		247 \pm 16	
Turska	1	39 \pm 3		28 \pm 3		370 \pm 40	
Srbija	21	27,1 \pm 0,5-96,9 \pm 1,6	57 \pm 3	33,7 \pm 1,4-69,8 \pm 1,9	50 \pm 2	206 \pm 10-1020 \pm 40	735 \pm 47
Slovenija	1	19 \pm 2		4 \pm 1		221 \pm 13	
Bugarska	1	39 \pm 3		35 \pm 3		169 \pm 25	
Opseg		16-252		4-117		< 60-1110	
Prosek \pm SD		65 \pm 3		50 \pm 2		598 \pm 24	
Prosek u svetu		50 ^a		50 ^a		500 ^a	

^aprosečna vrednost za građevinske materijale data u Ref. (UNSCEAR, 1993).

Relativne zastupljenosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u ukupnoj koncentraciji aktivnosti svih 78 uzoraka keramičkih pločica koje se u Srbiju uvoze iz drugih zemalja, i 21 uzorak keramičkih pločica koje su proizvedene u Srbiji date su na Slici 8.32a i 8.32b, respektivno. Relativna zastupljenost radionuklida u uzorcima iz drugih zemalja iznosi: ^{226}Ra -10%, ^{232}Th -7%, i ^{40}K -83%, dok je za uzorke proizvedene u Srbiji ova zastupljenost: ^{226}Ra -7%, ^{232}Th -6%, i ^{40}K -87%. Iz ovoga sledi da je relativna zastupljenost radionuklida u keramičkim pločicama proizvedenim u Srbiji uporediva sa onim u drugim zemljama.

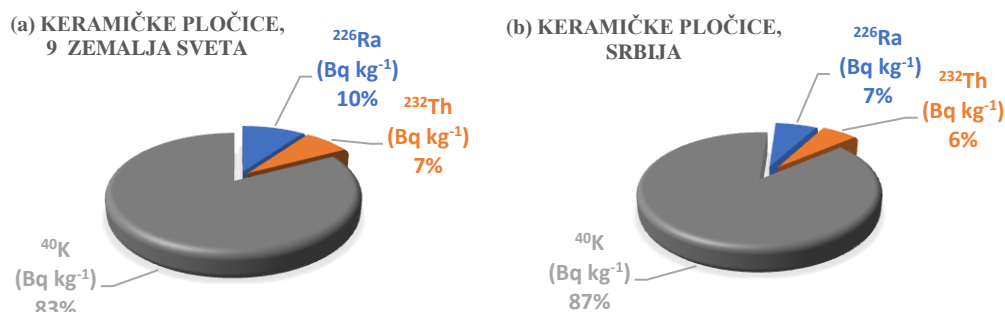
Vrednosti radijumskih ekvivalentnih indeksa aktivnosti (R_{eq}), gama indeksa (I_{γ}), spoljašnjih i unutrašnjih hazard indeksa (H_{ex} , H_{in}), alfa indeksa (I_{α}), jačina apsorbovanih doza (D), godišnjih efektivnih doza (E) i rizika od nastanka karcera tokom života ($ELCR$) za svih 99 uzoraka keramičkih pločica date su u Tabelama 8.37 i 8.38.

Tabela 8.35 Lista analiziranih uzoraka keramičkih pločica proizvedenih u Srbiji u keramičkoj industriji “Zorka Keramika” iz Šapca, sa glavnim karakteristikama i izmerenim vrednostima koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 21 uzorak.

Oznaka uzorka	Vrsta uzorka	Boja glazure	Dimenzije uzorka (cm)	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)		
				^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
F1	Podna	Zelena	33×33	64,6±0,8	57,2±1,8	780±30
F2	Podna	Plava	33×33	65,3±1,0	69,1±1,9	710±30
F3	Podna	Bela	20×20	61,2±0,8	55,1±1,7	770±30
F4	Podna	Siva	60×60	50,7±1,0	44,7±1,6	870±40
F5	Podna	Žuta	33×33	29,6±0,8	40,9±1,2	253±11
F6	Podna	Bež	33×33	55,5±0,6	52,0±1,4	970±40
F7	Podna	Bela	33×33	55,3±1,0	47,3±1,4	960±40
F8	Podna	Tamno narandžasta	30×30	96,9±1,6	69,8±1,9	1020±40
F9	Podna	Crvena	33×33	62,9±1,1	52,0±1,6	1000±40
F10	Podna	Plava	20×20	49,4±0,6	45,4±1,3	668±29
F11	Podna	Narandžasta	20×20	58,3±1,7	50,6±1,6	870±40
F12	Podna	Narandžasta	20×20	50,3±0,6	48,0±1,4	740±30
F13	Podna	Bela	33×33	67,3±0,9	52,6±1,6	790±30
F14	Podna	Siva	33×33	66,3±1,3	52,7±1,6	980±40
F15	Podna	Bela	20×20	43,8±0,8	44,0±1,2	625±27
F16	Podna	Šarena	33×33	27,1±0,5	33,7±1,4	206±10
F17	Podna	Bela	33×33	62±4	43±4	400±30
F18	Podna	Zelena	33×33	69±6	58±5	680±50
W1	Zidna	Bež	40×25	56,8±0,8	43,6±1,5	790±40
W2	Zidna	Braon	40×25	43,1±0,6	36,2±1,3	720±30
W3	Zidna	Narandžasta	40×25	62,8±0,7	46,7±1,5	629±28
Opseg				27 – 97	34 – 70	206-1020
Prosek ± standardna devijacija				57±3	50±2	735±47

Dobijene vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti se kreću u intervalu od 31±4 Bq kg⁻¹ (uzorak iz Hrvatske) do 411±15 Bq kg⁻¹ (uzorak iz Italije). Prosečna vrednost radijumskog ekvivalentnog indeksa za sve uzorke iznosi 182±7 Bq kg⁻¹. Dobijene vrednosti prelaze preporučenu vrednost od 370 Bq kg⁻¹ (NEA-OECD, 1979) kod jednog uzorka iz Italije i jednog uzorka iz Kine, dok su ostale vrednosti ispod preporučene granice. Dobijeni rezultati su uporedivi sa ranijim istraživanjima radioaktivnosti keramičkih pločica u radovima autora (Janković et al., 2013; Lu et al., 2014; Turhan et al., 2011) za uzorke iz Hrvatske, Italije, Kine i Turske, date u Tabeli 8.39.

Dobijene vrednosti gama indeksa se kreću u intervalu od 0,11±0,01 (uzorak iz Hrvatske) do 1,45±0,05 (uzorak iz Italije). Srednja vrednost gama indeksa za sve analizirane uzorke iznosi 0,66±0,02. Dobijene vrednosti premašuju preporučenu vrednost $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000) za 3 uzorka iz Kine i jednog uzorka iz Italije. Dobijeni rezultati su uporedivi sa ranijim istraživanjima prijavljenim u radovima (Janković et al., 2013; Krstić et al., 2007; Todorović et al., 2014a; Turhan and Varinlioglu, 2012; Uosif, 2013), Tabela 8.39.



Slika 8.32 Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 78 uzoraka keramičkih pločica uvezenih iz drugih zemalja koje se koriste u građevinarstvu u Srbiji (a) i 21 uzorak keramičkih pločica proizvedenih u Srbiji u fabrici Zorka Keramika iz Tabele 8.35 (b).

Dobijene vrednosti alfa indeksa se kreću u rasponu od $0,08 \pm 0,01$ (uzorak iz Hrvatske) do $1,26 \pm 0,05$ (uzorak iz Italije). Dobijena srednja vrednost alfa indeksa za sve analizirane uzorke iznosi $0,32 \pm 0,02$. Vrednosti alfa indeksa za sve uzorke su ispod dozvoljene granice od $I_\alpha \leq 1$ (Joel et al., 2018), osim jednog uzorka iz Italije. Dobijene vrednosti su uporedive sa ranijim istraživanjima datim u istraživanju (Turhan and Varinlioglu, 2012).

Dobijene vrednosti spoljašnjeg hazard indeksa za svih 99 uzoraka se kreću i opsegu od $0,09 \pm 0,01$ (uzorak iz Hrvatske) do $1,11 \pm 0,04$ (uzorak iz Italije). Srednja vrednost spoljašnjeg hazard indeksa iznosi $0,49 \pm 0,02$. Sve dobijene vrednosti, osim jednog uzorka iz Italije i jednog iz Kine, su ispod preporučene granice $H_{\text{ex}} \leq 1$ (Alali et al., 2018). Dobijeni rezultati su uporedivi sa istraživanjima keramičkih pločica iz Kine i Egipta (Lu et al., 2014; Uosif, 2013), Tabela 8.39.

Dobijene vrednosti unutrašnjeg hazard indeksa se kreću i opsegu od $0,13 \pm 0,01$ (uzorak iz Hrvatske) do $1,79 \pm 0,06$ (uzorak iz Italije). Srednja vrednost unutrašnjeg hazard indeksa za svih 99 analiziranih uzoraka je $0,67 \pm 0,03$. Sve dobijene vrednosti, osim jednog uzorka iz Italije, jednog iz Španije, jednog iz Evropske Unije i četiri iz Kine, su ispod preporučene granice $H_{\text{ex}} \leq 1$ (Narloch et al., 2019). Dobijeni rezultati su uporedivi sa vrednostima dobijenim za keramičke pločice iz Kine (Lu et al., 2014), Tabela 8.39.

Tabela 8.36 Vrednosti korelacionog faktora (R^2) između varijabli izmerenih i procenjenih za 78 uzoraka keramičkih pločica uvezenih u Srbiju iz 9 zemalja sveta.

	A_{Ra}	A_{Th}	A_{K}	Ra_{eq}	I_γ	I_α	H_{in}	H_{ex}	D	E	$ELCR$
A_{Ra}	1										
A_{Th}	-	1									
A_{K}	-	-	1								
Ra_{eq}	0,76	0,81	0,68	1							
I_γ	0,74	0,80	0,71	0,99	1						
I_α	1	0,30	0,36	0,69	0,67	1					
H_{in}	0,86	0,69	0,61	0,98	0,97	0,86	1				
H_{ex}	0,76	0,81	0,68	1	0,99	0,76	0,98	1			
D	0,78	0,77	0,69	0,99	0,99	0,78	0,98	0,99	1		
E	0,78	0,77	0,69	0,99	0,99	0,78	0,98	0,99	1	1	
$ELCR$	0,78	0,77	0,69	0,99	0,99	0,78	0,98	0,99	1	1	1

Tabela 8.37 Vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}), gama indeksa (I_γ), alfa indeksa (I_α) i spoljašnjeg hazard indeksa (H_{ex}) za 99 uzoraka keramičkih pločica analiziranih u ovoj studiji. (SD=standardna devijacija)

Zemlja porekla	Broj uzoraka	Ra_{eq} (Bq kg ⁻¹)		I_γ		I_α		H_{ex}	
		Opseg	Prosek±SD	Opseg	Prosek±SD	Opseg	Prosek±SD	Opseg	Prosek±SD
Italija	41	60±6-411±15	178±10	0,21±0,02-1,45±0,05	0,65±0,03	0,09±0,02-1,26±0,05	0,33±0,03	0,16±0,02-1,11±0,04	0,48±0,03
Španija	17	94±6-266±13	180±12	0,34±0,02-0,98±0,05	0,66±0,04	0,19±0,02-0,56±0,05	0,30±0,02	0,25±0,01-0,72±0,04	0,30±0,02
Kina	9	156±9-380±14	277±21	0,56±0,03-1,36±0,05	0,99±0,07	0,24±0,03-0,93±0,05	0,51±0,07	0,42±0,02-1,03±0,04	0,75±0,06
Hrvatska	4	31±4-149±6	93±26	0,11±0,01-0,54±0,02	0,34±0,09	0,08±0,01-0,41±0,03	0,21±0,07	0,09±0,01-0,40±0,02	0,25±0,07
EU	3	127±7-265±13	193±33	0,46±0,02-0,95±0,05	0,70±0,12	0,27±0,02-0,58±0,05	0,38±0,08	0,34±0,02-0,72±0,04	0,52±0,09
Rumunija	1	80±4		0,14±0,01		0,29±0,01		0,22±0,01	
Turska	1	107±6		0,20±0,02		0,39±0,02		0,29±0,02	
Srbija	21	91±2-275±4	184±8	0,33±0,01-1,01±0,02	0,68±0,03	0,136±0,003-0,48±0,01	0,28±0,02	0,25±0,01-0,74±0,01	0,50±0,02
Slovenija	1	42±2		0,16±0,01		0,10±0,01		0,11±0,01	
Bugarska	1	102±6		0,36±0,02		0,20±0,02		0,28±0,02	
Opseg		31-411		0,11-1,45		0,08-1,26		0,09-1,11	
Prosek ± SD		182±7		0,66±0,02		0,32±0,02		0,49±0,02	
Preporučena vrednost		370 ^b		≤1 ^c		≤1 ^d		≤1 ^e	

^bpreporučena vrednost data u Ref.(NEA-OECD, 1979);

^cpreporučena vrednost data u Ref. (UNSCEAR, 2000);

^dpreporučena vrednost data u Ref. (Joel et al., 2018);

^epreporučena vrednost data u Ref. (Alali et al., 2018).

Tabela 8.38 Procenjene vrednosti unutrašnjeg hazard indeksa (H_{in}), jačine apsorbovane doze (D), godišnje efektivne doze (E) i rizika od nastanka kancera tokom života ($ELCR$) za 99 uzoraka analiziranih u ovoj studiji. (SD =standardna devijacija)

Zemlja porekla	Broj uzoraka	H_{in}		D (nGy h ⁻¹)		E (mSv y ⁻¹)		$ELCR \times 10^{-3}$	
		Opseg	Prosek±SD	Opseg	Prosek±SD	Opseg	Prosek±SD	Opseg	Prosek±SD
Italija	41	0,21±0,02-1,79±0,06	0,66±0,04	6,4±0,7-47,5±1,7	20,1±1,1	0,031±0,003-0,233±0,008	0,10±0,01	0,11±0,01-0,82±0,03	0,34±0,02
Španija	17	0,35±0,02-1,02±0,05	0,65±0,4	10,4±0,6-30,7±1,5	20,3±1,4	0,051±0,003-0,151±0,007	0,10±0,01	0,18±0,01-0,53±0,03	0,35±0,02
Kina	9	0,55±0,03-1,53±0,6	1,02±0,08	17±1-43,4±1,6	30,7±2,3	0,084±0,005-0,213±0,008	0,15±0,01	0,29±0,02-0,74±0,03	0,53±0,04
Hrvatska	4	0,13±0,01-0,63±0,03	0,4±0,1	3,6±0,4-17,3±0,7	10,6±2,9	0,018±0,002-0,085±0,004	0,05±0,01	0,06±0,007-0,30±0,012	0,18±0,05
EU	3	0,49±0,03-1,03±0,06	0,73±0,13	14,4±0,7-29,9±1,5	21,9±3,7	0,071±0,004-0,147±0,007	0,11±0,02	0,250±0,013-0,51±0,03	0,38±0,06
Rumunija	1	0,29±0,01		8,9±0,4		0,044±0,002		0,154±0,007	
Turska	1	0,40±0,02		12,2±0,7		0,060±0,003		0,21±0,012	
Srbija	21	0,32±0,01-1,01±0,01	0,65±0,03	9,95±0,23-31,19±0,51	20,84±0,96	0,049±0,001-0,153±0,002	0,102±0,005	0,171±0,04-0,536±0,009	0,36±0,02
Slovenija	1	0,16±0,01		4,9±0,3		0,024±0,001		0,085±0,005	
Bugarska	1	0,38±0,02		11,2±0,6		0,055±0,003		0,19±0,01	
Opseg		0,13-1,79		3,6-47,5		0,018-0,233		0,06-0,82	
Prosek ± SD		0,67±0,03		20,5±0,8		0,100±0,004		0,351±0,013	
Preporučena vrednost/ prosečna vrednost u svetu		≤1 ^e		55 ^f		≤1 ^g		0,3 ^h	

^epreporučena vrednost data u Ref. (Narloch et al., 2019);

^fprosečna vrednost data u Ref. (UNSCEAR, 2008);

^gpreporučena vrednost data u Ref. (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018);

^hprosečna vrednost data u Ref. (UNSCEAR, 2000).

Tabela 8.39 Poređenje koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti (Ra_{eq}), gama indeksa (I_γ), alfa indeksa (I_α), spoljašnjeg i unutrašnjeg hazard indeksa (H_{ex} , H_{in}), jačine apsorbirane doze (D) i godišnje efektivne doze (E) za keramičke pločice u ovoj studiji i drugim zemljama u svetu.

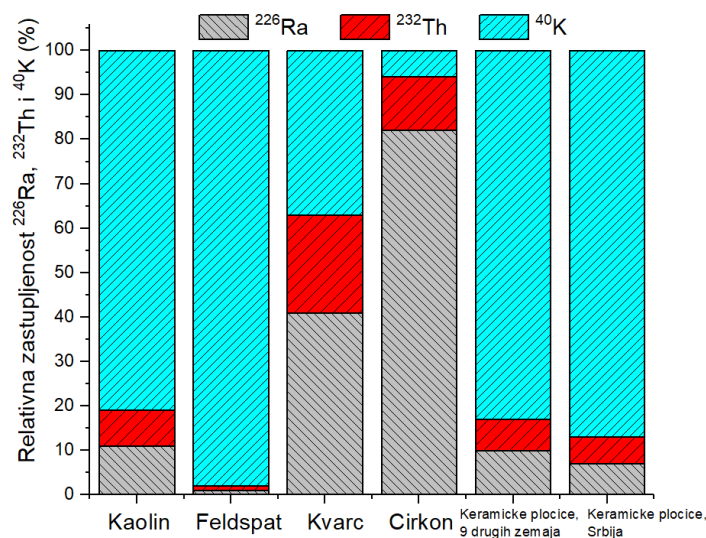
Zemlja porekla	Broj uzoraka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			Ra_{eq} (Bq kg^{-1})	I_γ	I_α	H_{ex}	H_{in}	D (nGy h^{-1})	E (mSv y^{-1})	Reference
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K								
Hrvatska	5	61-95	53-66	560-810	185-239	0,69-0,96	-	-	-	160-220	0,80-1,09	Janković et al., 2013
Kina	-	49,6-94,8	23,2-52,5	285,5-644,3	104,8-219,5	-	-	0,28-0,59	0,42-0,85	94-196,5	0,46-0,96	Lu et al., 2014
Egipat	12	33,5-78,5	55,1-109,5	201,9-314,5	-	0,47-0,88	-	0,36-0,68	-	14,3-26,7	0,07-0,13	Uosif, 2013
Grčka	8	25-174	29-47	411-786	-	0,35-1,02	-	-	-	11-33	0,052-0,163	Krstić et al., 2007
Indija	28	9,9-30,8	24,7-70,4	123-416	62,4-136,5	-	-	-	-	52,7-115,7	0,25-0,56	Rajamannan et al., 2013
Italija	4	79-150	60-72	590-1030	210-322	0,79-1,29	-	-	-	190-290	0,91-1,41	Janković et al., 2013
Japan	10	31-170	35-110	260-980	-	-	-	-	-	-	0,05-0,14	Iwaoka et al., 2015
Srbija	4	50-79	43-71	620-1049	-	0,50-0,96	-	-	-	20-120	0,09-0,59	Krstić et al., 2007
Srbija	4	43-75	49-65	556-729	-	-	-	-	-	-	-	Manić et al., 2015
Srbija	5	28-112	37-74	690-1450	-	0,60-0,98	-	-	-	17,6-30,6	0,09-0,15	Todorović et al., 2014a
Španija	27	14-362	6-88	43-1140	-	2,03	-	-	-	267,9	1,31	Madrua et al., 2018
Turska	39	37,8-195,2	41,2-114,8	17-1044	-	0,75	0,41	-	-	15,6-42,8	0,07-0,21	Turhan and Virinlioglu, 2012
Turska	48	30-326	25,6-123	10,8-1249	11,5-486,1	-	-	-	-	-	-	Turhan et al., 2011
Jemen	10	0-549	0-267	24-869	57-946	0,42-6,46	-	0,15-2,55	-	27-420	0,27-4,22	Amin and Naji, 2013
Kamerun	-	15.13-17.05	12.69-13.96	-	36.03	-	-	0.097	-	16.1	0.079	Ngachin et al., 2007
Nigerija	10	27-241	41-445.5	270-670	138.44-784.95	0.49-2.79	0.19-1.21	0.49-2.28	0.37-2.11	70.61-352.51	0.65-3.69	Joel et al., 2018
Druge zemlje	-	30-200	20-200	160-1410	-	-	-	-	-	-	-	IAEA, 2003
Zemlje u svetu	-	50	50	500	-	-	-	-	-	-	-	UNSCEAR, 1993
10 zemalja u svetu	99	16-252	4-117	<60-1110	31-411	0,11-1,45	0,08-1,26	0,09-1,11	0,13-1,79	3,6-47,5	0,018-0,233	Ova studija
Srbija	21	27-97	34-70	206-1020	91-275	0,33-1,01	0,14-0,48	0,25-0,74	0,32-1,01	9,95-31,19	0,049-0,153	Ova studija

Dobijene vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja se kreću u intervalu od $3,6 \pm 0,4$ nGy h⁻¹ (uzorak iz Hrvatske) do $47,5 \pm 1,7$ nGy h⁻¹. Srednja vrednost jačine apsorbovane doze gama zračenja za svih 99 uzoraka keramičkih pločica je $20,5 \pm 0,8$ nGy h⁻¹. Procenjene vrednosti za sve uzorke su ispod prosečne vrednosti za građevinske materijale od 55 nGy h⁻¹ (UNSCEAR, 2008). Dobijene vrednosti su uporedive sa rezultatima iz ranijih istraživanja za keramičke pločice iz Egipta, Turske, i Srbije (Turhan and Varinlioglu, 2012; Todorović et al., 2014a; Uosif, 2013), Tabela 8.39.

Dobijene vrednosti godišnjih efektivnih doza se kreću u rasponu od $0,018 \pm 0,002$ mSv y⁻¹ (uzorak iz Hrvatske) do $0,233 \pm 0,008$ mSv y⁻¹ (uzorak iz Italije). Prosečna godišnja efektivna doza za 99 uzoraka keramičkih pločica iznosi $0,100 \pm 0,004$ mSv y⁻¹. Dobijene vrednosti godišnjih efektivnih doza za sve uzorke su ispod preporučene vrednosti od 1 mSv y⁻¹ (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018). Dobijene vrednosti su uporedive sa vrednostima iz ranijih istraživanja za keramičke pločice iz Turske (Turhan and Varinlioglu, 2012), Indije (Rajamannan et al., 2013), Japana (Iwaoka et al., 2015) i Srbije (Todorović et al., 2014a), Tabela 1.

Dobijene vrednosti rizika od nastanka kancera tokom života se kreću u rasponu od $(0,06 \pm 0,007) \cdot 10^{-3}$ (uzorak iz Hrvatske) do $(0,82 \pm 0,03) \cdot 10^{-3}$ (uzorak iz Italije). Srednja vrednost rizika od nastanka kancera tokom života za svih 99 analiziranih uzoraka iznosi $(0,351 \pm 0,013) \cdot 10^{-3}$. Dobijene vrednosti su kod 51 uzorka iznad prosečne vrednosti za građevinske materijale od $0,3 \cdot 10^{-3}$ (UNSCEAR, 2000).

U Tabeli 8.36 date su vrednosti korelacionih faktora (R^2) za uspostavljene korelacije između koncentracija aktivnosti analiziranih radionuklida, kao i veličina korišćenih za procenu radijacionog rizika od korišćenja u enterijeru. Među svim veličinama uspostavljene su značajne korelacije sa korelacionim faktorom $R^2 > 0,6$.



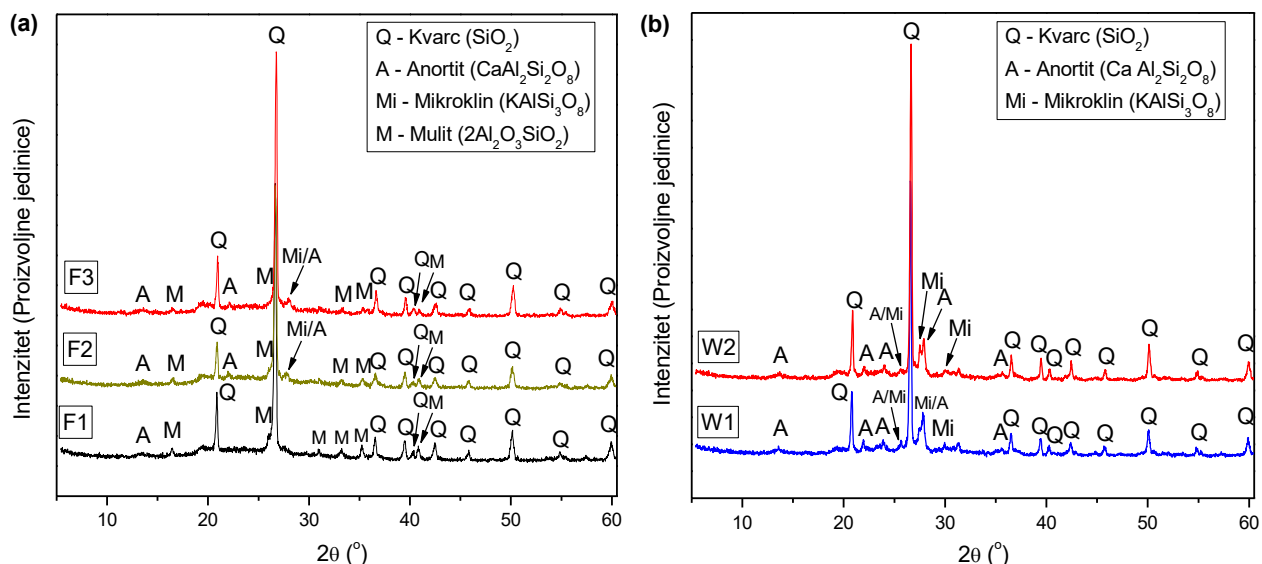
Slika 8.33 Poređenje relativnih zastupljenosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K u prosečnoj koncentraciji aktivnosti za 14 uzoraka kaolina, 19 uzoraka feldspata, 20 uzoraka kvarca 78 keramičkih pločica uvezenih iz drugih zemalja i 21 uzorak keramičkih pločica proizvedenih u Srbiji analiziranih u ovoj studiji.

Na Slici 8.33 dato je poređenje relativnih zastupljenosti koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K za sirovine koje se koriste za proizvodnju keramičkih pločica, kao i zastupljenost u samim keramičkim poločicama proizvedenim u 9 zemalja u svetu kao i za one proizvedene u Srbiji.

Uočava se da je distribucija ^{226}Ra u cirkonu i kvarcu najveća, dok je u kaolinu i feldspatu znatno niža. Zastupljenost ^{232}Th je najveća u kvarcu, a ^{40}K najviša u feldspatu i kaolinu. Na osnovu datih relativnih zastupljenosti analiziranih radionuklida uočava se da keramičke pločice proizvedene u Srbiji imaju relativno sličnu zastupljenost kao i u ostalih 9 zemalja u svetu, i da u poređenju sa sirovinskim materijalima nivo radioaktivnosti finalne keramičke pločice zavisi pre svega od zastupljenosti radionuklida u kaolinu i feldspatu kao sirovinama sa najveći udelom pri proizvodnji.

8.4.1 Strukturna i hemijska karakterizacija keramičkih pločica proizvedenih u Srbiji

Rezultati rendgenske strukturne analize (XRD) za 5 odabranih uzoraka keramičkih pločica proizvedenih u Srbiji prikazani su na Slici 8.34a (za 3 uzorka podnih keramičkih pločica) i Slici 8.34b (za 2 uzorka zidnih keramičkih pločica). U tri uzorka podnih keramičkih pločica uočeno je prisustvo četiri mineralne faze kvarc (SiO_2), mulit ($2\text{Al}_2\text{O}_3\text{SiO}_2$), anortit ($\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$) i mikroklin (KAlSi_3O_8). U dva uzorka zidnih keramičkih pločica uočene su tri mineralne kvarc (SiO_2), anortit ($\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$) i mikroklin (KAlSi_3O_8). Kristalna faza kvarca u svim uzorcima potiče od kaolina i kvarcnog peska kao glavnih komponenti pri proizvodnji, dok faza anortita potiče iz feldspata. Uočeno je prisustvo većeg udela feldspatne mineralne faze u uzorcima zidnih keramičkih pločica u odnosu na podne zbog efekta pečenja na nižoj temperaturi ($<1250^\circ\text{C}$), dok se podne keramičke pločice peku na višoj temperaturi. Dobijeni rezultati mineraloške analize (XRD) su u dobroj saglasnosti sa rezultatima hemijske analize (XRF).



Slika 8.34 Mineraloška analiza (XRD) podnih (a) i zidnih (b) keramičkih pločica proizvedenih u Srbiji u fabrici Zorka Keramika iz Tabele 8.35.

Rezultati XRF elementarne analize za 5 uzoraka keramičkih pločica dati su u Tabeli 8.40. Rezultati elementarne analize su predstavljeni za glazuru i biskvit keramičkih pločica. Elementi sa najvećom zastupljenošću u glazuri keramičkih pločica su: Si, Ca, Zr, Al, Zn i K sa masenim udelom u rasponu od 33,7 do 45,36 mas. % za Si; od 6,31 do 10,15 mas. % za Ca; od 2,61 do 14,84 mas. % za Zr; od 4,52 do 10,41 mas. % za Al; od 0,20 do 8,79 mas. % za Zn; i od 1,15 do 2,66 mas. % za K. Maseni udeo ostalih analiziranih elemenata je manji od 1 mas. %. Elementi sa

najvećom zastupljenošću u biskvitu su: Si, Al, Ca, K i Fe sa masenim udelom u rasponu od 37,7 do 44,10 mas. % za Si; od 12,16 do 15,0 mas. % za Al; od 0,69 do 4,96 mas. % za Ca; od 0,67 do 2,72 mas. % za K; i od 1,40 do 1,69 mas. % za Fe. Primetno je da je maseni udeo K i Ca veći u zidnim nego u podnim keramičkim pločicama zbog većeg udela Ca-, K- feldspata, Slika 8.34 i Tabela 8.40. Masenu udeo ostalih analiziranih elemenata je manji od 1 mas. %.

Tabela 8.40 XRF elementalna analiza (mas. %) za uzorke keramičkih pločica proizvedenih u Srbiji u fabrici Zorka Keramika iz Tabele 8.35.

Oznaka Uzorka	Glazura/Biskvit	Na	Mg	Al	Si	P	S	Cl	K	Ca	Ti	Cr	Mn	Fe	Cu	Zn	Sr	Zr
W1	Glazura	0.38	0.75	7.89	33.7	0.001	<0.001	0.71	1.02	6.52	<0.001	0.013	0.007	0.11	0.019	4.44	0.04	5.66
	Biskvit	0.08	1.73	13.7	37.7	0.001	0.019	0.014	2.74	4.96	0.34	0.01	0.006	1.43	0.002	0.036	0.023	0.123
W2	Glazura	0.97	0.44	5.60	40.83	0.048	0.009	0.16	1.41	8.49	0.051	0.37	0.003	0.75	0.016	8.79	0.05	2.61
	Biskvit	0.12	1.15	13.01	39.51	0.016	0.24	0.41	2.48	4.84	0.43	0.005	0.006	1.40	0.002	0.015	0.020	0.088
F1	Glazura	1.02	0.94	5.04	38.9	0.08	0.049	0.55	1.12	6.31	0.093	0.044	0.002	0.78	0.018	8.19	0.015	4.41
	Biskvit	0.23	1.38	14.41	43.28	0.11	0.21	0.001	2.69	0.98	0.44	0.031	0.003	1.69	0.002	0.054	<0.001	0.22
F2	Glazura	0.17	0.80	4.52	45.36	0.001	0.001	0.001	0.68	10.15	0.096	0.037	0.004	0.23	-	1.79	0.024	8.55
	Biskvit	0.38	0.98	15.0	43.38	0.08	0.045	0.016	2.45	0.69	0.42	-	0.012	1.47	-	0.022	0.024	0.103
F3	Glazura	0.81	0.53	10.41	36.84	0.013	<0.001	0.074	0.85	7.76	0.33	0.020	0.006	0.20	0.046	0.20	0.011	14.84
	Biskvit	0.26	2.49	12.16	44.10	0.039	0.055	0.037	2.65	1.69	0.34	0.007	0.005	1.49	0.001	0.034	0.017	0.16

Na osnovu poznate činjenice da 1% stabilnog K sadrži oko 310 Bq kg⁻¹ primordijalnog ⁴⁰K (Pilakouta et al., 2017), može se uočiti da rezultati izmerenog sadržaja K za sve uzorke keramičkih pločica iz Tabele 8.35 daju dobro slaganje sa onima izmerenim metodom gama spektrometrije (Tabela 8.35). Odsupanje ovih rezultata je oko 7%. Izvor ovog odstupanja leži u činjenici da su metodom gama spektrometrije mereni uzorci zajedno sa glazurom sa manjim sadržajem ovog radionuklida, koji je umanjio relane rezultate u samom biskvitu. Upotrebom XRF metode može se proceniti da je sadržaj ⁴⁰K u glazuri keramičkih pločica analiziranih u ovoj studiji u rasponu od 211 Bq kg⁻¹ (uzorak F2) do 437 Bq kg⁻¹ (uzorak W2).

Na osnovu analize sirovinskih materijala i finalnih keramičkih pločica u ovom poglavlju mogu se izvesti sledeći zaključci. Na osnovu izmerenih vrednosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K, izvršena je detaljna procena radijacionog rizika za radnike u keramičkoj industriji, a dobijeni rezultati pokazuju da ne postoji posebna opasnost od izloženosti radnika jonizujućem zračenju tokom rada sa NORM materijalima (kaolin, feldspat, kvarc i cirkon) u srpskim keramičkim industrijama. Izmerene vrednosti pokazuju da relativni doprinos ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K ukupnoj koncentraciji aktivnosti u keramičkim pločicama zavisi od relativnog doprinosa tih radionuklida u kaolinu i feldsparu, kao glavnim polaznim sirovinama prilikom proizvodnje.

Na osnovu dobijenih vrednosti može se zaključiti da je koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra značajno viša kod uzoraka cirkona u poređenju sa ostalim sirovinama koje se koriste u keramičkoj industriji. Dobijeni hazard indeksi prelaze preporučene vrednosti, dok godišnje efektivne doze ne prelaze dozvoljenu granicu od 20 mSv godišnje za sve uzorke. Procenjeni alfa dozni ekvivalenti i brzine masenih ekshalacija radona za cirkon uporedivi su sa vrednostima za ostale građevinske materijale. Iz ovoga se može zaključiti da ne postoji posebna opasnost od izloženosti radnika u keramičkoj industriji jonizujućem zračenju nastalom iz cirkonskih minerala. Primena standardnih mera predostrožnosti tokom rada sa mineralima cirkona, kao što je održavanje lične higijene posle rada, dovoljna je da se nivo radijacionog rizika smanji na prihvatljiv nivo.

Radijacioni rizik je takođe procenjen za izloženost ljudi zračenju koji potiče iz keramičkih pločica, gde dobijeni rezultati pokazuju da se analizirane keramičke pločice mogu smatrati u potpunosti radiološki bezbednim i ne predstavljaju značajnu opasnost od izloženosti zračenju. Rezultati XRD strukturne analize keramičkih pločica pokazuju da su glavne uočene mineralne faze: kvarc, mulit i feldspat (anorthit i mikroklin). XRF analizom dobijeni sadržaj K i Ca u

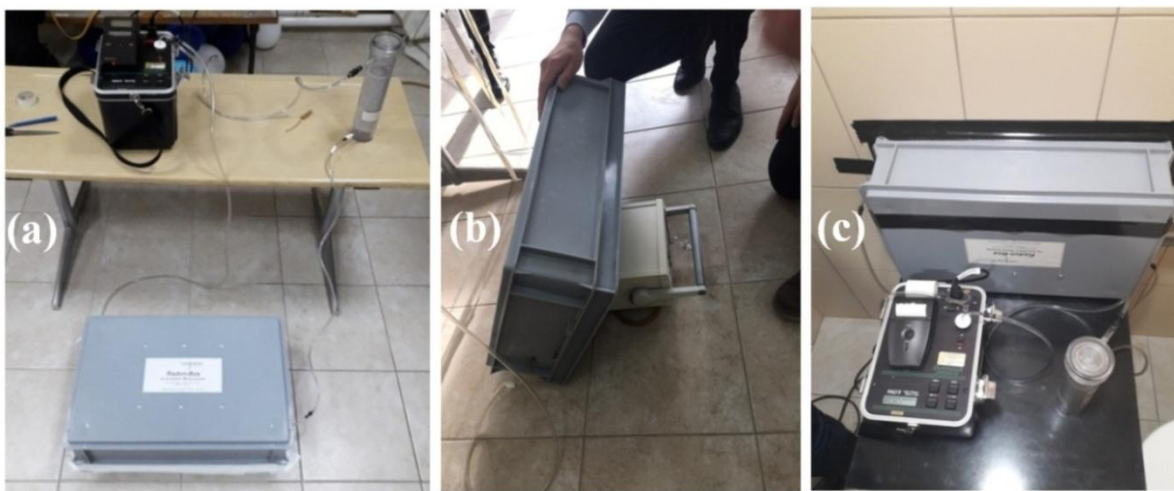
keramičkim pločicama je do 3 mas. % za K oko 10 mas. % za Ca koji potiče iz faze feldspata. Sadržaj Al je oko 14 mas.% sa poreklom iz mulitne i feldspatne faze (koje potiču od kaolina i feldspata kao glavnih sirovina pri proizvodnji).

Izmeren je sadržaj elementarnog Si u keramičkim pločicama od 45 mas.%, koji ima poreklo iz kaolina i kvarca kao sirovina. Na osnovu vrednosti godišnjih efektivnih doza za uzorke kaolina, feldspata i kvarca može se zaključiti da je njihova upotreba u industriji keramike u potpunosti radiološki bezbedna. Izmereni udeo elementarnog Zr i Si u glazuri keramičkih pločica iznosi do 15 mas.% odnosno do 45 mas.%, respektivno. A najveća izmerena koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u cirkonijum silikatu je 4120 Bq kg^{-1} . Na osnovu dobijenih vrednosti gama indeksa i godišnjih efektivnih doza za uzorke cirkona može se zaključiti da postoji potencijalni radijacioni rizik od njegove upotrebe u proizvodnji keramičkih pločica.

Da bi se ispitao uticaj ekshalacije radona iz keramičkih pločica, odnosno njegov doprinos ukupnij unutrašnjoj koncentraciji radona, izvršena su dodatna istraživanja u narednom poglavlju.

8.4.2 Merenje ekshalacije radona iz keramičkih pločica

S obzirom da keramičke pločice imaju široku upotrebu u garđevinarstvu tj. eneterijeru u Srbiji, ali i svetu, za oblaganje podnih i zidnih površina, ispitivan je njihov doprinos ekshalacije radona u ukupnoj koncentraciji radona u zatvorenom prostoru.

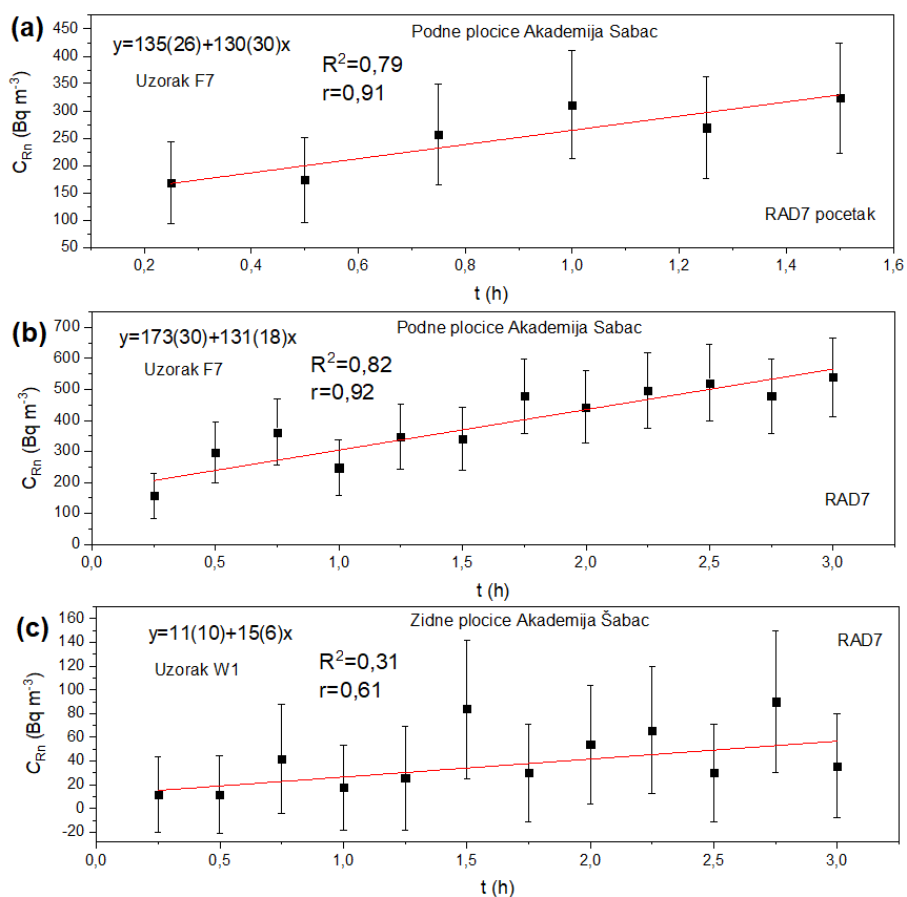


Slika 8.35 Eksperimentalne postavke merenja ekshalacije radona iz podnih (a i b) i zidnih (c) keramičkih pločica u radonskoj komori zapremine 39 l aktivnim uređajima RAD7 i RTM 1688-2 u dve prostorije na Akademiji strukovnih studija Šabac.

U ovoj studiji, da bi se odredila brzina površinske ekshalacije radona (E_S) iz podnih i zidnih keramičkih pločica korišćeni su aktivni uređaji RAD7 i RTM 1688-2 i radonska komora zapremine 39 l da bi se stvorio zatvoren kružni sistem protoka vazduha. Eksperimentalne postavke merenja prikazana je na Slici 8.35. Vazduh se zajedno sa radonom iz podnih keramičkih pločica (i iz tla ispod) usisava u aktivni uređaj i konstantno kruži kroz zatvoren sistem koji uključuje aktivnu zapreminu uređaja, cev za aprorpciju vlage (CaSO_4) (samo kod uređaja RAD7), plastične cevi i

komoru za merenje ekshalacije radona. Dimenzije komore za merenje ekshalacije radona (“radon box-a”) su $60 \text{ cm} \times 40 \text{ cm} \times 16,3 \text{ cm}$, Slika 8.35. Kako bi se sprečilo odnosno minimiziralo curenje radona iz merne komore zaptivanje dodirnih kontakata merne komore sa keramičkim pločicama je vršeno pomoću izolir trake, Slika 8.35. Merenja ekshalacije radona su vršena u ciklusima po 15 minuta, prema ISO 11665-7 standardu (ISO 11665-7, 2012). U jednoj od prostrija merenje ekshalacije radona je sprovedeno do uspostavljanja sekularne radioaktivne ravnoteže. Koristeći izmerene podatke, brzine površinske ekshalacije radona su dobijene iz dva različita fita, linearnog i eksponencijalnog prema relacijama (3.35 i 3.28), u zavisnosti od vremenskog trajanja merenja ekshalacije radona.

Merenja su izvršena iz podnih i zidnih keramičkih pločica na Odseku za medicinske i poslovno-tehnološke studije Akademije strukovnih studija Šabac u tri različite prostorije odnosno za tri vrste keramičkih pločica iz Tabele 8.35 proizvođača Zorka Keramika (uzorci F2 i F7-podne keramičke pločice i uzorak W1-zidne keramička pločice). Prostorije u kojima su vršena merenja su Klub studenata (F7), Laboratorija za fiziku (F2) i nastavnički toalet (W1). Ispod analiziranih podnih keramičkih pločica nalazi se sloj betona i ravnujući sloj (košuljica), dok je zid ispod zidnih keramičkih pločica u nastavničkom toaletu izgrađen od šupljeg građevinskog termobloka (čime je doprinos radona od drugih građevinskih materijala minimiziran u ovoj prostoriji u odnosu na podne keramičke pločice).

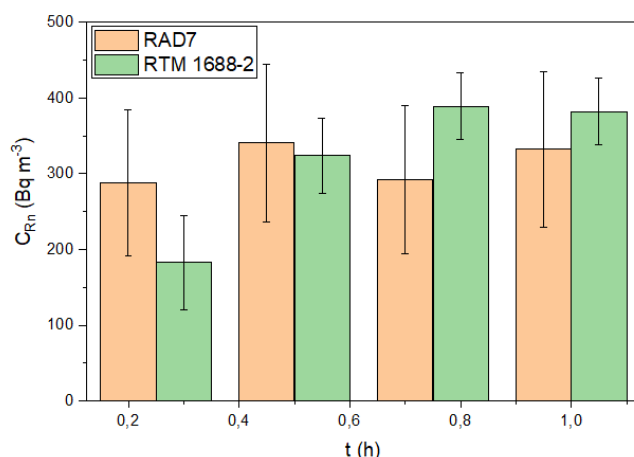


Slika 8.36 Rezultati merenja površinske ekshalacije radona (C_{Rn}) uređajem RAD7 iz podnih i zidnih keramičkih pločica iz Tabele 8.35 na Akademiji strukovnih studija Šabac u prostorijama Kluba studenata (a i b) i nastavničkom toaletu (c) u vremenskim intervalima od 1,5 i 3 h u ciklusima po 15 minuta.

Merenja ekshalacije radona su izvršena 13. februara 2020. godine u prostorijama Kluba studenata (uzorak F7), od 13 – 16.2.2020. u Laboratoriji za fiziku (uzorak F2) i 3. marta 2020. godine u nastavničkom toaletu (uzorak W1) za zidne keramičke pločice. Pre početka merenja RAD7 i RTM 1688-2 su prođuvani čistim vazduhom van prostorije, kako bi se iz aktivnih komora uklonio zaostali radon. Za uzorke F7 i W1 izvršena su merenja od 5, 6 i 12 ciklusa po 15 minuta sa RAD7 i RTM 1688-2 aktivnim uređajima. Rezultati za kraća vremena merenja su linerano fitovani i prikazani na Slici 8.36 imajući u vidu da linerana funkcija (relacija (3.35)) dobro aproksimira ekshalaciju radonskog gasa u početnim trenucima merenja uz zanemarivanje efekata povratne difuzije i curenja radona (ISO 11665-7, 2012). Prema saznanjima autora i prema dostupnim istraživanjima, može se reći da ovakav način merenja ekshalacije radona direktno iz poda u prostoriji radonskom komorom predstavlja prvo istraživanje ovog tipa u Srbiji.

Tabela 8.41 Parametri ekshalacije radona mereni za uzorke podnih i zidnih keramičkih pločica: vreme merenja (t), početna koncentracija radona (C_0), koeficijent pravca linearnog fita (k) i brzine površinske ekshalacije radona (E_s) određeni merenjem radona aktivnim uređajem RAD7.

Uzorak	Prostorija	t (min)	C_0 (Bq m^{-3})	k ($\text{Bq m}^{-3} \text{h}^{-1}$)	E_s ($\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$)
F7	Klub studenata	90	135 ± 26	130 ± 30	$21,7 \pm 5,0$
F7	Klub studenata	180	173 ± 30	131 ± 18	$21,8 \pm 3,0$
W1	Nastavnički toalet	180	11 ± 10	15 ± 6	$2,5 \pm 1,0$



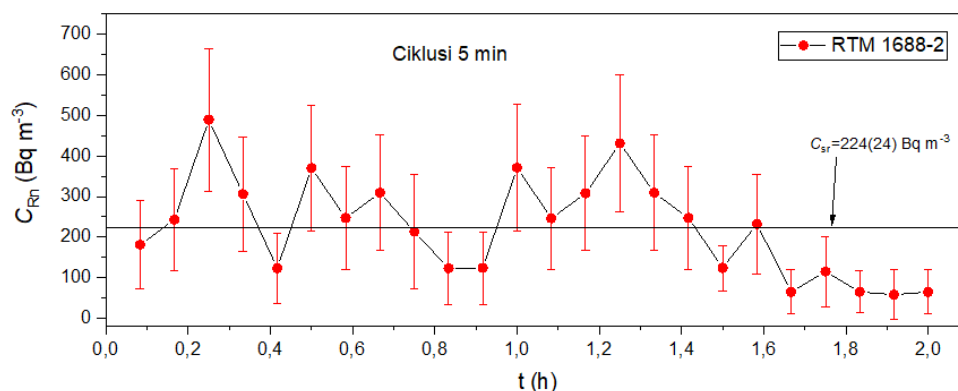
Slika 8.37 Poređenje vrednosti koncentracija aktivnosti radona (C_{Rn}) izmerenih u Klubu studenata na Akademiji strukovnih studija Šabac merenjem ekshalacije istovremeno aktivnim uređajima RAD7 i RTM 1688-2 u ciklusima po 15 min.

Parametri dobijeni nakon uspostavljanja linearnih korelacija, kao i vrednosti brzina površinskih ekshalacija (E_s) prikazani su u Tabeli 8.41. Dobijena početna koncentracija radona u prostoriji Kluba studenata (C_0) za vremena merenja od 90 min i 180 min su u okvirima mernih nesigurnosti. Vrednost početne koncentracije radona tokom merenja ekshalacije radona u nastavničkom toaletu za uzorak W1 je oko 13 puta niža u odnosu na vrednost u Klubu studenata. Potrebno je naglasiti da je režim provetrenosti bio prilično loš duži vremenski period u Klubu studenata u kome je merena ekshalacija radona, dok je u nastavničkom toaletu normalan i čest režim provetravanja, što je rezultiralo i nižom procenjenom vrednosti unutrašnje koncentracije radona. Dobijena vrednost koeficijenta pravca lineranog fita za uzorak F7 tokom 90 min i 180 min merenja je približno ista sa manjom mernom nesigurnosti za oko 40% za duplo duže vreme merenja od 180 min. Usled približno istih vrednosti koeficijenata pravca dobijene su isto tako

približne vrednosti brzina površinske ekshalacije radona za uzorak F7, dok je brzina površinske ekshalacije radona oko 8,8 puta niža za uzorak W1, Tabela 8.41. Ovo je direktna posledica eliminisanja efekta tla koje doprinosi povećanju ukupne izmerene ekshalacije radona.

Da bi se validovali dobijeni rezultati uređajem RAD7 merenja ekshalacije radona su izvršena i uređajem RTM 1688-2. Merenja u Klubu studenata za uzorak F7 su sprovedena umetanjem aktivnog uređaja RTM 1688-2 u mernu komoru, Slika 8.35b, nakon čega je merna komora takođe priključena na aktivni uređaj RAD7, tako da su merenja sa oba uređaja vršena istovremeno. Merenja su sprovedena za vreme od 1 h u ciklusima po 15 min za oba uređaja. Izmerene vrednosti za 4 ciklusa merenja prikazane su na Slici 8.37. Uočava se da su sve izmerene vrednosti sa oba uređaja u okvirima njihovih mernih nesigurnosti, što potvrđuje tačnost dobijenih rezultata.

Uređajem RTM 1688-2 merena je i koncentracija radona u samoj prostoriji Kluba studenata za vreme od 2 h u ciklusima po 5 min. Dobijeni rezultati prikazani su na Slici 8.38. Mogu se uočiti varijacije u koncentraciji izmerenog radona, sa prosečnom vrednosti od $224 \pm 24 \text{ Bq m}^{-3}$ (prosečna vrednost \pm standardna devijacija). Dobijena prosečna vrednost je uporediva sa vrednostima procenjenim iz *intersept*-a lineranog fita $173 \pm 30 \text{ Bq m}^{-3}$ određenog uređajem RAD7, što potvrđuje ispravnost korišćenog načina procene jer su dobijene vrednost uporedive u okvirima iskazanih mernih nesigurnosti.



Slika 8.38 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti radona u samoj prostoriji (Klub studenata) uređajem RTM 1688-2 u ciklusima po 5 min.

Da bi se procenio doprinos koncentracije radona od keramičkih pločica ukupnoj vrednosti koncentracije aktivnosti radona u prostoriji Kluba studenata i nastavničkom toaletu određena je brzina ekshalacije radona iz samih keramičkih pločica aktivnim uređajem RAD7, kao i vrednosti koeficijenta emanacije (ϵ). Pločice su izrezane u cilindričnom obliku, prečnika 6 cm, debljine 8,8 mm. Za oba uzorka su izrezane po 3 ploče navedenih dimenzija iz kojih je praćena ekshalacija radona uređajem RAD7 u periodu od oko 100 h, za uzorke F7 i W1. Površina oba uzorka keramičkih pločica je iznosila $2,19 \times 10^{-2} \text{ m}^2$. Merenja su sprovedena u mernoj komori zapremine 4,25 l, gde je efektivna zapremina mernog sistema iznosila oko 5,09 l. Vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima izmereni su metodom gama spektrometrije. Dobijene vrednosti površinske ekshalacije radona, koeficijenta emanacije i unutrašnje koncentracije radona koja potiče od keramičkih pločica date su u Tabeli 8.42. Dobijene vrednosti brzina površinske ekshalacije radona su niže u poređenju sa vrednostima za druge građevinske materijale (Al-Azmi et al., 2018; Faheem and Matiullah, 2008; Shoeib and Thabayneh, 2014; Stoulos et al., 2003), te se sa razlogom u pojedinim istraživanjima niska brzina ekshalacije radona iz pojedinih uzoraka keramičkih pločica nije mogla označiti detektabilnom (Chen et al., 2010; Righi and Bruzzi, 2006).

Dobijene vrednosti brzine površinske ekshalacije su uporedive sa rezultatima datim u israživanjima (Abo-Elmagd et al., 2018; Chen et al., 2010).

Tabela 8.42 Brzine površinske ekshalacije radona (E_s), koeficijenti emanacije (ε) kao i procenjene vrednosti doprinosa unutrašnjoj koncentraciji radona (C_{Rn}) određeni aktivnim uređajem RAD7 za uzorke keramičkih pločica F7 i W1.

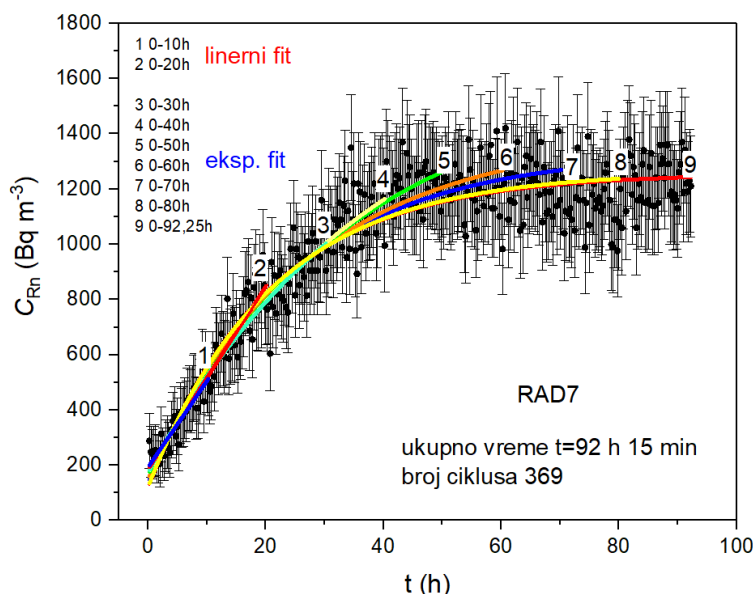
Uzorak	A_{Ra} (Bq kg ⁻¹)	M (g)	S (m ²) × 10 ⁻²	E_s (mBq m ⁻² h ⁻¹)	ε (%)	C_{Rn} (mBq m ⁻³) ($\lambda_v=0,1$ h ⁻¹)
F7	53,5±1,0	171,54±0,01	2,19	18,5±3,5	0,57±0,11	57±11
W1	56,8±0,8	147,95±0,01	2,19	16,9±2,3	0,59±0,08	334±46

Na osnovu dobijenih vrednosti brzina površinske ekshalacije radona kao i izmerenih vrednosti ²²⁶Ra u uzorcima, određene su vrednosti koeficijenta emanacije radona (ε). Dobijene vrednosti su manje od 1%, što je ispod tipičnih vrednosti za građevinske materijale koje su u rasponu od (1 – 30) % (Bikit et al., 2011), što je direktna posledica velike gustine matrice (oko 2350 kg m⁻³), relativno niskog sadržaja ²²⁶Ra, kao i niske poroznosti materijala koja je oko 5,5% za uzorak F7, (poglavlje 12). Vrednosti koeficijenta emanacije su uporedive sa dobijenim vrednostima u istraživanju (Verità et al., 2009). Poređenjem vrednosti brzine površinske ekshalacije radona određene merenjem u radonskoj komori uređajem RAD7 za uzorak W1 može se videti da je izmerena drastično viša vrednost. Imajući u vidu da je vlažnost u nastavničkom toaletu viša u odnosu na onu u Klubu studenata, zbog isparavanja vode, te se može reći da je vlažnost glavni uzrok za dobijenu višu vrednost. Ovaj efekat povećanja brzine ekshalacije radona sa povećanjem vlažnosti uočen je i kod drugih građevinskih materijala (Faheem and Matiullah, 2008; Hassan et al., 2011; Saad et al., 2014; Tuccimei et al., 2006) i direktna je posledica povećanja koeficijenta emanacije usled povećanja vlažnosti kako je uočeno i u istraživanju (Cosma et al., 2001), a posledica je mikrostrukture materijala (Janik et al., 2015).

Na osnovu vrednosti brzina površinske ekshalacije, prema relaciji (3.35), procenjene su vrednosti unutrašnjih koncentracija radona (C_{Rn}). Površina prekrivena podnim keramičkim pločicama F2 u prostoriji Kluba studenata iznosi $S=69,71$ m², dok je zapremina vazduha u prostoriji $V=209,13$ m³. Površina zidnih pločica W1 čija je ekshalacija radona merena u nastavničkom toaletu iznosi $S=14$ m², a zapremina vazduha $V=6,6$ m³. Odavde sledi da je odnos S/V potreban za procenu unutrašnje koncentracije radona prema relaciji (3.22) za Klub studenata 0,33 m⁻¹ i 2,12 m⁻¹ za nastavnički toalet. Dobijene vrednosti unutrašnjih koncentracija radona pri lošoj provetrenosti u prostoriji (pretpostavljena vrednost $\lambda_v=0,1$ h⁻¹) koje potiču u prostorijama isključivo od analiziranih uzoraka keramičkih pločica su manje od 1 Bq m⁻³ za oba analizirana uzorka. Tako da se njihov uticaj na ukupnu koncentraciju aktivnosti radona može zanemariti, što je potvrđeno i u istraživanju (Saad et al., 2014).

Da bi se ispitala varijacije ekshalacije radona tokom vremena, merenja su sprovedena za uzorke keramičkih pločica F2 u Laboratoriji za fiziku takođe na Akademiji strukovnih studija Šabac. Merenja su izvršena u opisanoj radonskoj komori zapremine 39 l tokom 92,25 h u ciklusima po 15 minuta do postizanja sekularne radioaktivne ravnoteže aktivnim uređajem RAD7. Izmerena koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra u F2 uzorku keramičkih pločica iznosi 65,3±1,0 Bq kg⁻¹. Dobijena kriva ekshalacije radona prikazana je na Slici 8.39. Koncentracija radona se u početnim trenucima merenja linearno povećava i nakon određenog vremena teži da se održava na istoj, ravnotežnoj, vrednosti kao što je prikazano na Slici 8.39. Pošto je merenje početo sa nekom koncentracijom aktivnosti koja je prisutna u prostoriji (C_0), ekshalacija radona iz poda i tla ispod izaziva dodatani porast koncentracije radona u mernoj komori. U početnim satima merenja (0-20 h) nagomilavanje

radona u mernoj komori se može aproksimirati linearnom krivom. Sa povećanjem koncentracije radona u mernoj komori smanjuje se gradijent koncentracije između komore i pločica, čime se povećava efektivna konstanta raspada radona, što se može uočiti po nagibu eksponencijalnih krivi za različite intervale merenja. Nakon 60 h od početka merenja ekshalacije radona uspostavljena je radioaktivna ravnoteža.



Slika 8.39 Rezultati merenja ekshalacije radona iz podnih keramičkih pločica F2 u Laboratoriji za fiziku na Akademiji strukovnih studija Šabac, fitovani za različite vremenske intervale merenja.

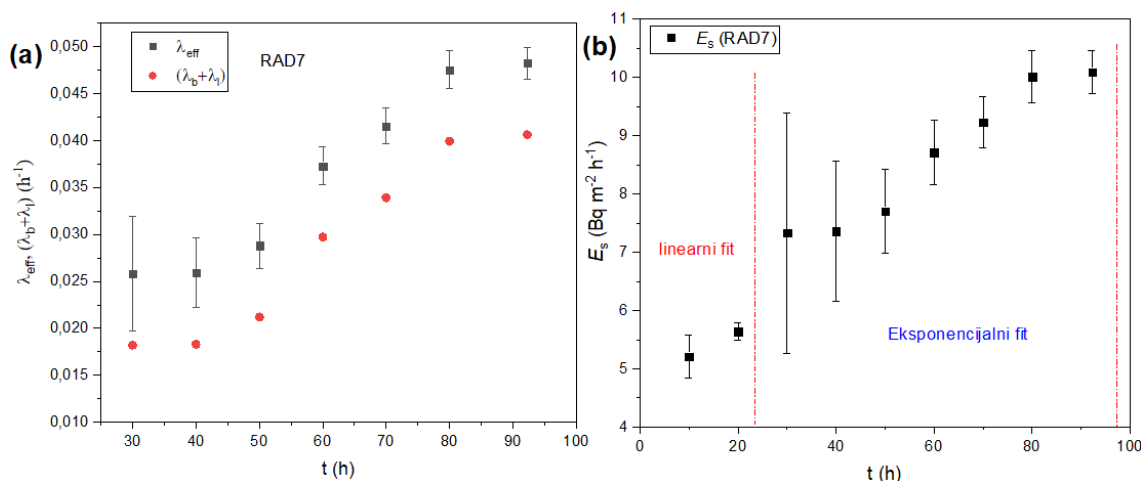
Tabela 8.43 Varijacije početne koncentracije radona (C_0) tokom merenja, ravnotežne koncentracije aktivnosti radona (C_{eq}), efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}), doprinosi curenja i povratne difuzije ($\lambda_b + \lambda_l$) i površinske ekshalacije (E_s) u različitim vremenskim intervalima merenja sa Slike 8.39 za linearni fit krive tokm prvih 20 h merenja i eksponencijalni fit krive ekshalacije za ostatak vremena merenja, za uzorak keramičkih pločica F2.

Kriva broj	Vremenski interval (h)	C_0 ($Bq\ m^{-3}$)	k ($Bq\ m^{-3}\ h^{-1}$)	C_{eq} ($Bq\ m^{-3}$)	λ_{eff} (h^{-1}) $\times 10^{-3}$	$\lambda_b + \lambda_l$ (h^{-1}) $\times 10^{-3}$	E_s ($Bq\ m^{-2}\ h^{-1}$)
1	0-10	193±12	31,2±2,2	-	-	-	5,21±0,37
2	0-20	186±10	33,8±0,9	-	-	-	5,64±0,15
3	0-30	173±14	-	1704±257	25,8±6,1	18,2	7,33±2,06
4	0-40	172±13	-	1704±139	25,9±3,7	18,3	7,36±1,21
5	0-50	166±12	-	1603±67	28,8±2,4	21,2	7,70±0,72
6	0-60	148±13	-	1400±31	37,3±2,2	29,7	8,71±0,55
7	0-70	137±13	-	1333±20	41,5±1,9	33,9	9,23±0,44
8	0-80	122±14	-	1263±14	47,5±2,0	39,9	10,01±0,44
9	0-92,25	120±14	-	1256±11	48,2±1,7	40,6	10,09±0,37

Da bi se uočile promene u brzini ekshalacije radona tokom vremena fitovanje eksperimentalnih rezultata je izvršeno prema 2 fita za 9 vremenskih opsega, Slika 8.39. Parametri nakon linearnog (0-20 h) i eksponencijalnog fita za ostale vremenske opsege (C_0 , k , C_{eq} , λ_{eff}) dati su Tabeli 8.43. Vrednosti *intersept*-a kod linerano fitovanih funkcija (0-20 h) odgovaraju početnoj koncentraciji aktivnosti odnosno koncentraciji aktivnosti u prostoriji (C_0), Slika 8.39, Tabela 8.43.

Iz Tabele 8.43 se može videti da se sa povećanjem vremena akumulacije radona u mernoj komori smanjuje početna koncentracija radona (C_0) kao i ravnotežna koncentracija (C_{eq}), što je posledica porasta efektivne konstante raspada (λ_{eff}). Glavni uticaj na porast efektivne konstante raspada imao je efekat curenja same merne komore, dok je efekat povratne difuzije bio slabije izražen imajući u vidu da je zapremina samih keramičkih pločica iz kojih se meri ekshalacija 10 puta manja od zapremine merne komore (Samuelsson, 1990; Tuccimei et al., 2006). Vrednosti integralnih doprinosa curenja i povratne difuzije rastu u intervalu od $(18,2-40,6) \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$, što ukazuje da je curenje merne komore bilo značajno izraženo.

Određene vrednosti brzine površinske ekshalacije radona (E_s) prema relaciji (3.35) date su u Tabeli 8.43. Uočava se porast brzine površinske ekshalacije tokom vremena, gde glavni razlog leži u povećanju efekta curenja, što je zabeleženo i merenjem ekshalacije radona kod uzoraka fosfogipsa (poglavlje 11), tako da efekti curenja i povratne difuzije mogu uticati na vrednosti brzine ekshalacije radona, na isti način. Na Slici 8.40 date su zavisnosti efektivne konstante raspada i njenih doprinosa povratne difuzije i curenja ($\lambda_b + \lambda_l$), te se može uočiti njihovo povećanje tokom vremena gde je nakon 80 h postignuta saturacija, isto je uočeno i pri promeni brzine površinske ekshalacije radona. Poređenjem vrednosti brzine ekshalacije u početnom trenutku merenja nakon 10 h i krajnjem, oko 95 h uočava se da je ekshalacija radona veća oko 2 puta, a glavni uzrok treba tražiti u povećanju efekta curenja merne komore. Iz ovoga se može zaključiti da zaptivenost merne komore u znatnoj meri utiče da dobijene rezultate te je potrebno pronaći najbolji način zaptivanja merne komore u kontaktu sa samim materijalom (keramičkim pločicama) jer očito način na koji je sprovedeno merenje ekshalacije radona nije dao zadovoljavajuće rezultate ako se ekshalacija radona prati do uspostavljanja radioaktivne ravnoteže. Dakle, zaptivanje merne komore izolir trakom nije uspela u najvećoj meri da spreči curenje radona iz komore, te se u budućim istraživanjima i optimizaciji merne tehnike mora poraditi na minimiziranju uočenog efekta čime bi se osigurale tačnije vrednosti ako se radi o dužim vremenima merenja ekshalacije radona.



Slika 8.40 (a) Zavisnosti efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}) (i doprinosa povratne difuzije i curenja ($\lambda_b + \lambda_l$)) i (b) brzine površinske ekshalacije radona (E_s) od vremena merenja (t), određene aktivnim uređajem RAD7 za uzorke keramičkih pločica F2.

Nakon što su izvršena merenja ekshalacije radona iz poda i zida obloženih keramičkim pločicama u navedenim prostorijama na Akademiji strukovnih studija u Šapcu, izvršena su merenja unutrašnjih koncentracija radona pasivnom mernom tehnikom pomoću ugljenih kanistera. Merene su koncentracije aktivnosti radona u osam prostorija. Potrebno je naglasiti da izabrane

prostorije imaju relativno slab režim provetranja, ili su imale samo tokom eksponiranja ugljenih kanistera. Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti radona prikazane su u Tabeli 8.44. Prosečno vreme eksponiranja kanistera sa aktivnim ugljem bilo je oko 3 dana. Merenja su sprovedena u prizemnim i prostorijama na 1. spratu u dve različite zgrade. Potrebno je naglasiti da su obe zgrade stare gradnje stim što je unutrašnjost renovirana poslednjih godina. Ostale karakteristike prostorija u kojima je vršeno merenje unutrašnje koncentracije radona date su u Tabeli 8.44. Dobijene vrednosti se kreću u rasponu od $35 \pm 3 \text{ Bq m}^{-3}$ u kancelariji direktora na 1. spratu do $608 \pm 13 \text{ Bq kg}^{-1}$ koliko je izmereno u Laboratoriji za hemiju. Ako se uporede vrednosti brzina ekshalacija radona iz poda za uzorke F2 i F7 u Klubu studenata i Laboratoriji za fiziku, može se uočiti da je vrednost ekshalacije radona iz poda u Klubu studenata veća nekoliko puta u odnosu na onu izmerenu u Laboratoriji za fiziku, Tabela 8.43. Ovo je rezultiralo i skoro 2 puta većom unutrašnjom koncentracijom radona u Klubu studenata ($411 \pm 22 \text{ Bq m}^{-3}$), Tabela 8.44. Ovako visok rezultat se dovodi u vezu sa postojanjem očitih mesta za ulazak radona u prostoriju (pod prostorije Kluba studenata je obložen istim keramičkim pločicama kao i u magacinu pored, ali na podu postoje rupe koje predstavljaju izvode za struju i vodu kroz koje radonski gas može lako da uđe u prostoriju).

Tabela 8.44 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti radona (C_{Rn}) u 8 prostorija na Akademiji strukovnih studija Šabac i procenjene vrednosti godišnjih efektivnih doza koje potiču od izloženosti radonu za 7000h godišnje sa datim glavnim karakteristikama za svaku prostoriju.

Prostorija u zgradi i mesto merenja u prostoriji	Sprat	Pod	Površina (m^2)	C_{Rn} (Bq m^{-3})	D_{Rn} (mSv y^{-1})
Magacin – polica, zgrada 1	Prizemlje	Beton i keramičke pločice F7	6,00	90 ± 5	$1,69 \pm 0,09$
Magacin – pod, zgrada 1	Prizemlje	Beton i keramičke pločice F7	6,00	109 ± 6	$2,04 \pm 0,11$
Klub studenata – polica, zgrada 1	Prizemlje	Beton i keramičke pločice F7	69,71	411 ± 22	$7,71 \pm 0,41$
Laboratorija za fiziku – klupa, zgrada 2	Prizemlje	Beton i keramičke pločice F2	68,37	228 ± 9	$4,28 \pm 0,17$
Laboratorija za hemiju-polica, zgrada 2	Prizemlje	Beton i keramičke pločice F2	75,00	608 ± 13	$11,41 \pm 0,24$
Nastavnička kancelarija 1 – sto, zgrada 1	Prizemlje	Beton i laminat	24,74	87 ± 5	$1,63 \pm 0,09$
Nastavnička kancelarija 2, sto, zgrada 1	Prizemlje	Beton i laminat	21,75	97 ± 5	$1,82 \pm 0,09$
Biblioteka, polica, zgrada 1	Prvi sprat	Beton i laminat	26,24	81 ± 5	$1,52 \pm 0,09$
Kancelarija direktora, sto, zgrada 1	Prvi sprat	Beton i laminat	17,25	35 ± 3	$0,66 \pm 0,06$

Na prvom spratu Akademije Šabac su izmerene gotovo minimalne vrednosti koncentracija radona, ispod 100 Bq m^{-3} (WHO, 2009), dok je u Zgradi 2 u Laboratoriji za hemiju izmerena vrednosti od $608 \pm 13 \text{ Bq m}^{-3}$, što ukazuje na visoku izloženost kako zaposlenih tako i studenata ako se uzme u obzir da je prema (WHO, 2009) gornji preporučeni limit koncentracije radona 300 Bq m^{-3} . Prosečna vrednost koncentracija aktivnosti radona za svih 8 prostorija iznosi $218 \pm 193 \text{ Bq m}^{-3}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija), što je duplo veća vrednost od one prijavljene u novijem istraživanju radona u Mačvanskom okrugu u Srbiji (Eremić Savković et al., 2020).

U Tabeli 8.44 date su procenjene vrednosti godišnjih efektivnih doza od izlaganja radonu u analiziranim prostorijama na Akademiji Šabac. Dobijene vrednosti se kreću u intervalu od $0,66 \pm 0,06 \text{ mSv y}^{-1}$ za kancelariju direktora na prvom spratu do $11,41 \pm 0,24 \text{ mSv y}^{-1}$ u Laboratoriji za hemiju. Godišnja efektivna doza procenjena za izloženost radonu u Laboratoriji za hemiju je oko 4,8 puta veća od prosečne vrednosti za izloženost od prirodnih izvora od $2,4 \text{ mSv y}^{-1}$

(UNSCEAR, 2000). Procenjene vrednosti godišnjih efektivnih doza za Klub sudenata i Laboratoriju za fiziku takođe premašuju ovu vrednost, Tabela 8.44.

S obzirom na dobijene rezultate merenja ekshalacije radona iz poda za uzorke F2 i F7 i poređenjem rezultata ekshalacije iz samih uzoraka keramičkih pločica čije su strukturne karakteristike slične, budući da se radi o istom proizvođaču, može se reći da je doprinos ekshalacije radona iz samih keramičkih pločica ukupnoj koncentraciji radona u prostoriji manji od 1%. Iz ovoga se može zaključiti da podne keramičke pločice ne predstavljaju efikasnu barijeru za zaustavljanje dotoka radona iz zemlje, jer je u pojedinim prostorijama u kojima je pod obložen ovim keramičkim pločicama metodom ugljenih kanistera izmerena koncentracija radona iznad 300 Bq m^{-3} (WHO, 2009). Prema relaciji 6.10 pri najgorem scenariju izloženosti od 7000 h godišnje ovo može rezultirati izloženosti godišnjoj efektivnoj dozi od preko 11 mSv y^{-1} , Tabela 8.44.

Dodatni problem u traženju mesta ulaska radona u prostoriju u ovom slučaju stvaraju mesta spojeva pločica “fuge” koja su širine oko 0,5 cm sačinjena od građevinskog lepka, koji je jako porozan i trošan materijal i koji obično stvara sitne pukotine kroz koje radon u ovakvim prostorijama ulazi u unutrašnjost. S obzirom da su analizirane keramičke pločice dimenzija $33 \times 33 \text{ cm}$, a merna komora $60 \times 40 \text{ cm}$, površinom merne komore su obuhvaćeni i spojevi (fuge) keramičkih pločica koje se mogu smatrati dodatnim putem dotoka radonskog gasa u prostoriju osim transporta radona procesom difuzije, kao dominantnim procesom, kroz same keramičke pločice. Ako se uzme u obzir da se ispod keramičkih pločica u svim prostorijama nalazi sloj betona između 10 i 15 cm kao i to da je dužina difuzije radona za beton obično veća od 25 cm (Kumar and Chauhan, 2014; Porstendörfer, 1994), sa efektivnom poroznošću oko 20%, poglavlje 12, može se zaključiti da veliki deo radona iz tla ispod uspe difundovati u prostoriju bilo kroz fuge ili kroz same keramičke pločice debljine oko 9 mm.

9 *Sirovine i građevinski materijali opšte upotrebe*

U ovom poglavlju razmatrane su radiološke karakteristike standardnih građevinskih materijala (betona, maltera, opeke (cigle i blokova), crepa i siporeks blokova) kao i sirovina za njihovu proizvodnju (cementa, peska, šljunka, građevinskog lepka i pepela). Sprovedena je procena radijacionog rizika za najgori mogući scenario kao i procena ekshalacije radona iz analiziranih uzoraka građevinskih materijala na osnovu ranije procenjenih koeficijenata emanacije radona. Izvršena su dozimetrijska merenja Radiagem 2000 monitorom zračenja u jednoj tipičnoj kući u Šapcu, Srbija, izgrađenoj od tipičnih građevinskih materijala. Izmerene vrednosti doza su upoređivane sa teorijski procenjenim vrednostima. U jednoj od prostorija analizirane porodične kuće izvršeno je merenje unutrašnje koncentracije radona metodom ugljenih kanistera, gde je izvršena dodatna procena radijacionog rizika od izloženosti alfa zračenju.

Prema dostupnim podacima nivoa radioaktivnosti u Srbiji i svetu, građevinski materijali opšte upotrebe obično ne poseduju značajan nivo radioaktivnosti od prosečnih vrednosti (UNSCEAR, 1993), dok recimo pepeo od sagorevanja uglja koji se koristi kao sirovina u proizvodnji cementa može sadržati nivo radioaktivnosti iznad preporučenih vrednosti. Leteći pepeo kao nus proizvod termalnih postrojenja (termoelektrana i individualnih ložišta uglja) koncentriše radionuklide poput ^{235}U , ^{238}U , ^{226}Ra i ^{232}Th , ^{210}Pb , ^{210}Po i ^{40}K sa faktorom 20 do 25 u poređenju sa nivoima izvornog treseta (EC, 1999). U svetu se godišnje proizvede oko 280 miliona tona ugljenog pepela, od čega se 40 miliona tona koristi u proizvodnji cigle, cementa, asfaltnih mešavina i dr. (UNSCEAR, 2006). Iz takvih izvora pojedinačne doze izloženosti zračenju za javnost mogu biti oko 100 mSv

godišnje. Cement se uspešno zamenjuje pepelom u betonu u opsegu od 10% do 80%. Kako je pepeo opasan otpad koji sadrži otrovne metale i radionuklide, podstiče se njegova upotreba kao građevinskog materijala. Tako je pepeo postao sirovinski građevinski materijal sa nultom cenom za koji bi inače bilo potrebno posebno upravljanje otpadom zbog svojih fizičkih i hemijskih karakteristika (Pacheco-Torgal et al., 2012).

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za 14 uzoraka tipičnih sirovinskih materijala (2 uzorka peska, 2 uzorka šljunka, 2 uzorka cementa, 2 uzorka građevinskog lepka i 6 uzoraka pepela) koje se koriste u proizvodnji građevinskih materijala u Srbiji, dati su u Tabeli 9.1. Izmerene vrednosti ova tri radionuklida kod uzoraka peska, šljunka, cementa i građevinskog lepka su ispod prosečnih vrednosti za građevinske materijale u svetu od 50 Bq kg^{-1} , 50 Bq kg^{-1} i 500 Bq kg^{-1} za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , respektivno (UNSCEAR, 1993), Tabela 9.1. Prosečne vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra i ^{232}Th su oko 3 i 2 puta veće od prosečnih kod uzoraka pepela, dok je vrednost koncentracije aktivnosti ^{40}K daleko ispod prosečne vrednosti. Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za iste građevinske materijale iz drugih istraživanja u svetu date su u Tabeli 9.4. Na osnovu rezultata prikazanih u ovoj studiji i rezultata u Tabeli 9.4, može se zaključiti da su rezultati uporedivi sa onima iz ranijih istraživanja.

Vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti su ispod preporučene vrednosti od 370 Bq kg^{-1} (NEA-OECD, 1979) za sve sirovinske materijale, Tabela 9.1. Vrednosti gama indeksa su ispod preporučene vrednosti od $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000) kod svih sirovinskih uzoraka osim kod uzoraka pepela gde je prosečna vrednost $1,12 \pm 0,04$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Procenjene vrednosti alfa indeksa su ispod preporučene vrednosti $I_\alpha \leq 1$ (Joel et al., 2018) za sve uzorke sirovinskih materijala, Tabela 9.1. Vrednosti unutrašnjeg hazard indeksa su ispod preporučene vrednosti od $H_{in} \leq 1$ (Narloch et al., 2019) kod svih uzoraka sirovinskih materijala osim kod uzoraka pepela, gde je dobijena prosečna vrednost $1,29 \pm 0,04$. Vrednosti spoljašnjeg hazard indeksa su ispod preporučene vrednosti od $H_{ex} \leq 1$ (Alali et al., 2018) kod svih uzoraka sirovinskih materijala. Dobijene prosečne vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja su ispod prosečne vrednosti za građevinske materijale u svetu od 55 nGy h^{-1} (UNSCEAR, 2008) kod svih uzoraka osim kod uzoraka cementa i pepela gde dobijene vrednosti iznose $62,4 \text{ nGy h}^{-1}$ i $277 \pm 9 \text{ nGy h}^{-1}$, respektivno. Vrednosti godišnjih efektivnih doza gama zračenja kod svih analiziranih uzoraka sirovinskih materijala su daleko ispod preporučenih 20 mSv y^{-1} za profesionalno izložena lica (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 86/11 i 50/18, 2018), Tabela 9.1.

Raspon izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , kao i njihov prosek za 40 tipičnih građevinskih materijala proizvedenih i korišćenih u Srbiji (10 uzoraka betona, 2 uzorka teraco pločica, 7 uzoraka maltera, 12 uzoraka opeke, 6 uzoraka siporeksa i 3 uzorka crepa), prikazani su u Tabelama 9.2 i 9.3. Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za slične građevinske materijale analizirane u drugim istraživanjima u svetu date su u Tabeli 9.5.

Prosečna vrednost koncentracije aktivnosti ^{226}Ra kod većine uzoraka je ispod prosečne vrednosti od 50 Bq kg^{-1} za građevinske materijale u svetu (UNSCEAR, 1993), osim uzoraka siporeksa gde prosečna vrednost iznosi $82 \pm 12 \text{ Bq kg}^{-1}$. Prosečne vrednosti koncentracija aktivnosti ^{232}Th su iznad prosečne vrednosti u svetu od 50 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 1993) samo kod uzoraka siporeksa i crepa, Tabele 9.2 i 9.3. Prosečne vrednosti koncentracija aktivnosti ^{40}K su iznad proseka od 500 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 1993) samo kod uzoraka opeke, siporeksa i crepa. Prosečne vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za svih 40 analiziranih uzoraka građevinskih materijala iznose $39 \pm 4 \text{ Bq kg}^{-1}$, $39 \pm 3 \text{ Bq kg}^{-1}$ i $478 \pm 51 \text{ Bq kg}^{-1}$, respektivno, što je ispod svetskog proseka za građevinske materijale. Dobijeni rezultati koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za analizirane građevinske materijale su uporedivi sa rezultatima iz prethodnih studija građevinskih materijala, dati u Tabeli 9.5.

Tabela 9.1 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , vrednosti hazard indeksa (Ra_{eq} , I_γ , I_α , H_{in} , H_{ex}), jačina apsorbovanih doza gama zračenja (D) i godišnjih efektivnih doza (E) za 2 uzorka peska, 2 uzorka šljunka, 2 uzorka cementa, 2 uzorka građevinskog lepka i 6 uzoraka pepela od sagorevanja uglja, kao sirovinskih materijala za proizvodnju tipičnih građevinskih materijala u Srbiji.

Broj uzorka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			Ra_{eq}	I_γ	I_α	H_{in}	H_{ex}	D (nGy h^{-1})	E ($\mu\text{Sv y}^{-1}$)
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K							
Pesak										
1	10,8±0,3	11,7±0,4	208±10	43,5±1,3	0,164±0,004	0,054±0,002	0,147±0,003	0,118±0,003	24,49±0,96	30,0±1,2
2	22,1±1,2	18,1±1,1	220±17	65±3	0,238±0,009	0,111±0,006	0,235±0,009	0,175±0,006	42,02±2,1	52±3
Prosek	16,5	14,9	214±4	54,2	0,201	0,08	0,191	0,146	33,26	40,8
Šljunak										
1	8,7±0,2	10,2±0,4	184±8	37,4±1,1	0,141±0,003	0,044±0,001	0,125±0,003	0,101±0,002	34,1±0,8	41,9±1,0
2	7,9±0,4	8,2±0,3	144±7	30,7±1,0	0,115±0,003	0,040±0,002	0,104±0,003	0,083±0,002	27,9±0,8	34,3±0,9
Prosek	8,3	9,2	164	34,1	0,128	0,042	0,114	0,092	31,0	38,1
Cement										
1	35,1±0,8	12,6±0,8	181±9	67,0±1,7	0,240±0,006	0,176±0,004	0,276±0,006	0,181±0,004	60,8±1,4	74,6±1,7
2	38,5±0,6	12,0±0,5	190±10	70,3±1,4	0,252±0,005	0,193±0,003	0,294±0,004	0,190±0,003	64,0±1,1	78,5±1,4
Prosek	36,8	12,3	186	68,6	0,25	0,184	0,285	0,186	62,4	76,5
Građevinski lepak										
1	21,8±0,4	11,4±0,6	223±10	55,2±1,5	0,204±0,005	0,109±0,002	0,208±0,004	0,149±0,003	50,7±1,1	62,1±1,4
2	20,1±0,3	9,1±0,5	87±5	39,8±1,0	0,142±0,003	0,101±0,002	0,162±0,003	0,108±0,002	35,6±0,7	43,6±0,9
Prosek	21	10,3	155	47,5	0,173	0,102	0,19	0,128	43,1	52,9
Pepeo										
1	151±3	99±3	374±18	321±6	1,12±0,02	0,755±0,015	1,28±0,02	0,868±0,015	278±5	341±22
2	133±2	89±3	660±30	311±6	1,11±0,02	0,67±0,01	1,20±0,02	0,840±0,014	274±4	336±22
3	166±2	90±7	185±14	309±10	1,07±0,04	0,83±0,01	1,28±0,03	0,83±0,03	267±8	327±39
4	158±5	114±5	118±10	330±9	1,14±0,03	0,79±0,03	1,32±0,03	0,89±0,02	280±7	344±35
5	140±3	93±6	227±14	290±9	1,01±0,03	0,700±0,015	1,16±0,03	0,78±0,02	249±7	306±35
6	176±7	126±8	168±13	369±13	1,27±0,05	0,88±0,04	1,47±0,05	1,00±0,04	314±11	385±54
Opseg	133-176	89-126	118-660	290-369	1,01-1,27	0,67-0,88	1,16-1,47	0,78-1,00	249-314	306-385
Prosek±SD	154±7	103±6	289±83	322±11	1,12±0,04	0,77±0,03	1,29±0,04	0,87±0,03	277±9	340±11

Tabela 9.2 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , vrednosti hazard indeksa (Ra_{eq} , I_γ , I_α , H_{in} , H_{ex}), jačina apsorbovanih doza gama zračenja (D) i godišnjih efektivnih doza (E) za 10 uzoraka betona, 2 uzorka teraco pločica i 7 uzoraka maltera proizvedenih i korišćenih u Srbiji.

Broj uzorka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			Ra_{eq}	I_γ	I_α	H_{in}	H_{ex}	D (nGy h^{-1})	E ($\mu\text{Sv y}^{-1}$)
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K							
Beton										
1	18,2±0,7	18,5±0,8	208±18	61±2	0,223±0,008	0,091±0,004	0,213±0,006	0,164±0,005	54±2	264±9
2	11,2±0,5	20±2	410±30	71±4	0,27±0,014	0,056±0,003	0,223±0,010	0,193±0,010	65±3	319±16
3	7,2±0,6	28±3	250±20	66±5	0,25±0,017	0,036±0,003	0,199±0,013	0,180±0,012	57±4	282±18
4	8,5±0,5	41±4	190±10	82±6	0,30±0,02	0,043±0,003	0,244±0,016	0,221±0,016	68±4	334±22
5	13,5±0,8	12,5±0,6	160±15	44±2	0,161±0,006	0,068±0,004	0,154±0,006	0,118±0,004	39±2	191±8
6	22,5±2,6	11,2±0,9	320±16	63±3	0,238±0,011	0,113±0,013	0,231±0,015	0,171±0,009	59±3	288±14
7	18,6±1,2	15,3±0,8	290±25	63±3	0,24±0,01	0,093±0,006	0,220±0,009	0,170±0,007	57±2	280±12
8	28,5±0,9	23,2±0,9	185±15	76±2	0,273±0,007	0,143±0,005	0,282±0,007	0,205±0,005	67±2	326±9
9	29,8±1,5	17,6±0,8	210±11	71±2	0,257±0,007	0,149±0,008	0,273±0,009	0,192±0,006	64±2	312±9
10	16,2±0,6	26±2	310±22	77±4	0,287±0,013	0,081±0,003	0,252±0,010	0,209±0,009	68±3	335±14
Opseg	7,2-29,8	11,2-41,0	160-410	44-82	0,16-0,30	0,036-0,149	0,154-0,285	0,118-0,221	39-68	191-335
Prosek±SD	17,4±2,4	21,3±2,7	253±24	67±3	0,249±0,012	0,087±0,012	0,229±0,011	0,182±0,009	60±3	293±13
Teraco pločice										
1	21±2	5,3±0,5	56±6	33±2	0,115±0,007	0,105±0,010	0,146±0,011	0,09±0,01	30±2	145±10
2	39±4	31±3	453±44	118±8	0,44±0,03	0,195±0,020	0,42±0,03	0,32±0,02	106±6	521±30
Prosek	6,4	18,2	255	76	0,28	0,15	0,29	0,20	68	333
Malter										
1	34±2	15,6±	219±18	73±3	0,264±0,009	0,170±0,010	0,290±0,012	0,198±0,007	66±2	324±12
2	18±2	48±3	180±10	100±5	0,360±0,017	0,090±0,010	0,320±0,016	0,271±0,013	84±4	411±19
3	30±2	12±2	165±12	60±4	0,215±0,013	0,150±0,010	0,243±0,014	0,162±0,010	54±3	265±15
4	7±2	33±3	202±10	70±4	0,256±0,015	0,036±0,003	0,208±0,012	0,189±0,012	59±3	289±17
5	22±3	17±2	318±15	71±4	0,264±0,015	0,110±0,015	0,251±0,018	0,191±0,012	64±4	316±18
6	10,1±0,8	28±33	275±11	71±5	0,265±0,016	0,051±0,004	0,220±0,013	0,193±0,012	62±3	305±17
7	27±3	22±2	169±12	71±4	0,256±0,015	0,135±0,015	0,266±0,018	0,193±0,011	63±4	307±18
Opseg	7,1-34	12-48	165-318	60-100	0,21-0,36	0,04-0,17	0,21-0,32	0,16-0,27	54-84	265-411
Prosek±SD	21±4	25±4	218±20	74±4	0,27±0,02	0,11±0,02	0,256±0,014	0,199±0,012	65±3	317±16

Tabela 9.3 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , vrednosti hazard indeksa (Ra_{eq} , I_γ , I_α , H_{in} , H_{ex}), jačina apsorbovanih doza gama zračenja (D) i godišnjih efektivnih doza (E) za 12 uzoraka opeke, 6 uzoraka siporeks blokova i 3 uzorka crepa koji su proizvedeni i koriste se u Srbiji.

Broj uzorka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			Ra_{eq}	I_γ	I_α	H_{in}	H_{ex}	D (nGy h^{-1})	E ($\mu\text{Sv y}^{-1}$)
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K							
Opeka										
1	40,9±0,6	35,1±1,4	548±25	133±3	0,495±0,011	0,205±0,003	0,471±0,008	0,360±0,008	120±3	588±13
2	37,8±0,7	41,4±1,8	597±26	143±4	0,532±0,013	0,189±0,004	0,50±0,01	0,386±0,009	128±3	628±14
3	54,8±0,8	52,5±1,8	639±29	179±4	0,658±0,013	0,274±0,004	0,632±0,010	0,484±0,009	159±3	781±15
4	37,9±0,6	40,4±1,4	584±26	141±4	0,523±0,011	0,190±0,003	0,482±0,008	0,380±0,008	126±3	618±13
5	51,7±0,5	54,1±1,5	640±28	178±4	0,656±0,12	0,259±0,03	0,621±0,009	0,482±0,008	158±3	776±14
6	46,0±0,8	51,1±1,6	760±30	177±4	0,662±0,013	0,230±0,004	0,604±0,01	0,480±0,009	159±3	781±15
7	35,8±0,5	46,0±1,3	597±25	147±3	0,548±0,011	0,179±0,003	0,495±0,008	0,398±0,007	131±3	643±12
8	46,5±0,6	56,4±1,7	790±40	188±54	0,700±0,016	0,233±0,003	0,633±0,011	0,508±0,011	168±4	823±18
9	44±1	53±2	607±26	166±4	0,612±0,014	0,221±0,005	0,567±0,011	0,448±0,010	147±3	720±16
10	48,3±0,5	49,0±1,8	620±27	166±4	0,613±0,013	0,242±0,003	0,579±0,009	0,449±0,009	148±3	725±15
11	52,3±0,6	57,6±1,6	740±30	192±4	0,709±0,013	0,262±0,003	0,659±0,009	0,518±0,009	171±3	836±15
12	48,2±0,9	55±1,5	630±27	175±4	0,646±0,012	0,241±0,005	0,604±0,009	0,474±0,008	155±3	761±14
Opseg	35,8-54,8	35,1-57,6	548-790	133-192	0,49-0,71	0,18-0,27	0,47-0,66	0,36-0,52	120-171	588-836
Prosek±SD	45±2	49±2	646±21	165±5	0,61±0,02	0,227±0,009	0,570±0,019	0,447±0,015	148±5	723±23
Siporeks										
1	103±2	48±3	1880±40	316±6	1,21±0,02	0,52±0,01	1,13±0,02	0,85±0,02	298±5	1462±24
2	75±6	44±4	752±50	196±10	0,72±0,03	0,38±0,03	0,73±0,04	0,53±0,02	178±8	871±40
3	135±12	22±2	625±52	229±14	0,82±0,05	0,68±0,06	0,98±0,07	0,62±0,04	209±12	1027±59
4	59±5	69±4	412±25	189±8	0,68±0,03	0,30±0,03	0,67±0,03	0,51±0,02	163±7	800±33
5	65±5	102±10	712±45	265±16	0,96±0,06	0,33±0,03	0,89±0,05	0,72±0,04	229±12	1123±61
6	53±2	50±2	313±8	149±4	0,531±0,012	0,27±0,01	0,54±0,01	0,40±0,01	129±3	632±14
Opseg	53-135	32-108	313-1880	149-316	0,53-1,21	0,27-0,68	0,54-1,13	0,40-0,85	129-298	632-1462
Prosek±SD	82±12	58±9	782±211	224±22	0,82±0,09	0,41±0,06	0,83±0,08	0,61±0,06	201±22	986±108
Crep										
1	48±3	62±4	752±56	194±9	0,72±0,03	0,240±0,015	0,66±0,03	0,53±0,02	21,7±0,9	106±4
2	56±4	75±5	652±29	213±9	0,78±0,03	0,28±0,02	0,73±0,03	0,58±0,02	23,5±0,9	115±4
3	48±3	54±3	710±30	180±6	0,67±0,02	0,240±0,015	0,62±0,02	0,49±0,02	20,1±0,6	99±3
Opseg	48-56	54-75	652-752	180-213	0,67-0,78	0,24-0,28	0,62-0,73	0,49-0,58	20,1-23,5	99-115
Prosek±SD	51±2	64±5	705±24	196±8	0,72±0,03	0,253±0,011	0,67±0,03	0,53±0,02	21,8±0,8	107±4

Tabela 9.4 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za tipične sirovinske materijale koji se koriste u građevinskoj industriji iz drugih istraživanja.

Uzorak	Broj uzoraka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)			Reference
		²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	
Cement	22	8-89 (37±22)	<3-131 (15±29)	<10-182 (43±64)	Pantelić et al., 2014a
Cement	-	41,27±0,44	19,60±0,19	174,5±2,4	Narloch et al., 2019
Cement	13	45-51 (48±5,8)	20-26 (22±3,9)	118-126 (220±8,9)	Medhat, 2009
Cement	37	17,8-81,6 (39,9±18,0)	7,8-48,8 (26,4±9,8)	169,1-475,7 (316,5±88,1)	Turhan et al., 2008
Cement	5	19-34 (24±6)	13-23 (18±4)	215-282 (244±29)	Rahman et al., 2008
Pepeo	-	178±31	55±19	387±48	Kardos et al., 2015
Pesak	9	<5-97 (26±41)	<3-90 (30±35)	<10-1100 (210±380)	Pantelić et al., 2014a
Pesak	-	11,4±0,2	12,2±0,1	620,2±4,5	Narloch et al., 2019
Pesak	15	30-44 (33±3,7)	24-32 (27±4,2)	355-398 (385±8,9)	Medhat, 2009
Pesak	19	4,8-56,0 (22,9±12,9)	2,2-67,0 (26,4±16,2)	81,6-879 (527,2±129,2)	Turhan et al., 2008
Pesak	10	2-31 (19±9)	6-51 (30±15)	424-1745 (769±461)	Rahman et al., 2008
Pesak	12	11,96-25,93 (15,97±3,05)	19,83-43,18 (27,98±4,89)	415,55-578,68 (498,20±15,91)	Qureshi et al., 2013
Pesak	-	14±1	31±1	586±13	Ngachin et al., 207
Šljunak	18	10-15	3-8 (5±1,8)	145-162 (159±3,8)	Medhat, 2009
Šljunak	7	5,7-21,8	0,27-30,0	4,3-260	Papastefanou et al., 2005
Šljunak	-	9,0-41,2 (24,8±0,7)	5,7-14,7 (9,9±0,6)	19,2-135,6 (51,3±3,8)	Tufail et al., 1992
Šljunak	-	24±3	139±13	1161±108	Ngachin et al., 207

– opseg, (srednja vrednost ± standardna devijacija).

Vrednosti radijumskih ekvivalentnih indeksa aktivnosti (Ra_{eq}), gama indeksa (I_γ), alfa indeksa (I_α), unutrašnjih i spoljašnjih hazard indeksa (H_{in} , H_{ex}), jačina apsorbovanih doza gama zračenja (D) i godišnjih efektivnih doza (E) za 40 građevinskih materijala date su u Tabelama 9.2 i 9.3.

Vrednosti radijumskog ekvivalentnog indeksa aktivnosti su ispod preporučene vrednosti od 370 Bq kg⁻¹ (NEA-OECD, 1979) kod svih 40 analiziranih uzoraka građevinskih materijala. Vrednosti gama indeksa su ispod preporučene vrednosti od $I_\gamma \leq 1$ (UNSCEAR, 2000) kod svih uzoraka, osim kod jednog uzorka siporeksa, Tabela 9.3. Vrednosti alfa indeksa i spoljašnjeg hazard indeksa kod svih uzoraka su ispod preporučene vrednosti od 1 (Joel et al., 2018; Alali et al., 2018). Vrednosti unutrašnjeg hazard indeksa su ispod preporučene vrednosti od $H_{in} \leq 1$ (Narloch et al., 2019) osim kod jednog uzorka siporeksa, Tabela 9.3.

Vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja procenjenih na osnovu relacija (6.4a i 6.4b) za pojedinačne građevinske materijale kod većine uzoraka prelaze prosečnu vrednost u svetu od 55 nGy h⁻¹ (UNSCEAR, 2008) i prosečna vrednost za svih 40 analiziranih uzoraka iznosi 106±10 nGy h⁻¹ (srednja vrednost ± standardna devijacija). Iz dobijenih rezultata može se primetiti da je procenjena jačina apsorbovane doze gama zračenja veća, npr. za siporeks i opeku nego za uzorke maltera. Objašnjenje je u sledećem: siporeks i opeka su masivni materijali, obično debljine oko 25 cm, dok je malter obično debljine do 3 cm, gustine ova tri materijala obično ne prelaze 1600 kg m⁻³, pa se za

procenu brzine apsorbovane gama doze dobijaju različite vrednosti usled korišćenja drugih relacija za procenu (relacije 6.4a i 6.4b). Detaljnije razmatranje procene apsorbovane doze gama zračenja za uzorke opeke biće razmatrano u poglavlju 10, korišćenjem Monte Karlo simulacija.

Tabela 9.5 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za tipične građevinske materijale date u drugim istraživanjima.

Uzorak	Broj uzoraka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)			Reference
		²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	
Crep	-	13-92 (34±14)	9-75 (33±12)	114-1060 (462±175)	Damla et al., 2011
Crep	2	23-24	30-36	540-590	Righi and Bruzzi, 2006
Crep	5	33-46	45-61	662-788	Krstić et al., 2007
Opeka	3	7,48±0,18	1,23±0,26	6±0,44	Sharaf and Hamideen, 2013
Opeka	26	13,9-82,4 (35,4±3,3)	14,5-63,6 (37,5±2,4)	241,9-1092,2 (593,7±42,7)	Turhan et al., 2018
Opeka	7	20-110	25-90	160-680	Rughi and Bruzzi, 2006
Opeka	30	25-37 (30±5)	17-26 (21±2)	275-295 (289±11)	Medhat, 2009
Opeka	11	24,7-49,0 (31,2±7,6)	26,6-51,2 (37,2±7,8)	587,3-1092,0 (775,8±149,6)	Turhan et al., 2008
Opeka	10	9-50 (30±15)	6-68 (41±21)	77-672 (523±182)	Rahman et al., 2008
Opeka	25	26-66	4,9-76,2	608-1000	Papastefanou et al., 2005
Opeka	-	49,6±0,3	91±2	172±4	Ngachin et al., 207
Beton	7	9,86±0,22	4,18±0,36	30±0,44	Sharaf and Hamideen, 2013
Beton	1	72±3	82±5	830±30	Todorović et al., 2014a
Beton	5	6,6-26,9 (15,7±7,3)	1,3-21,5 (8,9±4,3)	44,8-465,4 (150,5±28,4)	Turhan et al., 2008
Beton	15	8,2-53,8	7,9-25,1	140-583	Papastefanou et al., 2005
Betonski blok	8	8,5-32 (18±8)	8-24 (14±6)	157-313 (251±52)	Manić et al., 2012
Betonski blok	-	20,4±0,3	34,5±0,2	849,5±5,2	Del Claro et al., 2017
Malter	-	8,90±0,18	9,435±0,006	465±11	Narloch et al., 2019
Malter	4	7-22	7,7-25	130-490	Rughi and Bruzzi, 2006
Malter	-	10,8±0,2	15,0±0,1	79,1±1,6	Del Claro et al., 2017
Siporeks	1	3,1±1,5	9,9±1,0	196±15	Todorović et al., 2014a

– opseg, (srednja vrednost ± standardna devijacija).

Tabela 9.6 Vrednosti koeficijenta emanacije radona (ϵ) za tipične građevinske materijale određene u prethodnim istraživanjima.

Građevinski materijal	Opseg (ϵ)	Reference
Beton	0,063-0,16	Righi and Bruzzi, 2006
Malter	0,029-0,126	Righi and Bruzzi, 2006
Opeka	0,025-0,183	Righi and Bruzzi, 2006
Siporeks	0,064-0,27	Bikit et al., 2011

Vrednosti godišnjih efektivnih doza gama zračenja kod svih uzoraka su ispod preporučene vrednosti od 1 mSv y⁻¹ (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018), osim za 3 uzorka siporeksa, Tabela 9.3. Prosečna vrednost godišnje efektivne doze za svih 40 analiziranih uzoraka građevinskih materijala iznosi 518±51 μSv y⁻¹ (srednja vrednost ± standardna devijacija). Takođe, prosečna vrednost godišnje

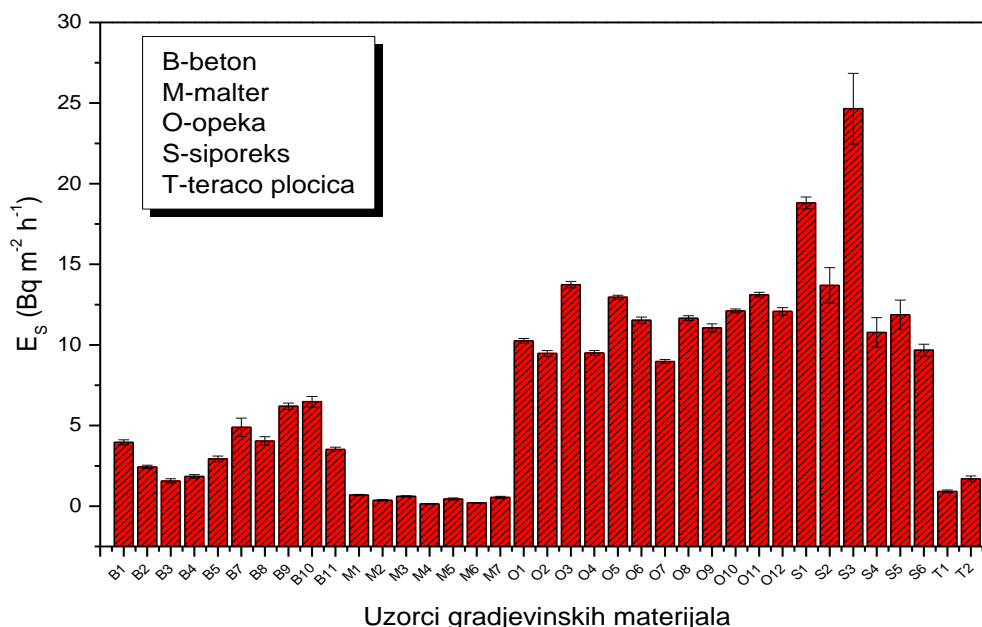
efektivne doze je oko prosečne vrednosti od $460 \mu\text{Sv y}^{-1}$ za građevinske materijal u svetu (UNSCEAR, 2000).

Vrednosti brzine površinske ekshalacije radona (E_S), unutrašnje koncentracije radona (C_{Rn}) i godišnje efektivne doze koja poriče od radona (D_{Rn}) za 37 uzoraka tipičnih građevinskih materijala, (3 uzorka crepa nisu razmatrana), koji se koriste u Srbiji u građevinarstvu, prikazane su na Slikama 9.1-3.

Tabela 9.7 Rezultati gustine građevinskih materijala određene piknometrijskom metodom i tipične debljine građevinskih materijala (d) u komercijalnoj upotrebi koje su korišćene za procenu brzine površinske ekshalacije radona prema relaciji (3.11).

Građevinski materijal	ρ (kg m^{-3})	d (m)
Beton	2385	0,15
Malter	1412	0,03
Opeka	1442	0,25
Siporeks	712	0,25

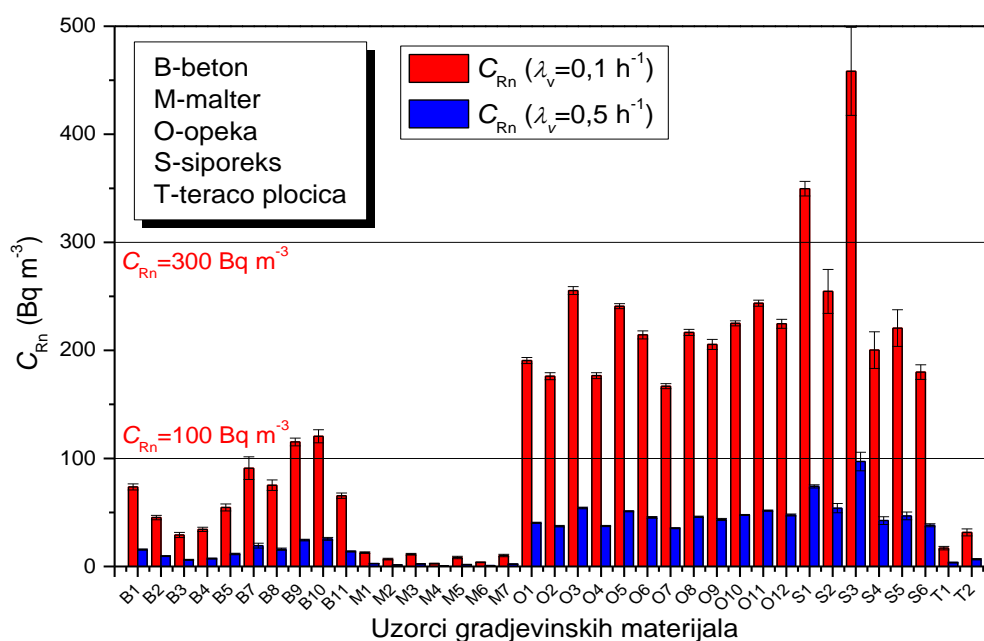
Za procenu brzine površinske ekshalacije radona (E_S), prema relaciji (3.11), korišćeni su koeficijenti emanacije radona (ε) dobijeni u ranijim istraživanjima (uzete su maksimalne vrednosti, te je pretpostavljen najgori mogući scenario) za analizirane građevinske materijale (Tabela 9.6). Gustina analiziranih uzoraka (ρ) građevinskih materijala je određena metodom piknometra, a rezultati su dati u Tabeli 9.7, zajedno sa tipičnom debljinom analiziranih građevinskih materijala (d). Vrednosti brzine površinske ekshalacije radona su u rasponu od $0,144 \pm 0,012 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (uzorak maltera) do $25 \pm 2 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (uzorak od siporeksa). Prosečna brzine površinske ekshalacije radona za 37 analiziranih uzoraka građevinskih materijala iznosi $6,74 \pm 0,95 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija).



Slika 9.1 Vrednosti brzina površinske ekshalacije (E_S) za 37 uzoraka građevinskih materijala.

Koncentracija radona u zatvorenom prostoru (C_{Rn}) procenjena je prema relaciji (3.22). Odnos površine prostorije prekrivene analiziranim građevinskim materijalom i zapremine vazduha (S/V) uzeta je da ima vrednost 2 m^{-1} . Procena unutrašnja koncentracija radona u zatvorenom prostoru izvršena je u

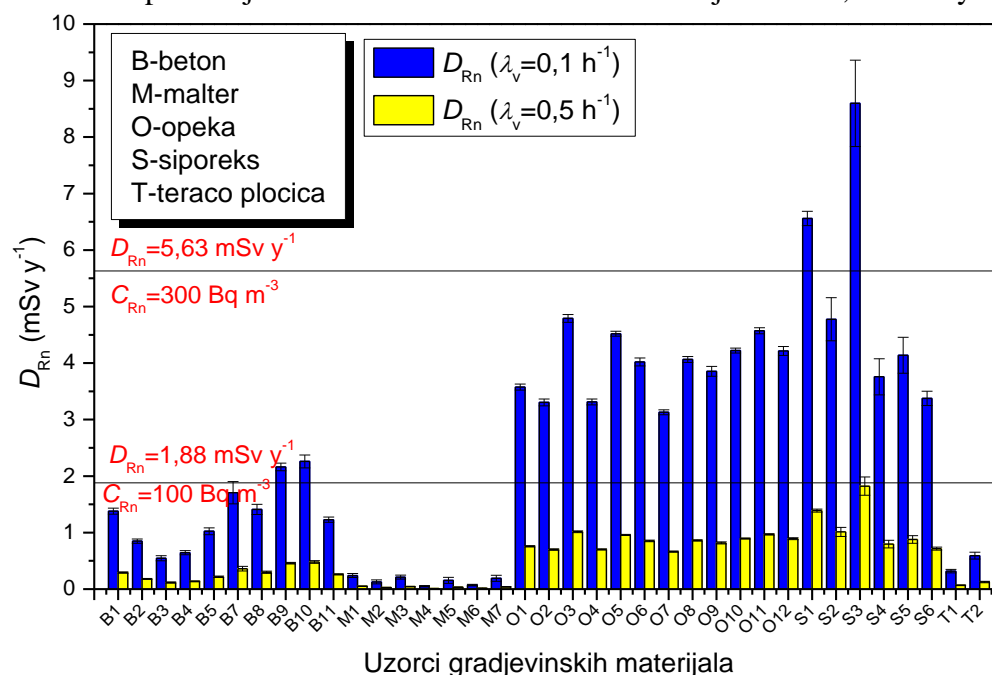
slučaju loše provetrenosti ($\lambda_v=0,1 \text{ h}^{-1}$) i normalne provetrenosti ($\lambda_v=0,5 \text{ h}^{-1}$). Procenjene vrednosti koncentracije radona u zatvorenom prostoru za lošu provetrenost bile su u opsegu od $2,68\pm 0,23 \text{ Bq m}^{-3}$ (uzorak maltera) do $458\pm 41 \text{ Bq m}^{-3}$ (uzorak siporeksa). Prosečna vrednost za lošu provetrenost prostorije iznosi $125\pm 18 \text{ Bq m}^{-3}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). U slučaju normalne provetrenosti prostorije, koncentracija radona u zatvorenom prostoru kreće se u rasponu od $0,57\pm 0,05 \text{ Bq m}^{-3}$ (uzorak maltera) do $97\pm 9 \text{ Bq m}^{-3}$ (uzorak siporeksa). Prosečna vrednost unutrašnje koncentracije aktivnosti radona za normalnu provetrenost u prostoriji iznosi $27\pm 4 \text{ Bq m}^{-3}$. Prema preporučenim granicama za unutrašnju koncentraciju radona od strane Svetske zdravstvene organizacije (WHO, 2009) 54% analiziranih uzoraka (20/37) u slučaju loše provetrenosti u prostoriji bilo je iznad donje preporučene granice od 100 Bq m^{-3} , dok je 5,4% uzoraka (2/37) bilo iznad gornje preporučene granice od 300 Bq m^{-3} (WHO, 2009). Za normalnu provetrenost prostorije sve vrednosti unutrašnjih koncentracija radona su ispod donje preporučene granice od 100 Bq m^{-3} , Slika 9.2.



Slika 9.2 Vrednosti unutrašnjih koncentracija radona u zatvorenom prostoru (C_{Rn}) za 37 uzoraka građevinskih materijala procenjenih za lošu i normalnu provetrenost prostorije, sa naznačenim vrednostima koje preporučuje Svetska zdravstvena organizacija u rasponu od $100 - 300 \text{ Bq m}^{-3}$ (WHO, 2009).

Procenjene su vrednosti godišnjih efektivnih doza koje potiču od izloženosti radonu u zatvorenom prostoru (D_{Rn}) za lošu i normalnu provetrenost u prostoriji (relacija (6.10)). Prema relaciji (6.10) procijenjeno je da donjoj preporučenoj vrednosti koncentracije radona u zatvorenom prostoru od 100 Bq m^{-3} odgovara godišnja efektivna doza od $1,88 \text{ mSv y}^{-1}$, dok gornjoj preporučenoj vrednosti od 300 Bq m^{-3} (WHO, 2009) odgovara godišnja efektivna doza od $5,63 \text{ mSv y}^{-1}$. Dobijene vrednosti za lošu provetrenost u prostoriji kreću se u opsegu od $0,050\pm 0,011 \text{ mSv y}^{-1}$ (uzorak maltera) do $8,6\pm 0,8 \text{ mSv y}^{-1}$ (uzorak siporeksa). Dobijena prosečna vrednost unutrašnje koncentracije radona pri lošoj provetrenosti prostorije iznosi $2,35\pm 0,33 \text{ mSv y}^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Godišnje efektivne doze koje potiču od izloženosti radonu pri normalnoj provetrenosti prostorije kreću se u opsegu od $0,0106\pm 0,0009 \text{ mSv y}^{-1}$ (uzorak maltera) do $1,82\pm 0,16 \text{ mSv y}^{-1}$ (uzorak siporeksa). Prosečna godišnja efektivna doza od radona u zatvorenom prostoru od 37 analiziranih građevinskih

materijala iznosi $0,50 \pm 0,07$ mSv y^{-1} (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Za lošu provetrenost prostorije, 48,6% uzoraka (18/37) zadovoljava dozni kriterijum $1,88 \leq D_{Rn} \leq 5,63$ mSv y^{-1} , dok je 5,4% analiziranih uzoraka (2/37) (uzorci siporeksa) su iznad gornje granice doze od 5,63 mSv y^{-1} . Za normalnu provetrenost prostorije sve vrednosti doza su iznad kriterijuma od 1,88 mSv y^{-1} .



Slika 9.3 Vrednosti godišnjih efektivnih doza (D_{Rn}) koje potiču od izloženosti radonu za 37 uzoraka građevinskih materijala iz Tabela 9.2 i 9.3 sa naznačenim vrednostima godišnjih efektivnih doza koje odgovaraju preporučenim vrednostima unutrašnje koncentracije radona u rasponu od 100-300 Bq m^{-3} .

Jačine efektivnih doza gama zračenja za tipične građevinske materijale izmerene su korišćenjem monitora gama zračenja *Radiagem 2000* i prikazane u Tabeli 9.8. Dobijene srednje vrednosti jačina doza gama zračenja bile su u rasponu od $0,16 \pm 0,02$ μ Sv h^{-1} za uzorke maltera do $0,41 \pm 0,05$ μ Sv h^{-1} za uzorke siporeksa (srednja vrednost \pm standardna devijacija), Tabela 9.8. Godišnje efektivne doze gama zračenja procenjene za vreme izloženosti od 7000 h kreću se u opsegu od $1,12 \pm 0,14$ mSv y^{-1} za uzorke maltera do $2,87 \pm 0,35$ mSv y^{-1} za uzorke siporeksa. Dobijene vrednosti bile su oko i ispod prosečne vrednosti za izloženost prirodnim izvorima od 2,4 mSv y^{-1} (UNSCEAR, 2000). Ovako procenjene godišnje efektivne doze mogu se smatrati ekstremnim slučajem jer su eksperimentalne vrednosti merene u kontaktnoj geometriji.

Tabela 9.8 Srednje vrednosti jačina efektivnih doza gama zračenja za tipične građevinske materijale proizvedene u Srbiji i procena godišnjih efektivnih doza za izloženost ljudi u trajanju od 7000 sati godišnje (srednja vrednost \pm standardna devijacija).

Naziv uzorka	Jačina efektivne doze (μ Sv h^{-1})	Godišnja efektivna doza (mSv y^{-1})
Opeka	$0,25 \pm 0,03$	$1,75 \pm 0,21$
Beton	$0,17 \pm 0,02$	$1,19 \pm 0,14$
Malter	$0,16 \pm 0,02$	$1,12 \pm 0,14$
Crep	$0,27 \pm 0,03$	$1,89 \pm 0,21$
Keramičke pločice	$0,31 \pm 0,04$	$2,17 \pm 0,28$
Siporeks	$0,41 \pm 0,05$	$2,87 \pm 0,35$

Tabela 9.9 Rezultati merenja doze gama zračenja iz građevinskih materijala u jednoj kući stare gradnje u Šapcu, Srbija i procena godišnjih efektivnih doza za izloženost stanara od 7000 sati godišnje u centru date prostorije.

Lokacija	Površina (m ²)	Zidovi (μSv h ⁻¹)	Pod (μSv h ⁻¹)	Plafon (μSv h ⁻¹)	U centru sobe (μSv h ⁻¹)	Van kuće (μSv h ⁻¹)	Godišnja efektivna doza (μSv y ⁻¹)
Soba 1	13	0,14-0,23	0,21	0,31	0,18	0,11	490
Soba 2	13	0,15-0,25	0,15	0,22	0,16		350
Predsooblje	4	0,13-0,17	0,17	0,17	0,15		280
Kupatilo	4,8	0,15-0,26	0,22	0,15	0,19		560
Kuhinja	12,2	0,14-0,24	0,18	0,16	0,18		490
Prosek ±SD		0,18±0,06	0,186±0,012	0,202±0,026	0,172±0,007		434±52

U Tabeli 9.9 prikazani su rezultati merenja jačine efektivne doze gama zračenja iz građevinskog materijala u jednoj tipičnoj stambenoj kući u Šapcu u Srbiji pomoću dozimetra Radiagem 2000. Sva merenja jačina doza iz zidova, poda i plafona izvedena su u kontaktnoj geometriji. Kuća u kojoj su izvršena merenja ima površinu od 47 m² i ima 5 prostorija: 2 sobe, predsooblje, kuhinju i kupatilo (njihove površine su date u Tabeli 9.9). Visine svih prostorija u kući su 2,5 m. Sve prostorije su napravljene od standardne pune opeke, dok su zidovi prekriveni krečnim malterom. Plafon je izrađen od drvene konstrukcije, trske i maltera.

Podovi u sobama 1 i 2 izrađeni su od drveta bez betonske podloge, dok je u ostalim sobama pod od betonske podloge sa drvenom oblogom ili keramičkim pločicama. Nivo pozadinskog zračenja izmeren van kuće bio je oko 0,11 μSv h⁻¹. Nakon oduzimanja pozadinskog zračenja od izmerenih vrednosti jačina doza u centru prostorije, procenjena je godišnja efektivna doza izvedena iz građevinskih materijala. Izmerene vrednosti nisu bile značajno veće od pozadinskog nivoa zračenja i sve su iznosile < 35 μSv h⁻¹. Na osnovu jačina doza izmerenih u centru prostorije, procenjene su godišnje efektivne doze za vreme izloženosti od 7000 h godišnje. Procenjene vrednosti su ispod prosečne vrednosti za zračenje iz prirodnih izvora od 2,4 mSv y⁻¹ (UNSCEAR, 2000). Procenjene vrednosti godišnjih efektivnih doza date u Tabeli 9.9 su niže i približne vrednostima datim za beton, malter i opeku, Tabele 9.2 i 9.3. Izmerene vrednosti su oko svetskog proseka za građevinske materijale od 0,460 mSv y⁻¹ (UNSCEAR, 2000).

Tabela 9.10 Izmerena vrednosti koncentracije aktivnosti radona (C_{Rn}) u sobi 1 analizirane kuće u Šapcu kao i vrednosti godišnjih efektivnih doza koje potiču od izloženosti radonu za 7000h godišnje.

Mesto merenja	Sprat	Pod	Površina (m ²)	C_{Rn} (Bq m ⁻³)	D_{Rn} (mSv y ⁻¹)
Porodična kuća Šabac, spavaća soba 1 – polica	Prizemlje	Drveni pod bez betonske podloge	13,00	612±15	11,48±0,28

Pasivnom metodom pomoću ugljenih kanistera koji imaju visok afinitet za adsorpciju radona izmerena je koncentracija radona u Sobi 1 (spavaća soba u porodičnoj kući). Ekspoziranje kanistera je vršeno oko 3 dana, a izmerena vrednost kao i procenjena godišnja efektivna doza data je u Tabeli 9.10. Izmerena je vrednost od 612±15 Bq m⁻³ koja je 2 puta viša od gornje granice preporučene od strane Svetske zdravstvene organizacije (WHO, 2009). Treba napomenuti da je 10 dana pre merenja kao i za vreme ekspoziranja kanistera režim provetravaja bio prilično loš, te se dobijena vrednost može smatrati reprezentativnom. Dobijena vrednost je viša u odnosu na one dobijene na Akademiji strukovnih studija u Šapcu, što ukazuje da je glavni uzrok u odsustvu betonske podloge u prostoriji. Dobijena vrednost koncentracije radona daje godišnju efektivnu dozu od 11,48±0,28 mSv y⁻¹ što je oko 4,8 puta veća vrednost u odnosu na tipičnu vrednost za izloženost od prirodnih izvora od 2,4 mSv y⁻¹ (UNSCEAR,

2000). Dobijena vrednost koncentracije radona iziskuje češću provetrenost prostorije tokom dana koja bi spustila koncentraciju radona a prihvatljiv nivo, kao i sprovođenje adekvatnih mera remedijacije, postavljanjem betonske podloge i dodatnih materijala čime bi se optimizovala koncentracija radona na prihvatljiv nivo ispod 300 Bq m^{-3} , i time smanjila prekomerna izloženost stanara radonu.

10 *Upotreba fosfogipsa u proizvodnji opeke*

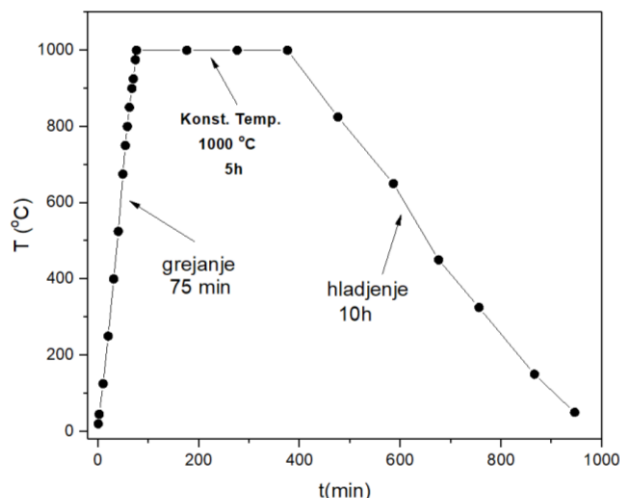
Kako je navedeno u poglavlju 8.2 u svetu, a i u Srbiji nastaju velike količine otpadnog fosfogipsa, koji je štetan za ljude i životnu sredinu, pre svega usled povećanog sadržaja prirodnih radionuklida ^{226}Ra , ^{238}U , ^{210}Pb , ^{210}Po , i ^{234}U . Na primer, u Brazilu svake godine nastane oko 5,5 miliona tona ovog otpada (Nisti et al., 2014). Imajući u vidu da ovaj otpad nastaje pri procesu proizvodnje fosforne kiseline (reakcija 8.5) u njemu se kao nečistoće mogu naći i fosfati, ostaci fosforne kiseline, organske materije i fluoridi. Elementi koji se mogu naći kao propratne nečistoće su i Ba, As, Cr, Cd, Hg, Pb, Se i Ag. Glavni nedostatak slabo razvijene komercijalne upotrebe fosfogipsa u svetu je prisustvo ovih radioaktivnih elemenata i nečistoća, zbog čijeg prisustva je smanjena mehanička čvrstoća fosfogipsa (Rashad, 2017) u odnosu na prirodni gips. Razvijene su različite metode za uklanjanje ili smanjenje ovih radionuklida i nečistoća iz sirovog fosfogipsa kako bi se garantovala njegova bezbedna upotreba u građevinskoj industriji (Al-Hwaiti, 2015; El-Didamony et al., 2012, 2013; Nizevičienė et al., 2018). Metode hemijskog tretmana radi smanjenja nivoa radioaktivnosti često mogu biti vremenski zahtevne, ali i ekonomski neisplative, te se u savremenom svetu mora posezati za ekonomičnijim merama iskorišćenja ovog otpada, ali tako da se time ne ugrozi zdravlje ljudi i životna sredina.

Ovo poglavlje razmatra mogućnosti iskorišćenja fosfogipsa – NORM materijala koji nije prethodno hemijski prečišćen, kao dodatka glini u proizvodnji opeke. Kako se navodi u radu autora (Rashad, 2017), bez obzira na neka od negativnih svojstava fosfogipsa, ponovna upotreba u građevinskim materijalima ima veliki i pozitivan efekat na ublažavanje zagađenja koja su uzrokovana prekomernim odlaganjem ovog otpada.

Kao što je pokazano u poglavlju 8.2, otpadni fosfogips može dati značajne koncentracije radonskog gasa u zatvorenom prostoru ako bi se samostalno koristio u građevinarstvu za proizvodnju gips-karton ploča. Iz tog razloga je proistekla nova ideja njegovog iskorišćenja u proizvodnji opeke, kao dodatka, a pre svega jer ima malo istraživanja iz ove oblasti. Neka od postojećih razmatranja upotrebe fosfogipsa u proizvodnji pečene opeke sadržana su u radovima autora (Ajam et al., 2009; Ajam et al., 2019; Conterras et al., 2018; Turkel and Aksin, 2012).

Ova studija daje radiološka i strukturna svojstva dobijenih uzoraka opeke sa fosfogipsom, a sve u cilju optimizacije izloženosti stanovništva zračenju na prihvatljiv nivo, imajući u vidu da bi upotreba fosfogipsa kao dodatka glini mogla značajno uticati na izloženost kako gama zračenju, tako i radonu i njegovim potomcima. Ovo istraživanje, upotrebe fosfogipsa u proizvodnji opeke, predstavlja prvo istraživanje potencijalnog iskorišćenja ovog otpada proizvedenog u Srbiji.

Pošto će u poglavlju 11 biti ustanovljeno da najmanje frakcije fosfogipsa imaju najveći koeficijent emanacije radona, odnosno najveću brzinu ekshalacije, za pravljenje uzoraka opeke korišćena veličina frakcije fosfogipsa je veličine $\leq 0,25 \text{ mm}$. Upravo su manje frakcije korišćene da bi se ispitao radiološki uticaj i izvršila procena radijacionog rizika od upotrebe dobijenih materijala, kako u pogledu gama zračenja, tako i radona.



Slika 10.1 Režim pečenja opeke sa fosfogipsom u ovoj studiji.

Za pripremu kompozita korišćena je glina sa površinskog kopa Jovanovića brdo, odnosno kompozit koji se koristi u proizvodnji opeke u firmi Zorka Opeka iz Donjeg Crniljeva, nastao mešavinom 4 vrste gline: tamne, žute, crvene i šarene (poglavlje 8.3.1). Fosfogips je pribavljen iz jedne od hemijskih industrija u Srbiji. Sirova glina i fosfogips su najpre sušeni na 105 °C do konstantne mase 6-8h, zatim su samleveni u kugličnom mlinu, nakon čega su razmeravani. Pripremljen suv kompozit za svaki uzorak imao je masu 600 g. Pripremljeno je 8 uzoraka sa udelom fosfogipsa u rasponu od 0 – 40%. Nakon mešanja suvog kompozita dodavana je voda prema potrebi kako bi se stvorila dovoljno plastična masa za dalju obradu i oblikovanje. Pripremljena masa propuštana je kroz ručnu presu (estruder). Dobijeni su uzorci cilindričnog oblika različitih dimenzija sa prečnikom od 3,5 cm. Nakon presovanja uzorci su sušeni 48h na sobnoj temperaturi, a zatim 24h u peći na 110°C. Nakon sušenja podvrgnuti su procesu pečenja na temperaturi od 1000 °C. Režim pečenja svih uzoraka je prikazan na Slici 10.1. Brzina zagrevanja peći iznosila je oko 13,3 °C min⁻¹. Uzorci su pečeni 5h na konstantnoj temperaturi od 1000 °C, nakon čega su ostavljeni još 10h da se hlade zajedno sa peći za pečenje. Izgled dobijenih 8 uzoraka sa različitim udelom fosfogipsa prikazan je na Slici 10.2. Priprema i pečenje uzoraka sprovedeno je krajem marta i početkom aprila 2019. godine na Odseku za medicinske i poslovno tehnološke studije Akademije strukovnih studija Šabac.



Slika 10.2 Opeka sa različitim udelom fosfogipsa (0 – 40 %), pečena na 1000 °C.

Koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za sve uzorke i sirovine određene su metodom gama spektrometrije. Za gama spektrometrijska merenja dobijeni uzorci opeke su najpre zdrobljeni i samleveni do veličine frakcije ≤ 2 mm, i upakovani u plastične cilindrične kontejnere dimenzija 67 mm u prečniku i 62 mm visine, kao i za prethodne uzorke analizirane ovom metodom. Spojevi su zalepljeni teflon trakom kako bi se sprečio izlazak radona iz posude. Svi uzorci su mereni nakon minimum mesec dana, pošto je bila uspostavljena sekularna radioaktivna ravnoteža između ^{226}Ra i ^{222}Rn . Izmerene vrednosti ovih radionuklida za sirovinske materijale gline i PG prikazane su u Tabeli 10.1.

Tabela 10.1 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za reprezentativne uzorke gline i fosfogipsa (PG) koji su korišćeni u ovoj studiji kao sirovinski materijali.

Uzorak	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			I_γ	I_α	D (nGy h^{-1})	E (mSv y^{-1})
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K				
Glina	44±3	56±5	572±20	0,62±0,03	0,22±0,02	148±6	0,72±0,04
PG	576±14	5,9±0,9	132±8	1,99±0,05	2,88±0,07	547±13	2,68±0,09

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u korišćenoj glini sa površinskog kopa Jovanovića brdo su iznosile: 44±3 Bq kg^{-1} , 56±5 Bq kg^{-1} i 572±20 Bq kg^{-1} , respektivno. Dobijene vrednosti su oko prosečnih vrednosti za građevinske materijale u svetu (UNSCEAR, 1993). Izmerene vrednosti ovih radionuklida u fosfogipsu korišćenom za proizvodnju opeke su 576±14 Bq kg^{-1} , 5,9±0,9 Bq kg^{-1} i 132±8 Bq kg^{-1} , za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K respektivno. Izmerene vrednosti ^{226}Ra u fosfogipsu su 11 puta veće od 50 Bq kg^{-1} , koliko je svetski prosek ovog radionuklida za građevinske materijale (UNSCEAR, 1993), dok su vrednosti koncentracija aktivnosti ^{232}Th i ^{40}K daleko ispod 50 Bq kg^{-1} i 500 Bq kg^{-1} , odnosno prosečnih vrednosti koncentracija aktivnosti ^{232}Th i ^{40}K u svetu za građevinske materijale, respektivno. Dobijene vrednosti alfa i gama indeksa kod uzorka fosfogipsa prelaze preporučene vrednosti od 1, (Joel et al., 2018; UNSCEAR, 2000), dok su kod uzorka korišćene gline ispod preporučene vrednosti oba hazard indeksa. Prema dobijenim vrednostima se može zaključiti da fosfogips predstavlja radijacionu opasnost kako u pogledu gama zračenja tako i u pogledu ekshalacije radona.

Vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja su 2,7 i 10 puta veće od prosečne vrednosti za građevinske materijale od 55 nGy h^{-1} (UNSCEAR, 2008), za uzorak gline i fosfogipsa, respektivno. Vrednosti godišnjih efektivnih doza gama zračenja su procenjene za izloženost od 7000 h godišnje, odnosno za najgori mogući scenario (konzervativni pristup). Dobijene vrednosti su 1,7 puta više za uzorak fosfogipsa od preporučene vrednosti od 1 mSv y^{-1} (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018).

Tabela 10.2 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , vrednosti gama indeksa (I_γ) i alfa indeksa (I_α) za sve analizirane uzorke opeke.

mas. % PG	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			I_γ	I_α
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K		
0	56±1	65±2	620±18	0,718±0,012	0,280±0,005
5	80±2	66±2	621±18	0,804±0,013	0,400±0,010
10	104±2	59±2	592±17	0,839±0,013	0,520±0,010
15	140±3	60±3	587±17	0,962±0,019	0,700±0,015
20	155±3	52±3	559±24	0,963±0,020	0,775±0,015
25	174±3	50±2	500±22	0,997±0,016	0,870±0,015
30	216±3	51±3	528±15	1,151±0,019	1,080±0,015
40	265±3	45±2	444±13	1,256±0,015	1,325±0,015

Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u 8 uzoraka opeke prikazani su u Tabeli 10.2. Vrednosti koncentracija aktivnosti se kreću u intervalu od 56-265 Bq kg^{-1} , 45-65 Bq kg^{-1} i 444-620 za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , respektivno. Vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra prelaze prosečnu vrednost za građevinske materijale od 50 Bq kg^{-1} od 1,12 puta, kod uzorka sa udelom PG od 0%, do oko 5,3 puta, kod uzorka sa udelom PG od 40%. Koncentracije aktivnosti ^{232}Th i ^{40}K su oko prosečnih vrednosti od 50 Bq kg^{-1} i 500 Bq kg^{-1} za građevinske materijale, respektivno. Sa povećanjem udela PG u uzorcima uočeno je linearno povećanje koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , dok je za koncentracije aktivnosti ^{232}Th i ^{40}K uočeno linearno smanjenje sa povećanjem udela PG u uzorcima opeke. Uspostavljene korelacije između koncentracija aktivnosti ova tri radionuklida sa udelom PG u uzorku su prikazane na Slici 10.3. Uočene su jake korelacije sa vrednostima korelacionih faktora $R^2 > 0,9$ i $r > 0,95$. Vrednosti gama i alfa indeksa za uzorke opeke sa udelom PG većim od 25% prelaze preporučenu vrednost od 1 (Joel et al., 2018; UNSCEAR, 2000).

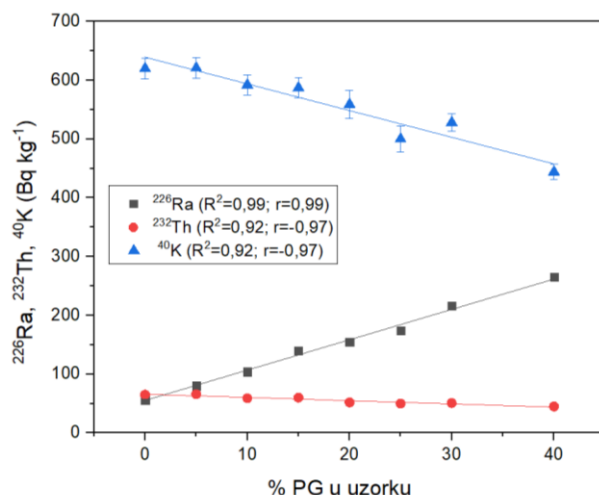
Prema izveštaju Evropske komisije *Radiation protection 112*, ne postoje jasne i precizne naznake za procenu apsorbovanih doza gama zračenja za prostoriju standardnih dimenzija čiji su samo zidovi izgrađeni od opeke (EC, 1999). Iz ovog razloga, da bi se odredile jačine apsorbovanih doza gama zračenja, korišćen je metod Monte Karlo simulacija softverskim paketom GEANT4 (verzija 4.9.5) (Agostinelli et al., 2003; Geant4 Collaboration, 2015). Vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja dobijenih u simulacijama upoređene su sa dva ekstremna slučaja preporučena za teorijske procene u izveštaju (EC, 1999), prema relacijama (10.1a i 10.1b):

$$D_{\text{teor1}}(\text{nGy h}^{-1}) = 0,12 \cdot A_{\text{Ra}} + 0,14 \cdot A_{\text{Th}} + 0,0096 \cdot A_{\text{K}} \quad (10.1a)$$

i

$$D_{\text{teor2}}(\text{nGy h}^{-1}) = 0,92 \cdot A_{\text{Ra}} + 1,1 \cdot A_{\text{Th}} + 0,080 \cdot A_{\text{K}} \quad (10.1b)$$

Relacija (10.1a) je preporučena za procenu jačine apsorbovane doze zračenja koja potiče od poda, plafona i zidova za sve materijale. Relacija (10.1b) je preporučena za procenu jačine apsorbovane doze gama zračenja za pločice i kamene obloge (debljine 3 cm i gustine 2600 kg m^{-3}) kojima su obloženi svi zidovi (EC, 1999). Imajući u vidu da se u prostorijama samo zidovi izgrađuju od opeke, obično debljine od 25 cm, i tipične gustine od 1500 kg m^{-3} , ni jedna od gornjih relacija u potpunosti ne zadovoljava ovaj kriterijum.

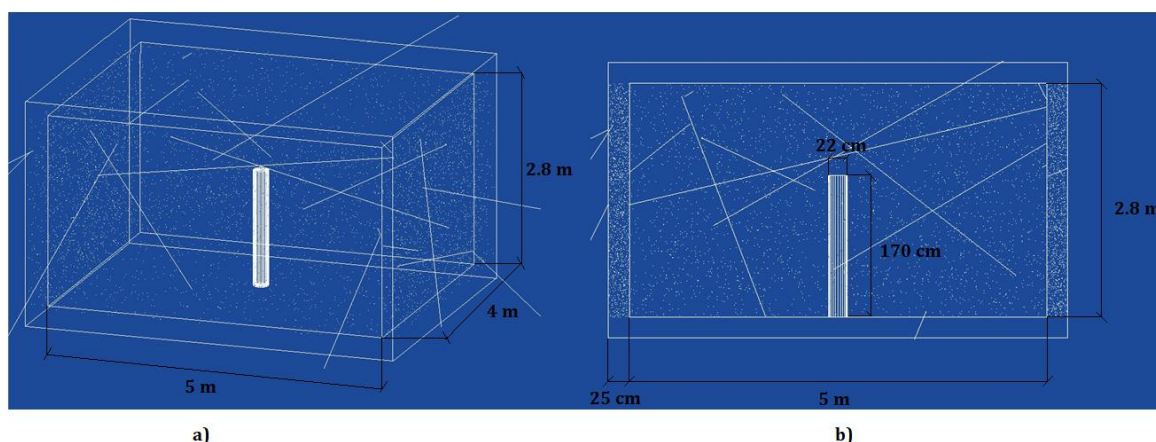


Slika 10.3 Korelacija između koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K i masenog udela PG u uzorcima opeke.

Tabela 10.3 XRF analiza elemenata na preseku uzoraka sa različitim udelom fosfogipsa izraženi u mas. %.

mas. % PG	Na	Mg	Al	Si	S	K	Ca	Mn	Fe
0	0,48	1,01	15,32	26,89	0,021	1,98	0,41	0,008	5,72
5	0,42	0,94	13,52	25,65	1,91	1,91	2,24	0,007	5,07
10	0,49	0,87	12,93	23,61	3,12	1,79	4,19	0,008	5,00
15	0,52	0,77	11,82	22,83	4,29	1,86	5,21	0,006	4,63
20	0,51	0,66	10,35	21,78	5,95	1,73	6,35	0,006	4,38
25	0,46	0,62	9,75	20,56	6,93	1,59	7,91	0,007	4,02
30	0,42	0,55	8,24	19,23	8,70	1,63	9,11	0,006	3,82
40	0,35	0,57	6,22	17,30	10,38	1,41	12,73	0,005	3,11

Prostorija čiji su zidovi izgrađeni od opeke sa različitim udelom fosfogipsa u simulaciji je zadata prema standardnim dimenzijama: 4 m × 5 m × 2,8 m, bez prozora i vrata, kao što je pretpostavljeno u istraživanju (Koblinger, 1978). Pod i plafon prostorije izrađeni su od betona debljine 10 cm i gustine 2350 kg m⁻³. Debljina zidova od opeke je 25 cm, Slika 10.4. Gustina opeke sa fosfogipsom u simulacijama zadata je prema tipičnoj vrednosti za glinene opeke od 1500 kg m⁻³ (Soniya et al., 2020), dok je hemijski sastav određen za svih 8 analiziranih uzoraka metodom XRF-a. Dobijena hemijska karakterizacija uzoraka opeke XRF metodom data je u Tabeli 10.3. Potrebno je naglasiti da plafon i pod u zadatoj prostoriji ne učestvuju u emisiji gama fotona, ali doprinose njihovom rasejanju. Kod zadavan u Monte Karlo simulacijama dat je u prilogu C, poglavlje 14.3.



Slika 10.4 Izgled prostorije dimenzija 4 × 5 × 2,8 m čiji su zidovi debljine 25 cm izgrađeni od opeke sa različitim udelima fosfogipsa sa vodenim cilindrom u centru prostorije, postavljenim u Monte Karlo simulacijama za procenu jačine apsorbovane doze gama zračenja (D).

Pretpostavljeno je da su ²²⁶Ra, i ²³²Th u sekularnoj radioaktivnoj ravnoteži sa svojim potomcima, uzimajući u obzir da oni zajedno sa ⁴⁰K najvećim delom doprinose ukupnoj vrednosti apsorbovane doze gama zračenja. Za simulacije izabrani broj raspada ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K bio je 10⁶, 1,16 × 10⁶ i 11,1 × 10⁶ raspada, respektivno, za svaku pojedinačnu simulaciju.

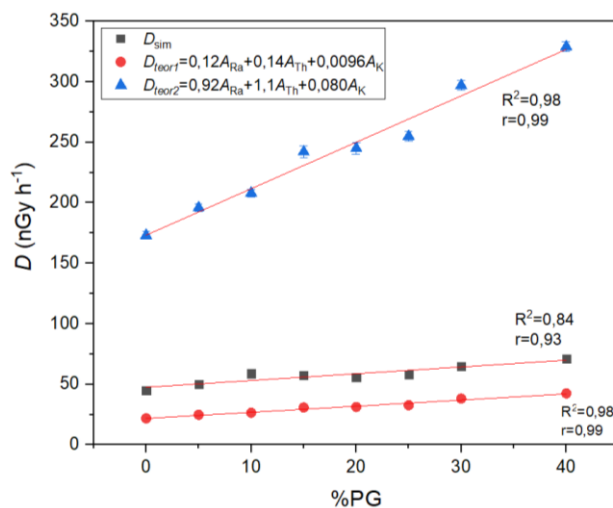
S obzirom da se u simulacijama može zadati samo broj raspada (događaja), za referentni broj događaja je odabrano 10⁶ raspada ²²⁶Ra, dok se broj emitovanih događaja ²³²Th i ⁴⁰K dobija kada se ovaj broj događaja pomnoži odnosom koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra i koncentracija aktivnosti ²³²Th i ⁴⁰K, respektivno. Na primer, ako su koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K, 56 Bq kg⁻¹, 65 Bq kg⁻¹ i 620 Bq kg⁻¹, respektivno, (uzorak sa 0% PG iz Tabele 10.2), tada je broj od 10⁶ događaja za ²³²Th i ⁴⁰K pomnožen sa: $\frac{65 \text{ Bq kg}^{-1}}{56 \text{ Bq kg}^{-1}} = 1,16$ i $\frac{620 \text{ Bq kg}^{-1}}{56 \text{ Bq kg}^{-1}} = 11,1$, dajući 1,16 · 10⁶ i 11,1 · 10⁶ raspada ²³²Th i ⁴⁰K,

respektivno. Sličan pristup primenjen je i za ostale izmerene koncentracije aktivnosti u analiziranim uzorcima opeke, kao i kod analiziranih uzoraka granita (poglavlje 8.1.1). Na ovaj način se stvarni odnos koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u uzorcima opeke održava i u simulacijama. Dalje se ovako dobijeni broj množi sa verovatnoćom emisije za svaku od gama linija odgovarajućeg radionuklida, Tabela 8.8. Samim tim, broj emitovanih fotona svake gama linije u simulacijama odražava stvarni raspad svakog radionuklida.

Nadalje, određivanjem ekvivalentnog vremena (t_{eq}) i deponovane energije u vodenom cilindru određena je jačina apsorbovane doze gama zračenja (D), prema relaciji (8.3), kao za uzorke granita, poglavlje 8.1.1. Vodeni cilindar, prečnika 22 cm i visine 170 cm, smešten je u centru prostorije standardnih dimenzija, (Slika 10.4), predstavljajući ljudsko telo (mase $m_{\text{cilindar}}=64,6$ kg), kako bi se dobila ukupna deponovana energija (E_{dep}) unutar ovog cilindra u svakoj pojedinačnoj simulaciji.

Tabela 10.4 Vrednosti simuliranih i teorijskih vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja, kao i vrednosti godišnjih efektivnih doza za 8 analiziranih uzoraka opeke sa različitim udelom fosfogipsa.

% PG	D_{sim} (nGy h ⁻¹)	D_{teor1} (nGy h ⁻¹)	D_{teor2} (nGy h ⁻¹)	E_{sim} (mSv y ⁻¹)	E_{teor1} (mSv y ⁻¹)	E_{teor2} (mSv y ⁻¹)
0	45,1	21,8±0,4	173±3	0,22	0,107±0,002	0,846±0,019
5	50,1	24,8±0,4	196±3	0,25	0,122±0,003	0,960±0,022
10	58,8	26,4±0,4	208±3	0,29	0,129±0,003	1,019±0,022
15	57,6	30,8±0,6	242±5	0,28	0,151±0,004	1,18±0,03
20	55,9	31,2±0,6	245±5	0,27	0,153±0,004	1,20±0,03
25	58,2	32,7±0,5	255±4	0,29	0,160±0,004	1,25±0,03
30	64,7	38,1±0,6	297±4	0,32	0,187±0,004	1,46±0,03
40	71,2	42,4±0,6	329±4	0,35	0,208±0,003	1,61±0,03

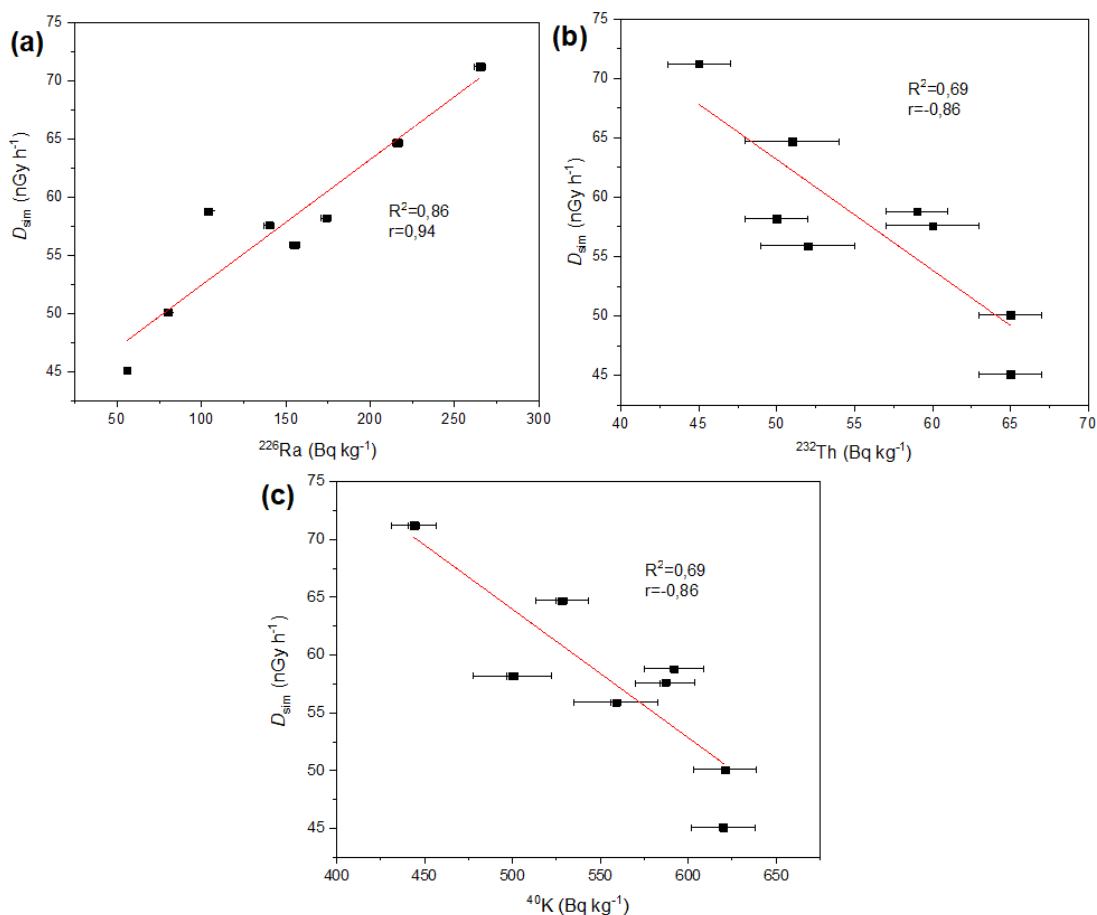


Slika 10.5 Korelacija teorijskih i simuliranih vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja sa udelom fosfogipsa u analiziranim uzorcima opeke.

Dobijene vrednosti simuliranih jačina doza gama zračenja (D_{sim}), kao i teorijskih vrednosti prema relacijama 10.1a i 10.1b, zajedno sa procenjenim godišnjim efektivnim dozama date su u Tabeli 10.4. Simulirane vrednosti se kreću od 45,1 nGy h⁻¹, za uzorak sa 0% PG, do 71,2 nGy h⁻¹, za uzorak sa 40% PG. Za većinu dobijenih vrednosti se može reći da su oko proseka za građevinske materijale u svetu od 55 nGy h⁻¹ (UNSCEAR, 2008). Dobijene su 1,7-2,1 puta veće vrednosti simuliranih jačina doza u odnosu na D_{teor1} i 3,5-4,6 puta manje vrednosti simuliranih u odnosu na D_{teor2} . Sve dobijene simulirane

godišnje efektivne doze za E_{sim} i E_{teor1} su ispod preporučenih 1 mSv y^{-1} , dok su vrednosti E_{teor2} iznad te vrednosti kod većine uzoraka opeke (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018).

Na Slici 10.5 date su korelacije između simuliranih (D_{sim}) i teorijski procenjenih vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja (D_{teor1} i D_{teor2}) sa udelom fosfogipsa u uzorku. Dobljene su jake korelacije na šta ukazuju vrednosti korelacionih faktora: $R^2 > 0,80$, $r > 0,90$.



Slika 10.6 Korelacije između simuliranih jačina apsorbovanih doza gama zračenja i koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K za uzorke opeke sa sadržajem fosfogipsa u rasponu od 0-40%.

Na Slici 10.6 prikazane su korelacije između simuliranih vrednosti jačina apsorbovanih doza (D_{sim}) i koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K izmerene u 8 uzoraka opeke sa različitim udelom fosfogipsa. Prema vrednostima Pirsonovih koeficijenata ustanovljene su jake korelacije među svim veličinama ($r > 0,85$).

U proseku dobijene simulirane vrednosti jačina apsorbovanih doza (D_{sim}) su oko 1,89 puta veće od teorijski procenjenih korišćenjem relacije (10.1a) (D_{teor1}), te se nametnula potreba za korigovanjem ove relacije. Korigovanje je izvršeno povećanjem vrednosti specifičnih brzina doza u relaciji (10.1a) za 90%, te se nakon transformacije, relacija za procenu jačine apsorbovane doze može zapisati kao:

$$D_{\text{cor}}(\text{nGy h}^{-1}) = 0,23 \cdot A_{\text{Ra}} + 0,26 \cdot A_{\text{Th}} + 0,018 \cdot A_{\text{K}} \quad (10.2)$$

Poređenje simuliranih i teorijskih vrednosti nakon korekcije vrednosti brzina specifičnih doza date su u Tabeli 10.5, sa relativnim odstupanjima. Uočava se da su relativna odstupanja do oko 15%.

Tabela 10.5 Poređenje simuliranih vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja i teorijskih vrednosti procenjene na osnovu korigovanih vrednosti specifičnih brzina doza gama zračenja prema relaciji (10.2).

% PG	D_{sim} (nGy h ⁻¹)	D_{teor1} (nGy h ⁻¹)	D_{cor} (nGy h ⁻¹)	Relativno odstupanje (%)
0	45,1	21,8±0,4	40,9±0,7	9,22
5	50,1	24,8±0,4	46,7±0,8	6,71
10	58,8	26,4±0,4	49,9±0,8	15,11
15	57,6	30,8±0,6	58,4±1,1	1,33
20	55,9	31,2±0,6	59,2±1,1	5,96
25	58,2	32,7±0,5	62,0±1,0	6,56
30	64,7	38,1±0,6	72,4±1,1	11,97
40	71,2	42,4±0,6	80,6±0,9	13,26

Nadalje su ispitivane varijacije hemijskog sastava i gustine matrice na vrednosti jačine apsorbovane doze gama zračenja. Najpre je u simulacijama zadat isti hemijski sastav matrice svim uzorcima, kao kod uzorka sa 0% PG (Tabela 10.3) ali sa njihovim izmerenim vrednostima koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K, Tabela 10.2, za gustinu matrice od 1500 kg m⁻³, kao i u prethodnim simulacijama. Dobijene vrednosti su prikazane u Tabeli 10.6. U poređenju sa vrednostima dobijenim za različit hemijski sastav matrice, vrednosti simuliranih doza gama zračenja sa istim sastavom matrice (D_{sim0}) su kod većine uzoraka oscilovale u okvirima 5% (kod 6 uzoraka čak < 2%). Odavde se može zaključiti da hemijski sastav matrice ne predstavlja značajan faktor koji doprinosi povećanju jačine apsorbovane doze gama zračenja, jer se uzrok treba tražiti isključivo u povećanju koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra koja raste sa povećanjem udela fosfogipsa u uzorcima.

Tabela 10.6 Vrednosti simuliranih jačina apsorbovanih doza gama zračenja za uzorke opeke sa udelom 0-40% PG, za identičan hemijski sastav matrice svih uzoraka kao kod uzorka sa 0% PG i njihovo ređenjene sa vrednostima iz Tabele 10.4

% PG	D_{sim0} (nGy h ⁻¹)	D_{sim} (nGy h ⁻¹)	D_{sim0}/D_{sim}
0	45,6	45,1	1,01
5	50,9	50,1	1,02
10	51,3	58,8	0,87
15	55,2	57,6	0,96
20	56,3	55,9	1,01
25	59,6	58,2	1,02
30	65,5	64,7	1,01
40	69,9	71,2	0,98

Pošto nisu uočene značajne varijacije u vrednostima jačina apsorbovanih doza gama zračenja pri promeni sastava matrice, izvršene su dodatne simulacije sa promenom njene gustine. S obzirom da je u prethodnom delu korišćena tipična vrednost gustine opeke od 1500 kg m⁻³ dalje simulacije su izvršene za dva uzorka opeke sa udelom fosfogipsa 0% i 40% zadavanjem gustine matrice od 2000 kg m⁻³, kako bi se ispitaio uticaj promene gustine na vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja. Dobijene vrednosti su date u Tabeli 10.7. Može se uočiti da su vrednosti pri gustini matrice od 2000 kg m⁻³ više za oko 10% kod oba uzorka u odnosu na gustinu od 1500 kg m⁻³.

Objašnjenje uticaja sastava matrice i gustine opeke na jačinu apsorbovane doze je sledeće. U slučaju kada je u simulacijama menjan hemijski sastav matrice bez promene gustine, ne dolazi do

promene ukupne aktivnosti zidova u prostoriji, odnosno ne dolazi do promene broja emitovanih fotona u jedinici vremena. Menjajući relativni udeo pojedinih hemijskih elemenata u simulacijama, isključivo se utiče samo na apsorpciju emitovanih fotona u samoj matrici, što rezultuje malim varijacijama vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja.

Tabela 10.7 Poređenje vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja za uzorke opeke se udelom fosfogipsa 0% i 40%.

% PG	D_{sim} (nGy h ⁻¹) $\rho=1500$ kg m ⁻³	D_{sim} (nGy h ⁻¹) $\rho=2000$ kg m ⁻³
0	45,6	50,4
40	71,2	77,2

Međutim, kada je dolazilo do promene gustine matrice, pored uticaja na apsorpciju fotona unutar matrice (zbog promene broja centara za interakciju po jedinici zapremine), značajno se uticalo na broj emitovanih fotona u jedinici vremena, jer je dolazilo praktično do povećanja mase zidova iz kojih se vrši emisija gama fotona, pa se samim tim uticalo i na povećanje ukupne aktivnosti radionuklida u zidovima simulirane prostorije.

Kao primer razmotren je uzorak sa 0% PG sa koncentracijom aktivnosti ²²⁶Ra koja iznosi 56 Bq kg⁻¹. Ako je gustina matrice 1500 kg m⁻³, tada je masa zidova sobe iz koje se vrši emisija 19 950 kg, a ukupna aktivnost ²²⁶Ra iznosi 1 117 200 Bq, što znači da postoji 1 117 200 raspada ²²⁶Ra u jedinici vremena. To dalje znači da postoji $0,462 \times 1\ 117\ 200 = 516\ 146$ fotona energije 609,3 keV (poreklom od ²¹⁴Pb, uz pretpostavku sekularne radioaktivne ravnoteže) emitovanih u jednoj sekundi u ukupnoj masi zidova sobe.

U konkretnom slučaju, uzimajući u obzir sve fotone poreklom od ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K emitovane u jedinici vremena, odnosno deponovanu energiju u vodenom cilindru u jedinici vremena, dobija se jačina apsorbovane doze gama zračenja od 45,6 nGy h⁻¹.

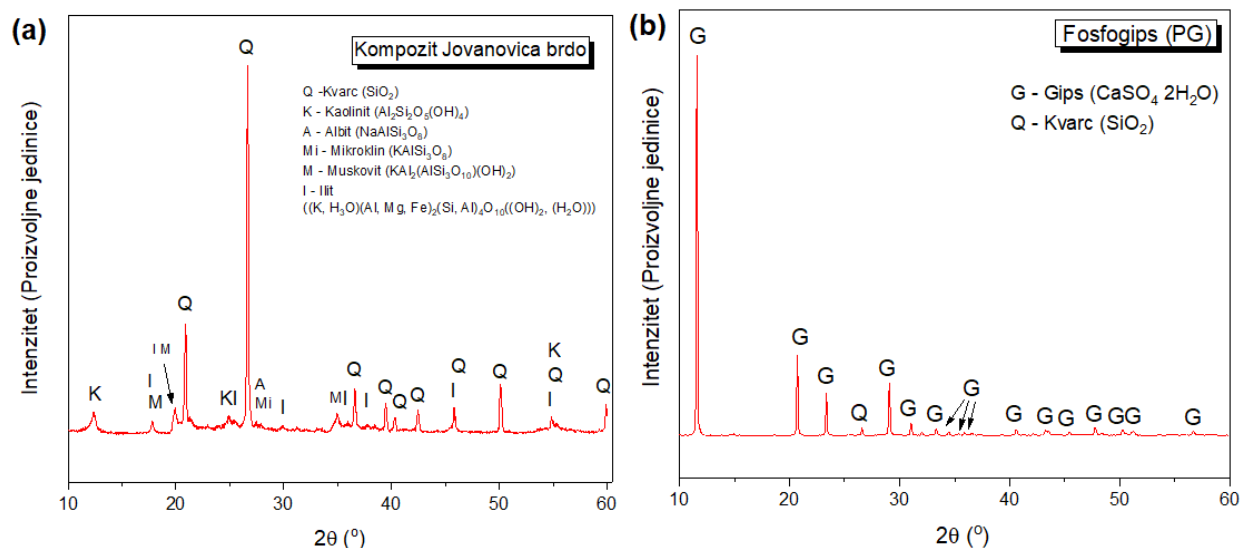
Ako je gustina matrice 2000 kg m⁻³, tada je masa zidova sobe iz koje se vrši emisija 26 600 kg, a ukupna aktivnost ²²⁶Ra iznosi 1 489 600 Bq, što znači da postoji 1 489 600 raspada ²²⁶Ra u jedinici vremena. To dalje znači da postoji $0,462 \times 1\ 489\ 600 = 688\ 195$ fotona energije 609,3 keV (poreklom od ²¹⁴Pb, uz pretpostavku sekularne radioaktivne ravnoteže) emitovanih u jednoj sekundi u ukupnoj masi zidova sobe.

Dakle, povećanje broja raspada ²²⁶Ra, odnosno broja emitovanih fotona energije 609,3 keV u jedinici vremena, u odnosu na prethodnu situaciju kada je gustina bila 1500 kg m⁻³, iznosi $\approx 33\%$. U konkretnom slučaju, uzimajući u obzir sve fotone poreklom od ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K emitovane u jedinici vremena, odnosno deponovanu energiju u vodenom cilindru u jedinici vremena, dobija se jačina apsorbovane doze gama zračenja od 50,4 nGy h⁻¹, što je za oko 10% viša jačina apsorbovane doze gama zračenja u odnosu na prethodnu situaciju kada je gustina matrice iznosila 1500 kg m⁻³.

Prema tome, ovde je presudan uticaj povećanja broja emitovanih fotona u jedinici vremena (zbog povećanja ukupne mase zidova iz koje se vrši emisija), u odnosu na smanjenje broja fotona koji u jedinici vremena uspevaju da napuste zidove, a koje se javlja zbog samoapsorpcije usled povećanja gustine. Kao rezultat ovoga, došlo je do povećanja jačine apsorbovane doze gama zračenja u drugom slučaju (pri gustini matrice od 2000 kg m⁻³), u odnosu na prvi (gustina matrice 1500 kg m⁻³).

Nadalje je razmatran mineraloški i hemijski sastav dobijenih uzoraka opekei njihovih sirovina. Mineraloška (XRD) analiza sirovinskih materijala izvršena je za uzorak gline sa površinskog kopa Jovanovića brdo (odnosno kompozita dobijenog mešavinom 4 vrste glina) i fosfogipsa. Dobijeni rezultati su prikazani na Slici 10.7. Uočene glavne mineraloške faze u uzorku gline su kvarc (SiO₂), kaolinit (Al₂Si₂O₅(OH)₄), muskovit (KAl₂(AlSi₃O₁₀(OH)₂), ilit ((K, H₃O)(Al, Mg, Fe)₂(Si,

$\text{Al}_4\text{O}_{10}((\text{OH})_2, \text{H}_2\text{O})$) i manje feldspatne faze albit ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$) i mikroklin (KAlSi_3O_8), Slika 10.7a. Glavne mineralne faze zabeležene u uzorku fosfogipsa su gips ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) i manja faza kvarca (SiO_2) u vidu propratne nečistoće.



Slika 10.7 XRD šema uzorka kompozita gline sa površinskog kopa Jovanovića brdo (a) i fosfogipsa korišćenog kao dodatka za izradu analiziranih uzoraka opeke (b).

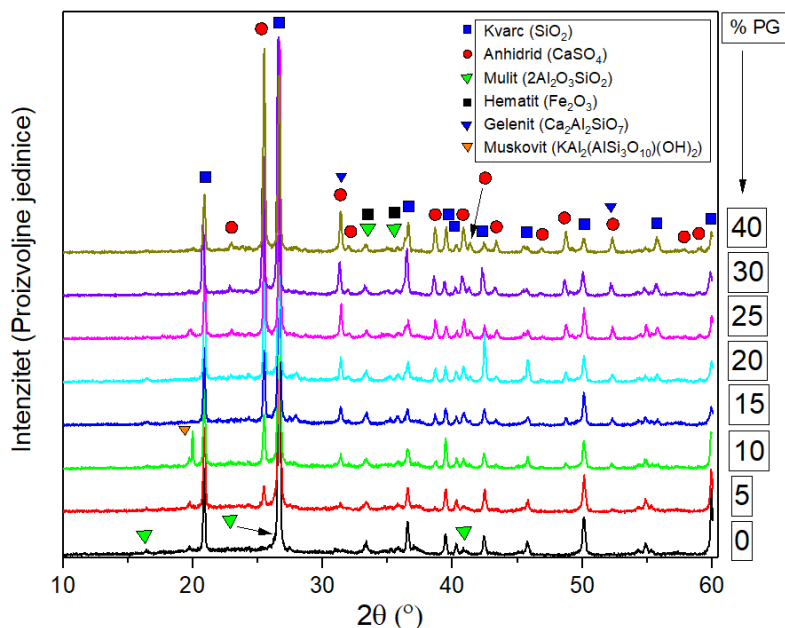
XRF analiza glavnih elemenata za sirovinske materijale prikazana je u Tabeli 10.8. Udeo elemenata većih od 1% u uzorku gline je: Si (29,42%), Al (14,45%), Fe (2,74%), K (1,82%) i Mg (1,14%). Hemijski sastav gline Jovanovića brdo je sličan glini iz Malezije (Johari et al., 2010). XRF analiza elemenata je u saglasnosti sa nađenim mineralnim fazama kvarca, ilita, muskovita i feldspata na XRD šemi. Udeo elemenata većih od 1% kod uzorka fosfogipsa je: Ca (27,58%), S (23,32%) i Si (3,47%), što je u saglasnosti sa kristalnom fazom gipsa i kvarca koje su pronađene na XRD šemi pikova. Slični rezultati hemijske karakterizacije fosfogipsa zabeleženi su i u radovima (Contreras et al., 2018; Cuadri et al., 2014; Lopez et al., 2011; Mashifana et al., 2019; Turkel and Aksin, 2012).

Tabela 10.8 XRF analiza glavnih elemenata prisutnih u glini i fosfogipsu korišćenih za pravljenje opeke u mas. %.

Uzorak	Na	Mg	Al	Si	S	K	Ca	Mn	Fe	P	Sr	Ti	Zr	Ba
Glina	0,42	1,14	14,45	29,42	0,002	1,82	0,30	0,041	2,74	-	-	-	-	-
PG	0,26	0,39	0,44	2,02	21,09	0,41	27,11	0,003	0,022	0,51	0,012	0,005	0,02	0,02

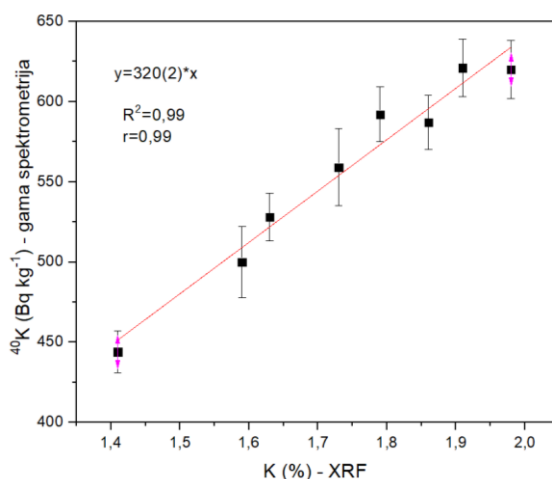
U uzorcima opeke uočene su glavne mineralne faze kvarca (SiO_2), anhidrida (CaSO_4), hematita (Fe_2O_3), gelenita ($\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$), kao i manje faze mulita ($2\text{Al}_2\text{O}_3\text{SiO}_2$) i muskovita ($\text{KAl}_2(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})(\text{OH})_2$), Slika 10.8. Zaostali muskovit u pojedinim uzorcima opeke nije uspeo da se transformiše na temperaturi od 1000 °C. Ista pojava zaostajanja muskovitne faze zabeležena je i kod drugih opekarskih gline (Castellanos et al., 2012; Johari et al., 2010). Kaolinit i ilit kao mineralne faze prisutne u najvećoj zastupljenosti u polaznoj glini nestaju u pečenoj opeci zbog razaranja njihove kristalne strukture između 450 i 900 °C (Contreras et al., 2018). Na 1000 °C javljanju se manje faze mulita usled procesa kristalizacije. Pojava mulita na nižim temperaturama od 1100 °C prijavljena je u istraživanjima (Contreras et al., 2018; Castellanos et al., 2012). Pojava manje mulitne faze na temperaturi od 1000 °C je direktna posledica prisustva Mg u ilitnoj fazi, što je potvrdila i XRF analiza

sa sadržajem Mg od 1,14%, koji je očito uticao na snižavanje temperature pojave mulitne faze. Identifikovane su i manje faze hematita čije prisustvo opada sa porastom udela fosfogipsa u uzorcima.



Slika 10.8 XRD difraktogram uzoraka opeke sa udelom fosfogipsa 0-40%.

XRF analiza glavnih elemenata u uzorcima opeke data je u Tabeli 10.3. Sa povećanjem udela fosfogipsa u uzorcima opeke, primetno je smanjenje udela Na, Mg, Al, Si, K i Fe, a porast udela elemenata S i Ca. Na Slici 10.9 data je korelacija između izmerenih vrednosti prirodnog K određenog XRF metodom i radioaktivnog ^{40}K određenog metodom gama spektrometrije. Dobijena je jaka zavisnost sa korelacionim faktorima $R^2=0,99$, $r=0,99$. Ustanovljena je linearna zavisnost oblika $y=320(2)\cdot x$, odakle sledi da 1% prirodnog K sadrži 320 ± 2 Bq kg^{-1} radioaktivnog ^{40}K , što je u saglasnosti sa ranijim istraživanjem (Pilakouta, et al., 2017). Dobijena XRF analiza je u dobroj saglasnosti sa nađenim XRD mineralnim komponentama, Slika 10.8, Tabela 10.3.



Slika 10.9 Korelacija između udela prirodnog K izmerenog XRF metodom i radioaktivnog ^{40}K izmerenog metodom gama spektrometrije.

Razgradnja gipsa obuhvata dehidraciju na nižim temperaturama i emisiju SO_2 na višim temperaturama (Chandara et al., 2009; Cuadri et al., 2014; Yan et al., 2015). Kako je zabeleženo na temperaturama 90-170 °C se najpre dešava dehidracija minerala gipsa ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) i prelaz u hemihidratnu formu $\text{CaSO}_4 \cdot 0,5\text{H}_2\text{O}$ – mineral basanit (β -hemihidrat) (Camarini and De Milito, 2011; Cuadri et al., 2014):



Dok se prelaz u anhidrovanu (bezvodnu) formu (CaSO_4 -Anhidrid II) obično odvija na temperaturama iznad 300 °C (Camarini and De Milito, 2011; Contreras et al., 2018):



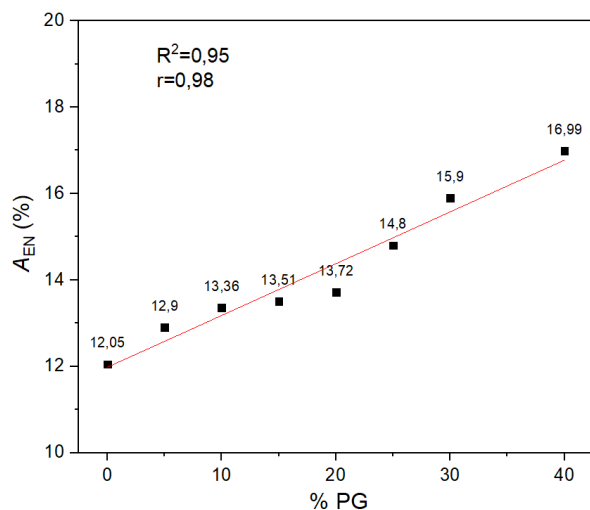
Imajući u vidu, prema ranijim istraživanjima, da se razgradnja fosfogipsa (CaSO_4) i emisija SO_2 dešava na temperaturama višim od 1200 °C (Contreras et al., 2018; Yan et al., 2015), prema hemijskoj reakciji (10.5):



Prisustvo velikog udela Al_2O_3 u samoj glini imalo je uticaj da se delimična razgradnja CaSO_4 odigra na temperaturi nižoj od 1000 °C, što je zabeleženo i u studiji (Yan et al., 2015). Nastali slobodni CaO u reakciji (10.5) dalje je reagovao sa amorfnom smešom $\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$ (Trindade et al., 2009) i na taj način je došlo do formiranja minerala gelenita ($\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$), između 900 i 1000 °C, prema reakciji (10.6):



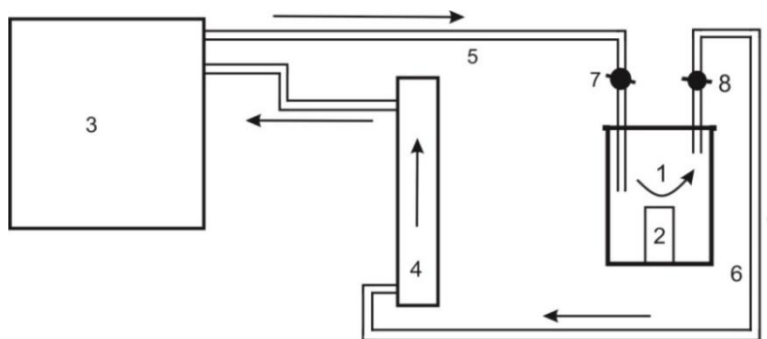
U poređenju sa glinom koja u svom sastavu sadrži CaCO_3 , u glini sa značajnim udelom CaSO_4 nije zabeležen naročit afinitet ka razgradnji ovog minerala na temperaturi od 1000 °C, za razliku od karbonatnih glina koje mogu nagraditi volastonit (CaSiO_3), larnit (Ca_2SiO_4) i druge mineralne faze (Trindade et al., 2009), anhidrovani gips je u većem delu zadržao svoj kristalni oblik.



Slika 10.10 Koeficijent apsorpcije vode (A_{EN}) određen prema SRPS EN 771-1 metodi uzoraka opeke sa različitim udelom fosfogipsa (0 – 40%).

Prema metodi (SRPS EN 771-1, 2016) određeni su koeficijenti apsorpcije vode (A_{EN}) za svih 8 analiziranih uzoraka. Dobijene vrednosti su prikazane na Slici 10.10 i kreću se u intervalu od 12,05%, za uzorak sa 0% PG, do 16,99%, za uzorak sa 40% PG. Uočeno je povećanje koeficijenta apsorpcije vode sa povećanjem udela fosfogipsa u uzorcima opeke. Poređenjem uzoraka sa udelom 0% PG i 40% PG uočava se povećanje u apsorpciji vode za oko 5% kod uzorka sa 40% PG. Ovo je direktna posledica veće higroskopnosti anhidrovanog gipsa (CaSO_4) od ostalih mineralnih komponenti prisutnih u uzorcima opeke. Dobijeno je linearno povećanje apsorpcije vode sa porastom udela anhidrovanog gipsa u uzorcima ($R^2=0,95$, $r=0,98$).

Dobijene vrednosti koeficijenta apsorpcije su niže u odnosu na one dobijene u radu (Turkel and Aksin, 2012) za slične uzorke opeke. Ovo je direktna posledica drugačijeg režima pečenja uzoraka, što se odnosi pre svega na vremensku razliku. Dobijene vrednosti koeficijenta apsorpcije vode su niže u odnosu na ostale cigle koje ne prolaze proces pečenja koje pored fosfogipsa sadrže pepeo, kreč i cement (Kumar, 2002; Naik et al., 2014). Povećanje koeficijenta apsorpcije vode sa povećanjem udela vode je zabeleženo i u radu autora (Ajam et al., 2009), gde su zabeležene niže vrednosti koeficijenta apsorpcije vode (udeo 40% PG u opeci koeficijent apsorpcije vode je iznosio 13,4%).

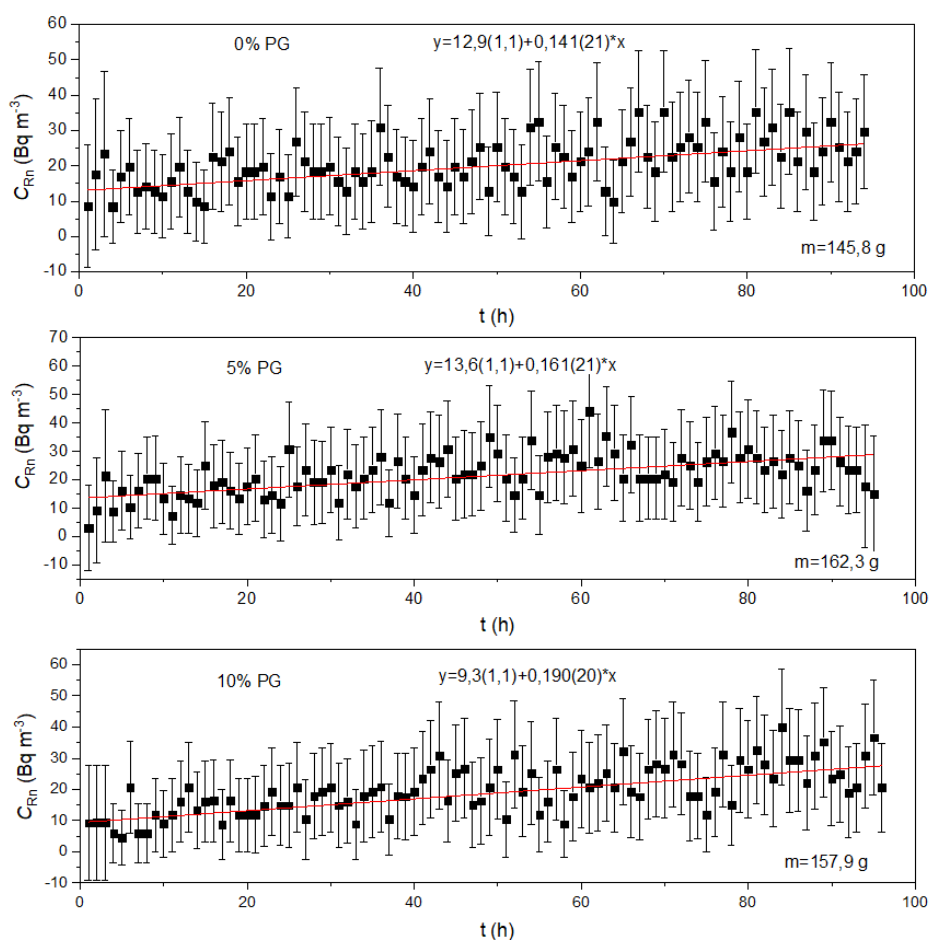


Slika 10.11 Sistem za merenje površinske ekshalacije radona iz uzoraka opeke sa različitim udelom fosfogipsa: (1) staklena merna komora zapremine 4,25 l; (2) uzorak opeke sa određenim udelom fosfogipsa (0-40%); (3) aktivni uređaj RAD7; (4) apsorber vlage iz sistema; (5) i (6) cevi sa naznačenim smerom protoka radona; (7) i (8) slavine za regulaciju i puštanje radonskog gasa u sistem.

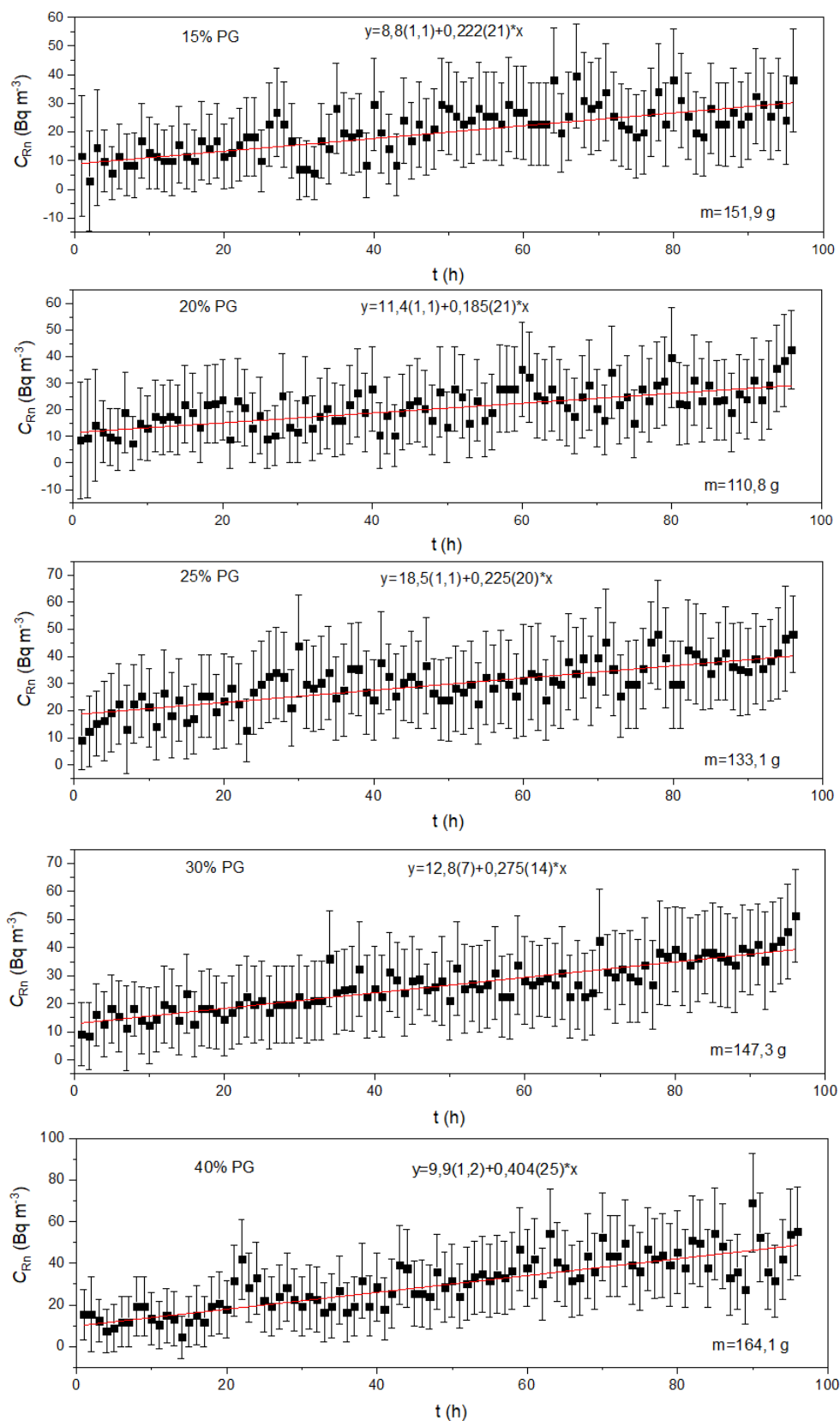
Za sve analizirane uzorke opeke sa različitim udelom fosfogipsa izvršena je radiološka karakterizacija i u pogledu ekshalacije radona iz dobijenih uzoraka sa različitim udelom fosfogipsa, prema eksperimentalnoj postavci prikazanoj na Slici 10.11 koja je korišćena i u poglavlju 8.2. Vreme merenja površinske ekshalacije radona iz svih 8 analiziranih uzoraka opeke izvršeno je aktivnim uređajem RAD7 za vreme od 96 h (4 dana) u ciklusima po 1 h. Uzorci dobijeni nakon pečenja su korišćeni za merenja ekshalacije radona, bez drobljenja i sitnjenja. Kako bi se minimizirali efekti povratne difuzije radona (Samuelsson, 1990; Tuccimei et al., 2006) odabrana je zapremina merne komore od 4,25 l, čime je zadovoljen uslov da je zapremina uzorka više od 10 puta manja od efektivne zapremine mernog sistema. Efektivna zapremina mernog sistema je iznosila oko 5,15 l.

Dobijeni rezultati ekshalacije radona su prikazani na Slikama 10.12 i 10.13. Mase uzoraka opeke (M), površine uzoraka (S), procenjene vrednosti početne koncentracije aktivnosti radona u mernoj komori (C_0), koeficijenti pravca nakon fitovanja linearnih funkcija ekshalacije (k), brzine površinskih ekshalacija radona (E_s) i vrednosti koeficijenta emanacije (ε) za 8 analiziranih uzoraka opeke dati su u Tabeli 10.9.

Na osnovu dobijenih rezultata se može videti da kod svih uzoraka sa porastom koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima nije zabeležen drastičan porast koncentracije radona za period merenja od 96 h, te su dobijeni rezultati fitovani linearnim funkcijama prema relaciji (3.35). Linearnim fitom efekti povratne difuzije i curenja radona se mogu zanemariti (Gutierrez-Alvarez et al., 2020; ISO, 11665-7, 2012). Usled očito niskih koeficijenata emanacije radona, a relativno visokih koncentracija ^{226}Ra u uzorcima, sam tehnološki postupak dobijanja uzoraka opeke je uticao na održanje linearne ekshalacije radona za čitavih 96 h merenja. Dobijene vrednosti koeficijenta pravca linearnih funkcija ekshalacije (k) prikazane su u Tabeli 10.9 iz kojih je vršena dalja procena brzine površinske ekshalacije radona (E_S) iz uzoraka prema relaciji (3.35). Dobijeni rezultati brzina površinskih ekshalacija radona se kreću u intervalu od $63 \pm 9 \text{ mBq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (za uzorak sa 0% PG) do $150 \pm 9 \text{ mBq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (uzorak sa udelom 40% PG) i drastično su niži (oko 3 reda veličine) od brzine površinske ekshalacije izmerene za sam fosfogips u ranijim israživanjima (Gutierrez-Alvarez et al., 2020; Hilal et al., 2015; Nisti et al., 2014). Na osnovu poređenja sa drugim studijama, manja brzina površinske ekshalacije radona iz fosfogipsa ugrađenog u opeku u odnosu na brzinu ekshalacije iz samog fosfogipsa je od presudnog značaja za korišćenje ovog otpada kao dodatka u građevinskim materijalima. Dobijene vrednosti brzine površinske ekshalacije su više u poređenju sa vrednostima za druge građevinske materijale (Imme et al., 2014), što je direktna posledica višeg sadržaja ^{226}Ra u uzorcima opeke.



Slika 10.12 Rezultati merenja ekshalacije radona iz uzoraka sa udelom 0, 5 i 10% PG aktivnim uređajem RAD7 za vreme od 96 h u ciklusima po 1 h.



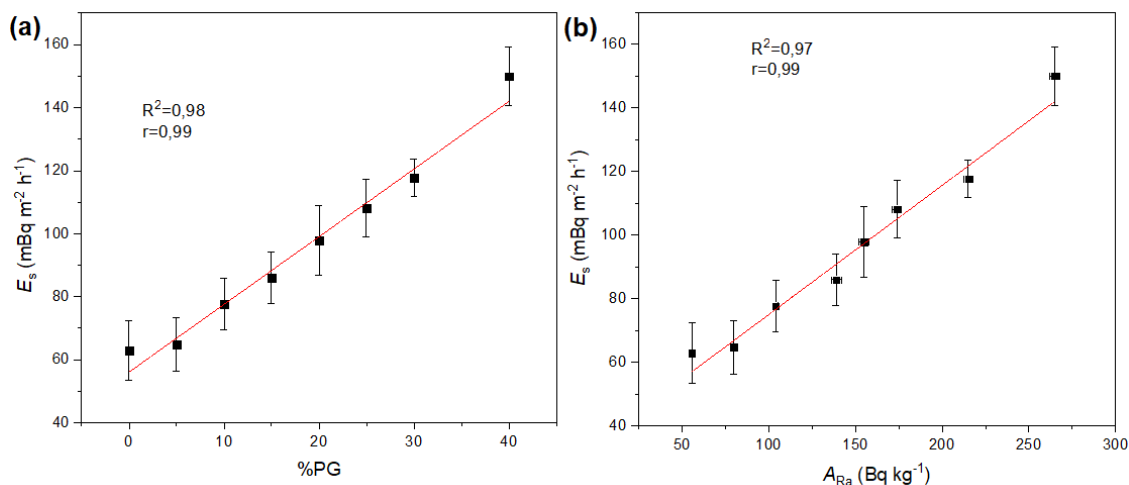
Slika 10.13 Rezultati merenja ekshalacije radona iz uzoraka sa udelom 15- 40% PG aktivnim uređajem RAD7 za vreme od 96 h u ciklusima po 1 h.

Tabela 10.9 Mase (M) i površine (S) uzoraka čija je ekshalacija radona merena, kao i vrednosti parametara nakon lineranog fita eksperimentalnih rezultata: početna koncentracija radona u komori (C_0), koeficijent pravca prave (k) i vrednosti površinske ekshalacije radona (E_s) za sve analizirane uzorke opeke.

% PG u uzorku	M (g)	$S \times 10^{-3}$ (m ²)	C_0 (Bq m ⁻³)	k (Bq m ⁻³ h ⁻¹)	E_s (mBq m ⁻² h ⁻¹)	ε (%)
0	145,80±0,05	11,55	12,9±1,1	0,141±0,021	63±9	1,18±0,18
5	162,30±0,05	12,80	13,6±1,1	0,161±0,021	65±8	0,84±0,12
10	157,90±0,05	12,59	9,3±1,1	0,190±0,020	78±8	0,78±0,09
15	151,90±0,05	13,32	8,8±1,1	0,222±0,021	86±8	0,71±0,08
20	110,80±0,05	9,79	11,4±1,1	0,185±0,021	98±11	0,73±0,09
25	133,10±0,05	10,75	18,5±1,1	0,225±0,020	108±9	0,66±0,07
30	147,30±0,05	12,06	12,8±0,7	0,275±0,014	118±6	0,59±0,04
40	164,10±0,05	13,87	9,9±1,2	0,404±0,025	150±9	0,63±0,05

Izmerene vrednosti brzina površinskih ekshalacija radona za uzorke opeke su uporedive sa rezultatima iz drugih istraživanja upotrebe fosfogipsa kao dodatka materijalima za korišćenje u građevinarstvu (Campos et al., 2017; Szajerski et al., 2019).

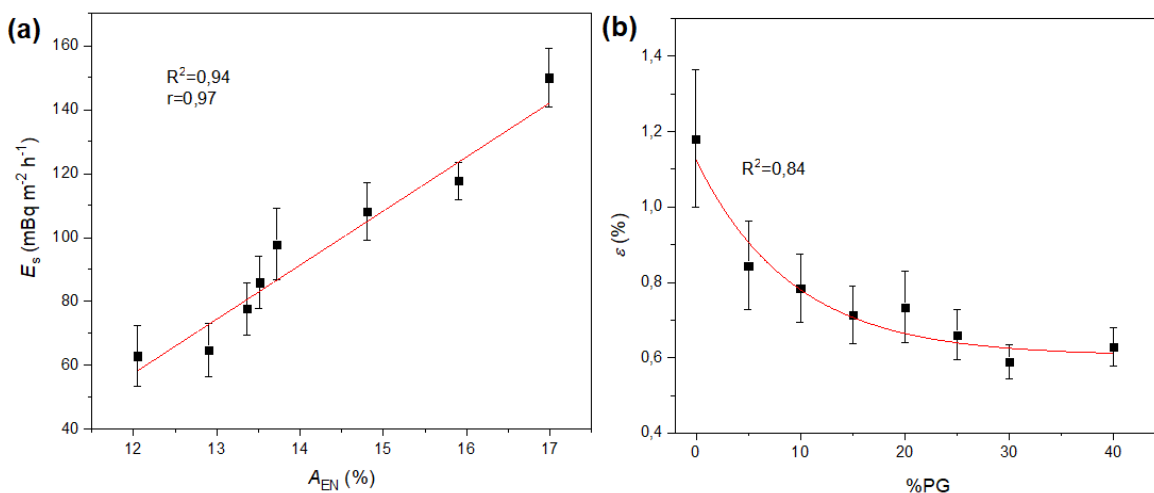
Kao što je navedeno u istraživanju u kom je analizirano recikliranje fosfogipsa u građevinskim ciglama i pločama (Campos et al., 2017), brzina površinske ekshalacije zavisi u mnogome od gustine materijala, poroznosti, kao i načina proizvodnje, što se može zaključiti i u ovom istraživanju. Može se reći da je nakon procesa pečenja na 1000 °C gips popunio najsitnije pore u materijalu i bio zatopljen u glinenu matricu i zajedno sa njom načinio stabilan materijal koji karakteriše relativno niska brzina površinske ekshalacije radona, ako se pogleda npr. uzorak sa udelom 40% PG čija je koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra 265 Bq kg⁻¹. Ugrađivanjem fosfogipsa u najsitnije pore materijala smanjena je mogućnost emanacije radona, kao i njegova difuzija do površine, što je praćeno niskom površinskom ekshalacijom radona u poređenju sa ekshalacijom radona iz samog fosfogipsa, što daje povoljnost za upotrebu materijala u građevinarstvu. Slični zaključci su izvedeni i kod uzoraka keramičkih pločica gde je fosfogips sa udelom do 10% dodavan kao aditiv i imao je pozitivan uticaj na smanjenje poroznosti materijala, što je posledica ugrađivanja najsitnijih čestica fosfogipsa u najsitnije pore (Contreras et al., 2018).



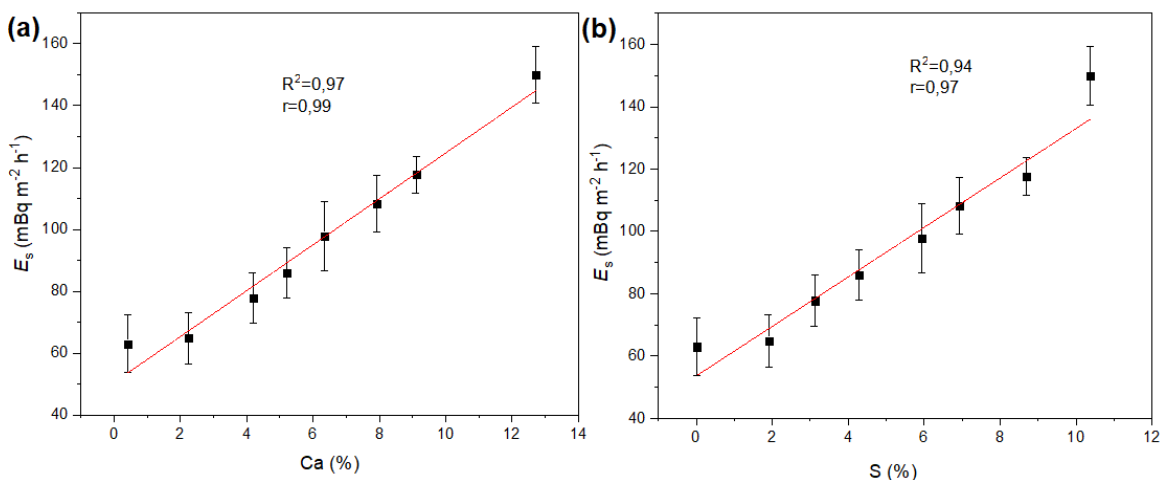
Slika 10.14 Korelacija između brzine površinske ekshalacije radona (E_s), masenog udela fosfogipsa (a) i koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra (b) u analiziranim uzorcima opeke.

Na Slici 10.14 prikazane su korelacije između brzine površinske ekshalacije radona (E_s) i udela fosfogipsa u uzorcima opeke (Slika 10.14a) i koncentracije aktivnosti ^{226}Ra (Slika 10.14b). Uspostavljene su jake korelacije koje karakteriše linearan porast brzine površinske ekshalacije radona, kako sa porastom udela fosfogipsa ($R^2=0,98$; $r=0,99$), tako i sa porastom koncentracije aktivnosti ^{226}Ra ($R^2=0,97$; $r=0,99$). Na Slici 10.15a prikazana je korelacija između brzine površinske ekshalacije (E_s) i koeficijenta apsorpcije vode (A_{EN}). Uočena je jaka korelacija što potvrđuju i vrednosti koeficijenata korelacije ($R^2=0,94$; $r=0,97$).

Na osnovu određenih vrednosti brzina površinskih ekshalacija, i prema relaciji (3.39), određene su vrednosti koeficijenata emanacije radona (ε). Dobijene su vrednosti u rasponu od $0,59\pm 0,04$ % za uzorak sa 30% PG do $1,18\pm 0,18$ % za uzorak sa 0% PG. Dobijene vrednosti su ispod tipičnih vrednosti za građevinske materijale (1 – 30) % (Bikit et al., 2011). Na Slici 10.15b dobijena je jaka korelacija smanjenja koeficijenta emanacije sa povećanjem udela fosfogipsa u uzorku ($R^2=0,94$; $r=0,97$). Smanjenje koeficijenta emanacije se može dovesti u vezu sa povećanjem sadržaja ^{226}Ra u uzorcima opeke, što je direktna posledica teorije emanacije, prema relaciji (3.39).



Slika 10.15 Korelacija između brzine površinske ekshalacije radona (E_s) i koeficijenta apsorpcije vode (A_{EN}) (a) i koeficijenta emanacije radona (ε) sa udelom fosfogipsa u opeci (b).



Slika 10.16 Korelacije između brzine površinske ekshalacije radona (E_s) i udela Ca (a) i S (b) u uzorcima opeke.

Tabela 10.10 Vrednosti Pirosonovih koeficijeneta korelacije (r) između brzine površinske ekshalacije radona (E_s) i masenog udela analiziranih elemenata XRF metodom.

	Na	Mg	Al	Si	S	K	Ca	Mn	Fe
E_s	-0,64	-0,92	-0,98	-0,98	0,97	-0,97	0,99	-0,79	-0,98

Korelacije između brzine površinske ekshalacije radona i sadržaja Ca i S u uzorcima prikazana je na Slici 10.16. Dobijene su jake korelacije sa korelacionim faktorima $R^2=0,97$; $r=0,99$ i $R^2=0,94$; $r=0,97$ za Ca i S, respektivno. Vrednosti Pirosonovih koeficijeneta (r) za uspostavljene korelacije između brzine ekshalacije radona i ostalih analiziranih elemenata metodom XRF-a, date su u Tabeli 10.10. Može se videti da su između brzine površinske ekshalacije radona iz uzoraka opeke i Mg, Al, Si, S, K, Ca i Fe, uspostavljene jake, dok su sa Na i Mn uspostavljene umerena i dobra korelacija, respektivno. Iz ovoga se može zaključiti da brzina površinske ekshalacije izrazito zavisi od hemijskog sastava materijala.

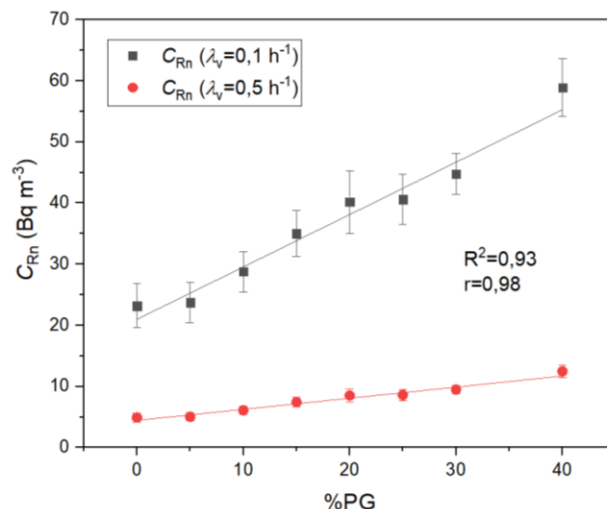
Na osnovu procenjenih vrednosti koeficijeneta emanacije radona za 8 analiziranih uzoraka opeke i prema relaciji (3.11) procenjena je brzina ekshalacije radona iz zida debljine 25 cm sačinjenog od ovih materijala, uz pretpostavku da je dužina difuzionog puta radona veća od debljine materijala, što je za opeku oko 40 cm, sa tipičnom vrednošću difuzionog koeficijenta oko $0,4 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (Keller et al., 2001; Soniya et al., 2020). Dobijene vrednosti date su u Tabeli 10.11 i kreću se u intervalu od $1,25 \pm 0,19 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ za uzorak sa 0% PG do $3,17 \pm 0,25 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ za uzorak sa 40% PG. Dobijene vrednosti brzine površinske ekshalacije su uporedive sa vrednostima za gipsane ploče od fosfogipsa analizirane u istraživanju (Lopez et al., 2011).

Tabela 10.11 Vrednosti brzina površinskih ekshalacija radona (E_s), unutrašnjih koncentracija radona (C_{Rn}) i godišnjih efektivnih doza od udisanja radona (D_{Rn}) procenjene za standardnu prostoriju u kojoj su zidovi izgrađenim od opeke sa PG debljine 25 cm, pri slaboj i normalnoj provetrenosti prostorije.

% PG u uzorku	E_s ($\text{Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$)	C_{Rn} (Bq m^{-3})		D_{Rn} (mSv y^{-1})	
		$\lambda_v=0,1 \text{ h}^{-1}$	$\lambda_v=0,5 \text{ h}^{-1}$	$\lambda_v=0,1 \text{ h}^{-1}$	$\lambda_v=0,5 \text{ h}^{-1}$
0	$1,25 \pm 0,19$	$23,2 \pm 3,6$	$4,9 \pm 0,8$	$0,43 \pm 0,07$	$0,092 \pm 0,014$
5	$1,28 \pm 0,18$	$23,7 \pm 3,3$	$5,0 \pm 0,7$	$0,45 \pm 0,06$	$0,094 \pm 0,013$
10	$1,55 \pm 0,18$	$28,8 \pm 3,3$	$6,1 \pm 0,7$	$0,54 \pm 0,06$	$0,115 \pm 0,013$
15	$1,88 \pm 0,20$	$35,0 \pm 3,8$	$7,4 \pm 0,8$	$0,66 \pm 0,07$	$0,139 \pm 0,015$
20	$2,16 \pm 0,28$	$40,2 \pm 5,1$	$8,5 \pm 1,1$	$0,75 \pm 0,10$	$0,160 \pm 0,020$
25	$2,18 \pm 0,22$	$40,6 \pm 4,1$	$8,6 \pm 0,9$	$0,76 \pm 0,08$	$0,161 \pm 0,016$
30	$2,41 \pm 0,18$	$44,8 \pm 3,4$	$9,5 \pm 0,7$	$0,84 \pm 0,06$	$0,178 \pm 0,013$
40	$3,17 \pm 0,25$	$58,9 \pm 4,7$	$12,5 \pm 1,0$	$1,10 \pm 0,09$	$0,234 \pm 0,019$

Korišćenjem dobijenih vrednosti brzina površinskih ekshalacija iz zidova debljine 25 cm, procenjene su unutrašnje koncentracije radona za prostoriju standardnih dimenzija $4 \text{ m} \times 5 \text{ m} \times 2,8 \text{ m}$, pri slaboj ($\lambda_v=0,1 \text{ h}^{-1}$) i normalnoj provetrenosti ($\lambda_v=0,5 \text{ h}^{-1}$) u prostoriji. Rezultati su prikazani u Tabeli 10.11. Za slabu provetrenost u prostoriji vrednosti koncentracija aktivnosti radona se kreću u intervalu od $23,2 \pm 3,6 \text{ Bq m}^{-3}$ za uzorak sa 0% PG do $58,9 \pm 4,7 \text{ Bq m}^{-3}$ za uzorak sa 40% PG. Za normalnu provetrenost u prostoriji procenjene vrednosti su u intervalu od $4,9 \pm 0,8 \text{ Bq m}^{-3}$ za uzorak sa 0% PG do $12,5 \pm 1,0 \text{ Bq m}^{-3}$ za uzorak sa 40% PG. Sve procenjene vrednosti unutrašnjih koncentracija aktivnosti radona, kako za lošu, tako i za normalnu provetrenost u prostoriji su ispod donje preporučene granice od 100 Bq m^{-3} (EU, 2014; WHO, 2009). Dobijene vrednosti unutrašnjih koncentracija radona su uporedive sa istraživanjem (Ajam et al., 2019) u kojem je takođe razmatrano korišćenje fosfogipsa u proizvodnji opeke, gde su izmerene vrednosti ispod 50 Bq m^{-3} . Dobijene vrednosti unutrašnjih koncentracija aktivnosti radona su uporedive sa vrednostima za druge načine recikliranja fosfogipsa

kao građevinskog materijala u proizvodnji npr. keramičkih pločica i gipsanih ploča i betonskih matrica (Contreras et al., 2018; Lopez et al., 2011; Maduar et al., 2011; Szajerski et al., 2019). Na Slici 10.17 prikazane su korelacije između procenjenih vrednosti koncentracija aktivnosti radona i udela fosfogipsa u uzorcima opeke. Dobijene su jake korelacije što potvrđuju i vrednosti korelacionih faktora $R^2=0,93$; $r=0,98$.



Slika 10.17 Korelacije između unutrašnjih koncentracija radona i udela fosfogipsa u uzorcima opeke za lošu ($\lambda_v=0,1 \text{ h}^{-1}$) i normalnu ($\lambda_v=0,5 \text{ h}^{-1}$) provestrenost u prostoriji.

Na osnovu vrednosti unutrašnjih koncentracija radona u prostoriji standardnih dimenzija procenjene su godišnje efektivne doze za izloženost radonu (D_{Rn}) od 7000 h tokom godine u prostoriji čiji su zidovi izgrađeni od analiziranih uzoraka opeke. Procenjene vrednosti su prikazane u Tabeli 10.11. Vrednosti dobijene pri lošoj provestrenosti prostorije se kreću u intervalu od $0,43\pm0,07 \text{ mSv y}^{-1}$ za uzorak sa 0% PG do $1,10\pm0,09 \text{ mSv y}^{-1}$ za uzorak sa 40% PG. Procenjene vrednosti za normalnu provestrenost u prostoriji se kreću u rasponu od $0,092\pm0,014 \text{ mSv y}^{-1}$ za uzorak sa 0% PG do $0,234\pm0,019 \text{ mSv y}^{-1}$ za uzorak sa 40% PG. Uzimajući u obzir godišnje efektivne doze gama zračenja procenjene metodom Monte Karlo simulacija i vrednosti procenjene za izloženost radonu, može se uočiti da ukupne vrednosti ne prelaze prosečnu izloženost za izloženost od prirodnih izvora od $2,4 \text{ mSv y}^{-1}$ (UNSCEAR, 2000).

Na osnovu svega analiziranog se može zaključiti da upotreba fosfogipsa u proizvodnji opeke sa udelom fosfogipsa do 40% ne daje značajnu i prekomernu izloženost ljudi zračenju u zatvorenom prostoru, kako u pogledu gama zračenja, tako i u pogledu izloženosti radonu. Sve dobijene vrednosti su oko ili ispod preporučenih vrednosti za građevinske materijale. Dobijeni rezultati su uporedivi sa drugim sličnim studijama što potvrđuje tačnost dobijenih rezultata. Iz ovoga se može zaključiti da upotreba fosfogipsa sa sadržajem ^{226}Ra oko 500 Bq kg^{-1} u proizvodnji opeke ne predstavlja naročitu radijacionu opasnost za izloženost ljudi jer je sam tehnološki postupak proizvodnje, odnosno pečenja, doveo do minimiziranja radijacionih efekata, pre svega emanacije radona iz uzoraka.

Dakle, prema dobijenim rezultatima karakterizacije uzoraka opeke može se zaključiti da ovakav način iskorišćavanja fosfogipsa daje pozitivne efekte. Ovakvim načinom iskorišćenja otpadnog fosfogipsa smanjile bi se velike količine otpada na deponijama u blizini reka i mora, i smanjili neželjeni efekti kontaminacije životne sredine, a dobila bi se i velika ekonomska korist.

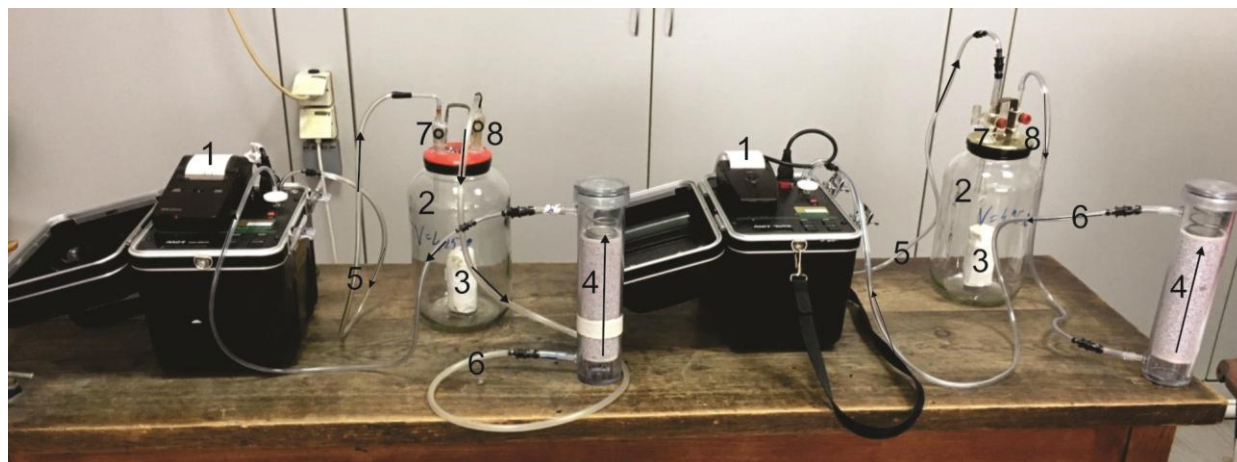
Jedna od mana ovakvog načina dobijanja opeke jeste emisija SO_2 prilikom pečenja opeke na visokim temperaturama oko $1000 \text{ }^\circ\text{C}$, što može biti zagađivač životne sredine, o čemu treba dodatno razmisliti, ako je reč o obimnijoj proizvodnji opeke na ovakav način.

11 Varijacije koeficijenta emanacije radona

Kao što je u uvodnom delu ove studije rečeno određivanje koeficijenta emanacije radona je važno za svaki građevinski materijal. Ova veličina je veoma bitna za karakterizaciju građevinskih materijala, naročito onih koji se koriste u enterijeru za pokrivanje zidova. S obzirom da pojedini autori za njegovo određivanje koriste manje, a drugi veće zapremine mernih komora, ovaj deo studije razmatra i diskutuje uticaj zapremina mernih komora na vrednosti koeficijenta emanacije, kao i propratne efekte koji dovode do varijacija njegovih vrednosti: efektivne konstante raspada radona i brzine ekshalacije radona.

Tabela 11.1 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K i procenjeni gama indeksi (I_γ), jačine apsorbovanih doza (D) i godišnje efektivne doze (E) za PG, NG i smeše NG i PG uzoraka.

Oznaka uzorka	Koncentracija aktivnosti (Bq kg^{-1})			I_γ	D (nGy h^{-1})	E (mSv y^{-1})
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K			
PG	612±11	5,4±0,5	95±7	2,10±0,04	570±11	2,80±0,06
PG1	720±8	8,2±0,6	110±8	2,48±0,03	672±9	3,30±0,05
PG2	528±23	10,02±1,1	193±7	1,87±0,08	498±21	2,44±0,10
PG3	715±32	2,5±0,3	72±6	2,42±0,11	661±30	3,24±0,15
NG1	9,2±0,3	2,8±0,2	168±14	0,101±0,005	12,9±0,4	0,063±0,002
NG1PG	239±5	3,5±0,4	135±7	0,859±0,014	225±4	1,103±0,003
NG1PG2	275±3	6,1±0,6	105±9	0,982±0,011	261±3	1,28±0,03



Slika 11.1 (1) Aktivni uređaji RAD7, (2) komore od debelog stakla sa metalnim zatvaračem, (3) uzorci, (4) apsorberi vlage u sistemu (CaSO_4), (5) i (6) plastične cevi, (7) i (8) slavine za puštanje radonskog gasa iz komore u merni sistem. Smer kruženja radonskog gasa kroz sistem obilježen je strelicama.

U tu svrhu za razmatranje varijacija vrednosti emanacionog koeficijenta korišćeni su uzorci fosfogipsa (PG), prirodnog gipsa (NG), mešavina prirodnog gipsa i fosfogipsa (NGPG). Za istraživanje analizirani su kako praškasti (P) tako i uzorci u čvrstom stanju (S). Svi uzorci su sušeni na temperaturi od $105\text{ }^\circ\text{C}$, kako bi se eliminisao uticaj vlage na merenje, nakon čega su sprášeni u avanu do finog praha. Praškasti uzorci su upakovani u mikro fiber filter papir u cilindričnoj geometriji dimenzija 5 cm

u prečniku i 10 cm visine (Narloch et al., 2019), kao u poglavlju 8.2, dok su uzorci u čvrstom stanju izliveni u istim dimenzijama (jedan uzorak prirodnog gipsa – NG1 i jedan uzorak sa 50% fosfogipsa – NG1PG). Svi uzorci fosfogipsa su poreklom iz Srbije, dok je uzorak prirodnog gipsa (NG1) poreklom iz Bosne i Hercegovine.



Slika 11.2 (1) Aktivni uređaj RTM 1688-2, (2) komora od debelog pleksiglasa zapremine 30 l, (3) uzorak, (4) i (5) slavine za puštanje radonskog gasa u merni sistem, (6) i (7) plastične cevi. Smer kruženja radonskog gasa kroz sistem obilježen je strelicama.

Spisak korišćenih uzoraka, izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , procenjene vrednosti gama indeksa, jačine apsorbovane doze gama zračenja i godišnje efektivne doze date su u Tabeli 11.1. Sve izračunate vrednosti za procenu radijacionog rizika, za uzorke fosfogipsa i mešavine prirodnog gipsa i fosfogipsa prelaze preporučene vrednosti gama indeksa $I_{\gamma} \leq 1$ (UNSCEAR, 2000), prosečnu vrednost apsorbovane doze od 55 nGy h^{-1} (UNSCEAR, 2008) kao i godišnje efektivne doze od 1 mSv (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018).

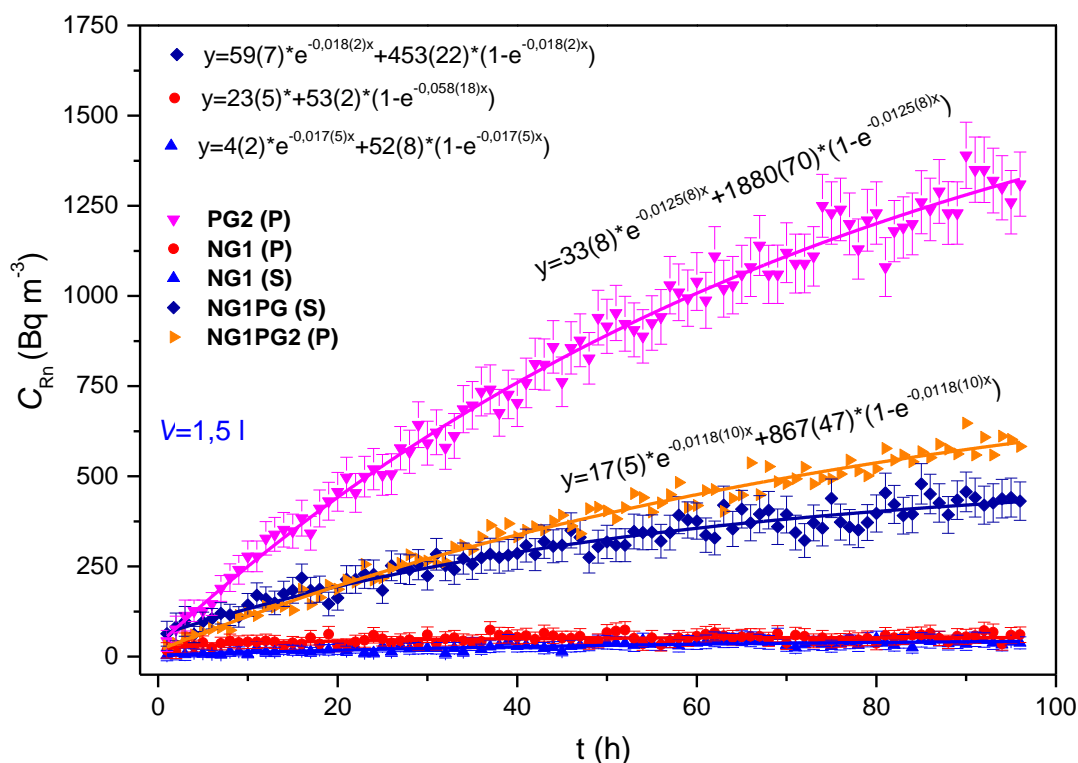
Tabela 11.2 Poređenje vrednosti efektivnih zapremina mernih sistema za uređaje sa 4 merne komore različitih zapremina sa aktivnim uređajima RTM 1688-2 i RAD7.

Uređaj	$V_{\text{eff}} (\text{m}^3) \times 10^{-3}$			
	1,5 l	2,5 l	4,25 l	30 l
RTM 1688-2	1,55	2,55	4,30	30,05
RAD7	2,65	3,65	5,39	31,15

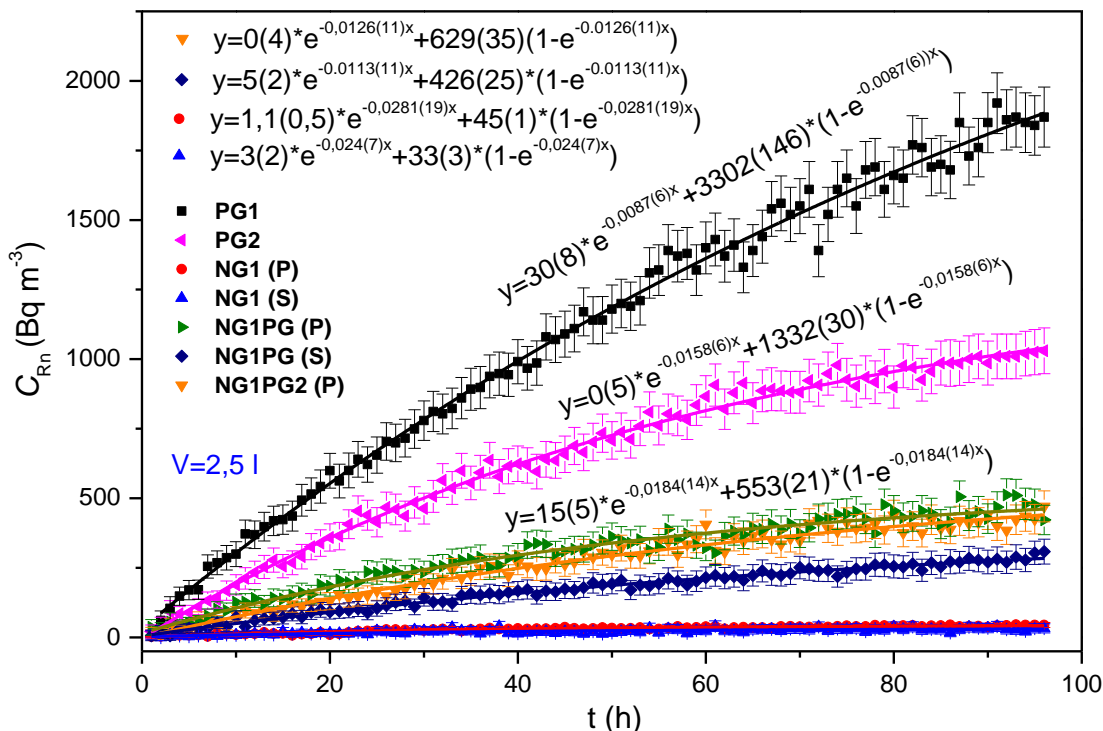
Da bi se odredio koeficijent emanacije radona za sve analizirane uzorke prirodnog gipsa i fosfogipsa iz Tabele 11.1 pema relaciji 3.38 (poglavlje 3.2.2), korišćena je eksperimentalna postavka kao i u poglavlju 8.2, ali ovoga puta sa 2 aktivna uređaja RAD7 istih karakteristika. Dobijeni rezultati su upoređivani sa rezultatima dobijenim aktivnim uređajem RTM 1688-2. Eksperimentalne postavke su prikazane na Slikama 11.1 i 11.2. Merenja emanacije radona su izvedena u komorama različitih zapremina 1,5 l; 2,5 l; 4,25 l i 30 l. Merne komore zapremina, 1,5 l, 2,5 l i 4,25 l izgrađene od debelog stakla sa metalnim zatvaračem koji su tokom merenja akumulacije radona bile zaprivene teflon i izolir

trakom kako bi se minimiziralo curenje radona. Konstruisane su po dve merne komore ovih zapremina, za dva RAD7 uređaja, Slika 11.1. Merna komora zapremine 30 l izgrađena je od debelog pleksiglasa. Vrednosti efektivnih zapremina mernih sistema za različite komore koje uračunavaju ukupnu aktivnu zapreminu vazduha u sistemu (aktivna zapremina uređaja+merna komora+plastične cevi) uz oduzimanje zapremine uzorka koja je iznosila 0,196 l, date su u Tabeli 11.2. Razlika među efektvnim zapreminama za ova dva merna sistema za iste zapremine merne komore iznosi 1,1 l, što je direktna posledica konstrukcije samih uređaja, što podrazumeva razlike u samim aktivnim komorama, kao i zapremina dodatnih cevi. Aktivne zapremine RAD7 i RTM 1688-2 uređaja iznose 0,7 l i 0,25 l, respektivno (Manual, Sarad, 2019; Manual RAD7, 2019). RAD7 uređaj sadrži i cev za apsorpciju vlage iz sistema, procena je da je zapremina vazduha u njoj oko 0,6 l. Sve korišćene merne komore su u cilindričnoj geometriji, osim komore zapremine 30l, koja je kubne geometrije, Slika 11.1 i 11.2. Merenje emanacije radona iz uzoraka uređajem RAD7 je vršeno 4 dana (96 h) u ciklusima po 1 h, dok su vremena merenja uređajem RTM 1688-2 varirala od 7 do 10 dana u ciklusima po 1h. Sva merenja emanacije radona iz ovih uzoraka su započeta u martu 2019., a završena u maju 2020.

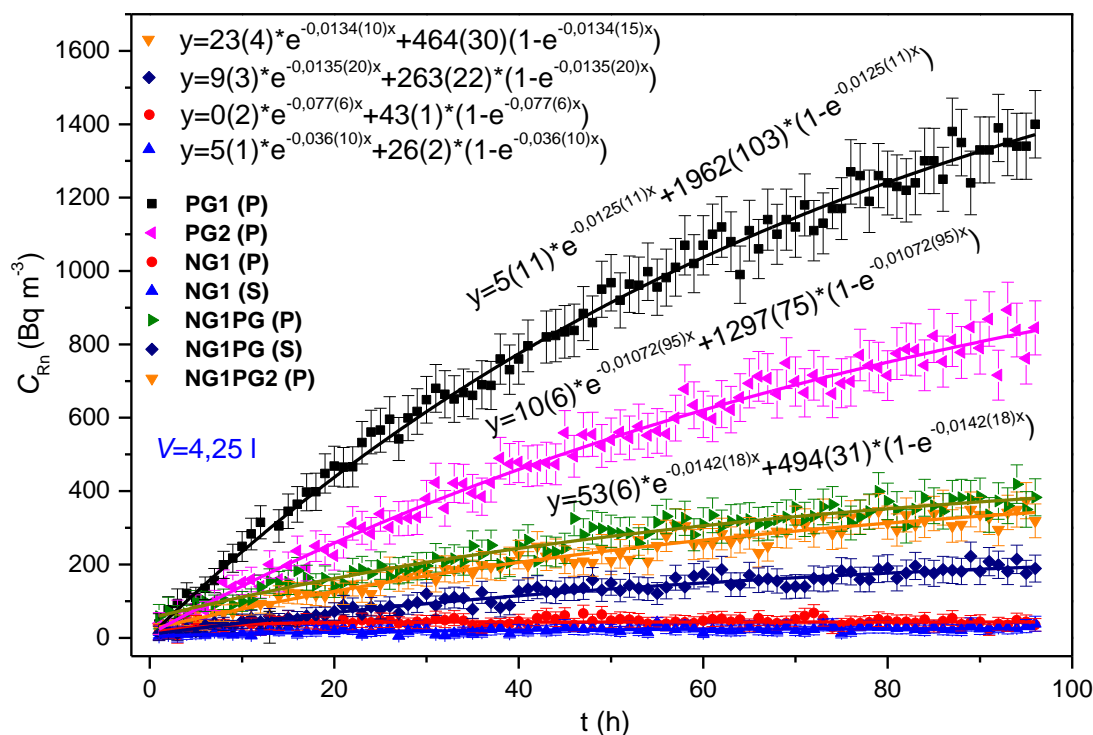
Najpre je merena koncentracija aktivnosti radona za određeno vreme u ciklusima nakon čega je izvršeno eksponencijalno fitovanje eksperimentalnih tačaka prema relaciji (3.28), poglavlje 3.2.1, (uključujući i procenu početne koncentracije radona u mernoj komori (C_0)), odakle je procenjena ravnotežna koncentracija aktivnosti radona (C_{eq}) koja prema teorijskim predviđanjima nastupa za oko 40 dana od dana zatvaranja uzorka u komoru.



Slika 11.3 Krive akumulacije radona iz uzorka fosfogipsa (PG2), prirodnog gipsa (NG1) i mešavina prirodnog gipsa i fosfogipsa (NGPG i NG1PG2) za uzorke u praškastom (P) i čvrstom (S) stanju izmerene uređajem RAD7 za vreme od 96 h u ciklusima po 1h u mernoj komori zapremine 1,5 l.



Slika 11.4 Krive akumulacije radona iz uzoraka fosfogipsa (PG1 i PG2), prirodnog gipsa (NG1) i mešavina prirodnog gipsa i fosfogipsa (NG1PG i NG1PG2) za uzorke u praškastom (P) i čvrstom (S) stanju izmerene uređajem RAD7 za vreme od 96 h u ciklusima po 1h u mernoj komori zapremine 2,5 l.



Slika 11.5 Krive akumulacije radona iz uzoraka fosfogipsa (PG1 i PG2), prirodnog gipsa (NG1) i mešavina prirodnog gipsa i fosfogipsa (NG1PG i NG1PG2) za uzorke u praškastom (P) i čvrstom (S) stanju izmerene uređajem RAD7 za vreme od 96 h u ciklusima po 1h u mernoj komori zapremine 4,25 l.

Tabela 11.3 Mase uzoraka (M), ravnotežne koncentracije aktivnosti radona (C_{eq}) uspostavljene merenjem koncentracije radona sa 2 uređaja RAD7 za NG, PG i smeše NG i PG uzoraka. (praškasti (P) i čvrst (S) uzorak).

Oznaka uzorka	M (g)	C_{Ra} (Bq kg ⁻¹)	Merni sistem 1,5/2,5/4,25/30 l	C_{eq} (kg m ⁻³)			
				1,5 l	2,5 l	4,25 l	30 l
PG1(P)	209,00±0,05	720±8	1/2/1/1	-	3302±146	1962±103	623±7
PG2(P)	168,60±0,05	528±23	2/1/2/-	1880±70	1332±30	1297±75	-
NG1(P)	189,20±0,05	9,2±0,3	1/1/2/-	53±2	45±1	43±1	-
NG1(S)	201,90±0,05	9,2±0,3	1/1/2/-	52±8	33±3	26±2	-
NG1PG(P)	190,00±0,05	239±4	-1/2/1	-	553±21	494±31	117±9
NG1PG(S)	165,50±0,05	239±4	2/1/2/-	453±22	426±25	263±22	-
NG1PG2(P)	179,50±0,05	264±3	2/1/2/-	867±47	629±35	464±30	-

Tabela 11.4 Vrednosti procenjenih početnih koncentracija radona (C_0) i efektivnih konstanti raspada radona (λ_{eff}) za uzorke prirodnog gipsa i fosfogipsa određeni aktivnim uređajem RAD7 za četiri merne komore različitih zapremina.

Oznaka uzorka	C_0 (Bq m ⁻³)				λ_{eff} (h ⁻¹) × 10 ⁻³			
	1,5 l	2,5 l	4,25 l	30 l	1,5 l	2,5 l	4,25 l	30 l
PG1(P)	-	30±8	5±11	33±8	-	8,7±0,6	12,5±1,1	8,0±0,5
PG2(P)	33±8	0±5	10±6	-	12,5±0,8	15,8±0,6	10,7±0,9	-
NG1(P)	23±5	1,1±0,5	13±9	-	58±18	28,1±1,9	77±6	-
NG1(S)	4±2	3±2	5±1	-	15±5	24±7	36±10	-
NG1PG(P)	-	15±5	53±6	10±2	-	18,4±1,4	14,2±1,8	9,5±1,4
NG1PG(S)	59±2	5±2	9±3	-	17,8±2,0	11,3±1,1	13,5±2,0	-
NG1PG2(P)	17±5	0±4	23±4	-	11,8±1,0	12,6±1,1	13,4±1,5	-

Tabela 11.5 Vrednosti integralnih doprinosa efekta povratne difuzije i curenja ($\lambda_b + \lambda_l$) u ukupnoj efektivnoj konstanti raspada radona i koeficijenta emanacije radona (ε) za uzorke prirodnog gipsa i fosfogipsa određeni za četiri merne komore različitih zapremina (uređaj RAD7).

Oznaka uzorka	$(\lambda_b + \lambda_l)$ (h ⁻¹) × 10 ⁻³				ε (%)			
	1,5 l	2,5 l	4,25 l	30 l	1,5 l	2,5 l	4,25 l	30 l
PG1(P)	-	1,1	4,9	0,4	-	7,35±0,08	7,03±0,08	12,90±0,14
PG2(P)	4,9	8,2	3,12	-	5,60±0,24	5,46±0,24	7,85±0,34	-
NG1(P)	50,4	20,5	69,4	-	8,07±0,26	9,44±0,31	13,32±0,43	-
NG1(S)	7,4	16,4	28,4	-	7,42±0,24	6,48±0,21	7,54±0,25	-
NG1PG(P)	-	10,8	6,6	1,9	-	4,44±0,07	5,86±0,10	8,03±0,13
NG1PG(S)	10,2	3,7	5,9	-	3,03±0,05	3,93±0,07	3,58±0,06	-
NG1PG2(P)	4,2	5,0	5,8	-	4,85±0,06	4,84±0,06	5,28±0,06	-

Dobijene krive emanacije odnosno akumulacije radona u mernim komorama predstavljene su na Slikama 11.3-11.5, dok su parametri nakon njihovog fitovanja predstavljeni u Tabelama 11.3-11.5. Korelacioni faktori za dobijene krive za uzorke PG kretali su se u opsegu $R^2=0,95-0,99$, gde se može reći da se radi o izuzetno jakim korelacijama, osim kod krivih emanacije radona za uzorake NG gde su uočene dosta slabije korelacije, $R^2<0,6$.

Mase uzoraka i procenjene ravnotežne koncentracije aktivnosti radona za sve analizirane uzorke date su u Tabeli 11.3. Spoljašnja, laboratorijska koncentracija radona je iznosila $< 8 \text{ Bq m}^{-3}$. Prilikom promene uzoraka za naredno merenje merni uređaji su produvani, a merne komore obrisane alkoholom. Sve procenjene vrednosti početnih koncentracija radona u mernim komorama su direktna posledica zaostale koncentracije radonskog gasa od prethodnog merenja i to isključivo u mernoj komori, a ne u samoj aktivnoj zapremini uređaja. Procenjene vrednosti početnih koncentracija aktivnosti su $< 60 \text{ Bq m}^{-3}$, a kod većine uzoraka $< 30 \text{ Bq m}^{-3}$, Tabela 11.4.

Posmatranjem dobijenih vrednosti ravnotežnih koncentracija radona može se uočiti da sa povećanjem zapremine merne komore (efektivne zapremine čitavog sistema) dolazi do smanjenja ravnotežnih koncentracija radona. Pojava da se ravnotežna koncentracija radona koja se nagomilava u mernoj komori smanjuje utiče i na gradijent koncentracije koji je odgovoran za ekshalaciju radona i na smanjenje difuzije radona što se naziva efekat povratne difuzije (eng. *back-diffusion*). Ovaj efekat je naročito izražen kod manjih zapremina mernih komora, odnosno zapremina mernih komora uporedivih sa zapreminom samog analiziranog uzorka građevinskog materijala (Abo-Elmagd, 2014). Ovo je praćeno variranjem efektivne konstante raspada radona koja se kretala u rasponu od $(8 - 77) \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$. Dobijene vrednosti efektivne konstante raspada osim za uzorke prirodnog gipsa su uporedive sa rezultatima u radu (De Martino et al., 1998). Varijacije dobijenih vrednosti efektivnih konstanti raspada radona kod uzoraka prirodnog gipsa (NG(P) i NG(S)) su direktna posledica male mase uzoraka i niskog sadržaja ^{226}Ra .

U sličnoj studiji autora (De Martino et al., 1998) je dobijeno da u komori zapremine 1,6 l dolazi do uspostavljanja rane radioaktivne ravnoteže, znatno ranije u odnosu na teorijskih 40 dana, čemu se glavni uzrok pripisuje postojanje difuzionih pojava tokom merenja radona, što je potvrđeno i u ovoj studiji. Dakle, vreme potrebno za postizanje radioaktivne ravnoteže direktno zavisi od vrednosti efektivne konstante raspada radona, što je veća njena vrednost izraženiji su efekti povratne difuzije i curenja. Prema ranijim istraživanjima autora (Samuelsson, 1990; Tuccimei et al., 2006) ako je zapremina uzorka manja od 10% ukupne efektivne zapremine mernog sistema efekat povratne difuzije radona se može zanemariti. Uzimajući efektivne zapremine mernih sistema u obzir ovo bi se moglo primeniti na sve zapremine veće od 1,5 l, imajući u vidu da je zapremina svakog od uzoraka 0,196 l. U istraživanju (Abo-Elmagd, 2014) se navodi da je za građevinske materijale sa niskom koncentracijom radijuma, ravnotežna koncentracija radona u uzorku niska za precizno merenje i zahteva zapreminu uzorka veću od 10% efektivne zapremine, što se može primeniti na analizirane uzorke NG u ovoj studiji koji sadrže $< 10 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ }^{226}\text{Ra}$.

Na osnovu izvršenih eksponencijalnih fitovanja krivih emanacije može se videti da dolazi do varijacija efektivnih konstanti raspada za isti uzorak izmeren u više različitih mernih komora. Ovo je direktna posledica merenja akumulacije radona sa dva merna sistema, gde svaki karakterišu različite konstante curenja i povratne difuzije, Tabela 11.4. Pod mernim sistemom se podrazumeva RAD7 uređaj, apsorber vlage, plastične cevi, poklopac merne komore koji na sebi sadrži staklene slavine za puštanje radonskog gasa u sistem, na koje se nastavljaju plastične cevi i koje su različitih profila, kao i same slavine, Slika 11.1. Metalni poklopac je bio univerzalan za sve 3 staklene merne komore, za oba merna sistema. Metalni poklopac ima ugrađene 2 slavine koje su zaptivene topljenom plastikom i silikonskim lepkom. Merni sistemi ne sadrže jednake dužine plastičnih cevi za protok radonskog gasa, Slika 11.1. Loša zaptivenost svakog pojedinačnog dela u

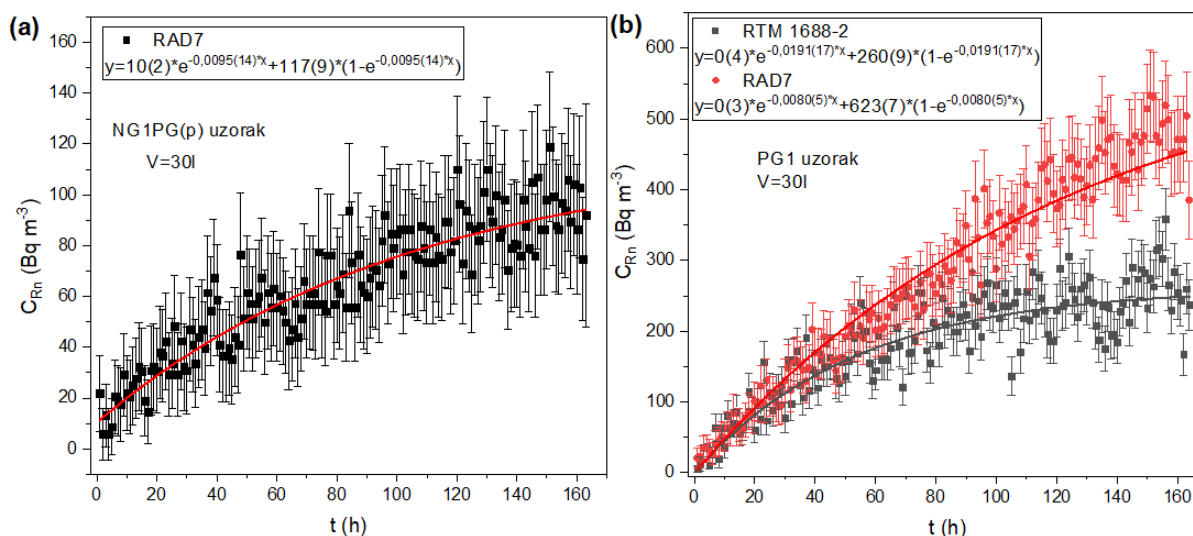
sistemu je mogla dovesti do curenja radonskog gasa iz sistema, jer se radi o relativno velikom broju spojeva koji su često raskidani, a naročito prilikom prođuvavanja aktivne zapremine čistim vazduhom pri promeni uzorka za naredno merenje.

Ako se posmatra vrednost efektivne konstante raspada radona za uzorak PG1 izmeren u komori zapremine 2,5 l uočava se 1,4 puta niža vrednost u odnosu na vrednost dobijenu u komori zapremine 4,25,5 l. Ovo ukazuje na dobru zaprivenost merne komore zapremine 2,5 l i relativno mali doprinos efekta curenja. Veća efektivna konstanta u mernoj komori zapremine 4,25 l direktna posledica curenja radona, ako se minimizira efekat povratne difuzije. Posmatranjem relacije (3.31) (poglavlje 3.2.2) može se uočiti da je efektivna konstanta raspada složena funkcija koja zavisi od brzine ekshalacije, ravnotežne koncentracije radona i same efektivne zapremine mernog sistema kao:

$$\lambda_{\text{eff}} = \frac{E_m \cdot m}{C_{\text{eq}} \cdot V_{\text{eff}}}$$

te se može zaključiti da sa povećanjem brzine ekshalacije raste, a sa povećanjem ravnotežne koncentracije radona i efektivne zapremine mernog sistema opada njena vrednost. Očito je da su efekti povratne difuzije i curenja za različite merne komore narušili konstantnost odnosa $\frac{E_m}{C_{\text{eq}}}$ među različitim komorama, što je dovelo do varijacija same efektivne konstante raspada radona.

Primećuje se da su integralni efekti povratne difuzije i curenja mernog sistema sadržani u efektivnoj konstanti raspada prema relaciji (3.25), poglavlje 3.2.2, radona značajno izraženi i kod svih ostalih uzoraka, Tabela 11.5. Najveće vrednosti efektivne konstanti raspada uočene su kod uzoraka prirodnog gipsa (NG1(P) i NG1(S)). Porast efektivne konstante raspada radona u ovim slučajevima je posledica smanjenja statistike odbroja sa povećanjem zapremine imajući u vidu nizak sadržaj ^{226}Ra ($9,2 \pm 0,3 \text{ Bq kg}^{-1}$), ali i mase uzorka te su sve dobijene krive sa dosta nižim korelacionim faktorom od ostalih ($R^2 < 0,6$) (faktor krelacije je opadao sa povećanjem efektivne zapremine mernog sistema).



Slika 11.6 (a) Krive akumulacije radona iz mešavine prirodnog gipsa i fosfogipsa (NG1PG(P)) uređajem RAD7 u komori zapremine 30l, **(b)** poređenje rezultata emanacije radona iz uzoraka fosfogipsa PG1 izmerenih aktivnim uređajima RAD 7 i RTM 1688-2 u mernoj komori zapremine 30 l.

Potrebno je naglasiti da su vršena merenja uzoraka u obliku praha gde je merena direktno emanacija iz čestica tog uzorka, ali i uzoraka u čvrstom stanju (uzorci prirodnog gipsa NG1 i mešavine prirodnog gipsa i fosfogipsa (NG1PG) te je ovde merena ekshalacija sa površine uzorka. Kod uzoraka u čvrstom stanju dobijene se manje ravnotežne koncentracije aktivnosti radona za oko 2% za zapreminu merne komore 1,5 l, do 39,5% za zapreminu merne komore od 4,25 l.

Na osnovu dobijenih rezultata datih u Tabeli 11.5 može se uočiti da su integralni doprinosi efekata povratne difuzije i curenja mernog sistema ($\lambda_b + \lambda_l$) veći od nule kod svih analiziranih uzoraka, što ukazuje da nije bilo ulaza spoljašnjeg radona u komoru, što može inicirati negativne vrednosti efektivne konstante raspada (Al-Azmi et al., 2018). Ako se uzme u obzir da je u većim zapreminama mernih komora efekat curenja dominantan proces (Samuelsson, 1990; Tuccimei et al., 2006), primećuje se da u mernoj komori zapremine 30 l dolazi do najmanjeg izražaja ovog efekta, Tabela 11.4. Smanjivanje efekta curenja merne komore sa povećanjem njene zapremine uočeno je i u istraživanju sprovedenom za tri merne komore zapremina 0,59 l 60 l i 220 l (Lopez-Coto et al., 2009). U ostalim manjim zapreminama mernih komora dolazi do variranja efektivne konstante raspada usled izraženijeg efekta povratne difuzije. Ovo je naročito izraženo kod uzoraka sa visokom koncentracijom ^{226}Ra (uzorci PG2 i NG1PG(S)) čija je emanacija izmerena u komori zapremine 1,5 l, dok je kod ostalih mernih komora (komore zapremina 2,5 l i 4,25 l) to u najvećoj meri bile varijacije konstante curenja mernih sistema.

U slučaju kada uzorak ne bi bio prisutan u mernoj komori već samo npr. određena koncentracija radonskog gasa desio bi se slučaj postojanja samo efekta curenja merne komore (jer ne postoji dodatna proizvodnja radona u komori), koji dovodi do povećanja realne vrednosti konstante raspada radona. Svako drugo prisustvo uzorka u mernoj komori usled konstantne emanacije radona stvara efekat povratne difuzije u manjoj ili većoj meri, koji rezultira povećanjem realne vrednosti konstante raspada radona ($7,6 \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$), što ukazuje da se radon u mernoj komori brže raspada.

Kod većine ostalih uzoraka sa povećanjem efektivne zapremine mernog sistema uočen je efekat smanjenja efektivne konstante raspada. Tipičan primer ovoga je uzorak NG1PG(P) čija je emanacija određena u komori zapremine 30 l, gde je efekat povratne difuzije bio dosta manje izražen u odnosu na efekat povratne difuzije u mernim komorama manjih zapremina. Isti zaključak potvrđuju i dobijene vrednosti za uzorak PG1(P) Slika 11.6, Tabela 11.4. Krive emanacije uzorka PG1(P) i NG1PG(P) u mernoj komori zapremine 30 l su praćene lošijom statistikom odbroja alfa čestica u odnosu na statistike u manjim zapreminama mernih komora.

Na osnovu određenih vrednosti ravnotežnih koncentracija radona procenjene su vrednosti koeficijenta emanacije radona i date su u Tabeli 11.5. Sve dobijene vrednosti koeficijenta emanacije su u standardnim granicama za građevinske materijale (1 – 30)% (Bikit et al., 2011). Kod većine uzoraka usled pomenutih efekata uočeno je povećanje koeficijenta emanacije radona sa povećanjem efektivne zapremine mernog sistema. Ovo je direktna posledica toga da na vrednosti ravnotežnih koncentracija radona imaju uticaj efekti difuzije i curenja mernog sistema, te se može reći da sa smanjenjem ovih efekata raste koeficijent emanacije radona. Na primer integralni doprinosi efekata curenja i povratne difuzije kod uzoraka PG1(P) i NG1PG(P) izmerenih u zapremini merne komore 30 l bili su oko 12 odnosno 3,5 puta manje izraženi u odnosu na vrednosti dobijene za mernu komoru zapremine 4,25 l, Tabela 11.5, Slika 11.6. Ovo je rezultiralo da je koeficijent emanacije radona veći u komori sa manje izraženim efektom curenja (komora zapremine 30 l), 1,9 odnosno 1,4 puta za PG1(P) i NG1PG(P) uzorke, respektivno. Izuzimajući slučaj uzorka PG1 (P) čiji je koeficijent emanacije radona određen u mernoj komori 30l, gde praktično nije bilo efekta curenja i povratne difuzije, prosečno povećanje koeficijenta emanacije sa povećanjem mernih zapremina iznosilo je oko 30%, što je tačno onoliko koliko je procenjeno i

dato u radu (Tuccimei et al., 2006) da propratni efekti mogu da utiču na emanaciju (ekshalaciju) radona. Dakle najveći problem prilikom određivanja koeficijenta emanacije radona nekog građevinskog materijala predstavlja optimizacija za minimiziranje propratnih efekata koji u mnogome zavise od eksperimentalne postavke, loše povezanost odnosno zaptivenosti sastavnih komponenti u mernom sistemu, kao i od odabira adekvatne zapremine merne komore.

U Tabeli 11.6 date su vrednosti brzina masenih ekshalacija radona (E_m) (za praškaste i čvrste uzorke). Masene ekshalacije kod uzoraka variraju u okviru 30% kod većine uzoraka. Primećuje se porast brzine masene ekshalacije radona sa povećanjem zapremine merne komore, ali može se reći da su sve dobijene vrednosti u okvirima mernih nesigurnosti, osim kod uzoraka NG. Ovo se naročito odnosi na vrednosti dobijene za zapremine komora kod kojih se efekat povratne difuzije može zanemariti, ($V > 1,5$ l).

Tabela 11.6 Vrednosti brzina masenih ekshalacija (E_m) za uzorke prirodnog gipsa i fosfogipsa određeni za četiri merne komore različitih zapremina aktivnim uređajem RAD7.

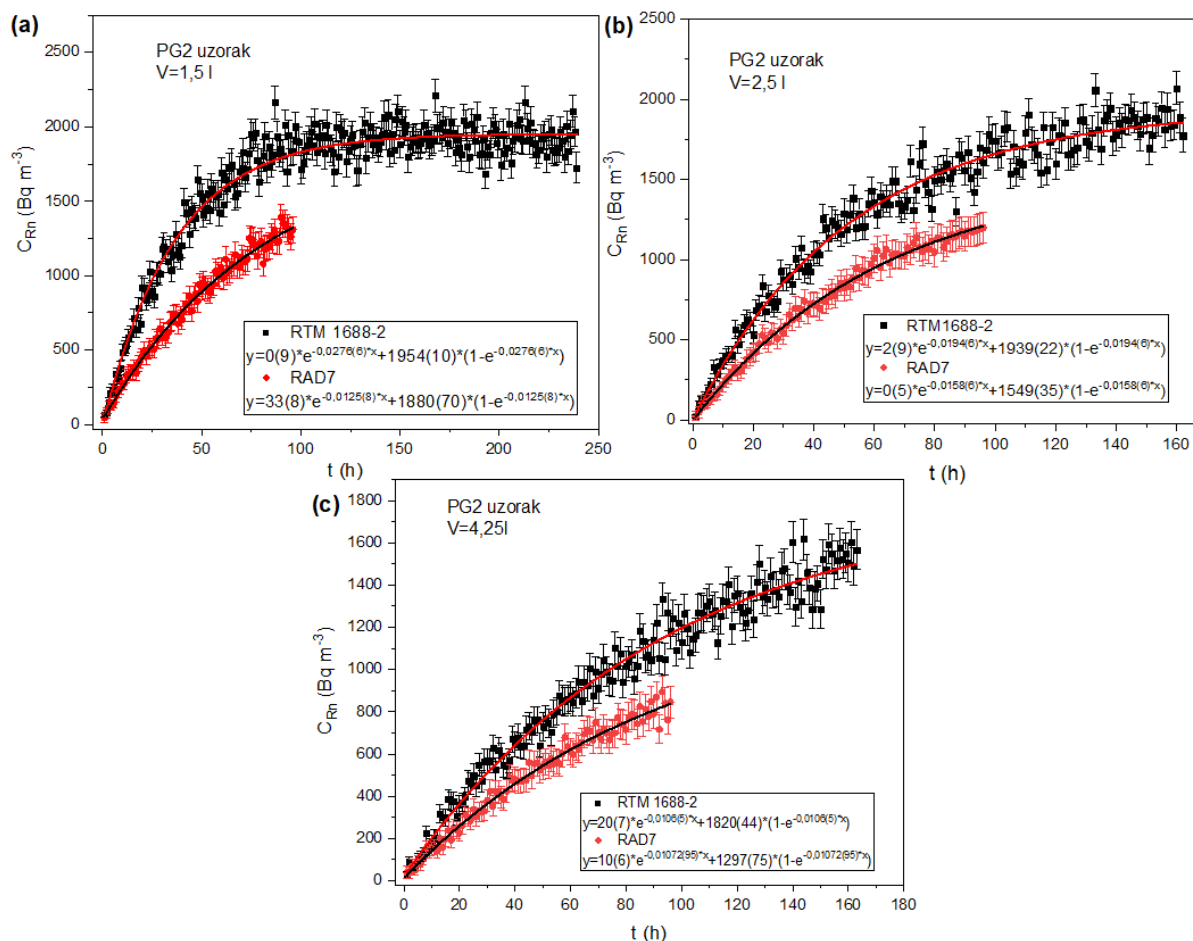
Oznaka uzorka	E_m (Bq kg ⁻¹ h ⁻¹)			
	1,5 l	2,5 l	4,25 l	30 l
PG1(P)	-	461±39	632±65	743±47
PG2(P)	369±27	456±20	444±47	-
NG1(P)	43±13	24±2	94±8	-
NG1(S)	10±4	14±4	25±7	-
NG1PG(P)	-	195±17	199±28	182±30
NG1PG(S)	129±16	106±12	116±20	-
NG1PG2(P)	151±15	161±17	187±24	-

Kod uzoraka mešavina NG1PG u čvrstom i praškastom stanju uočeno je smanjenje brzine ekshalacije radona za oko 80% u odnosu na spraćen uzorak. Ovo ukazuje da čvrsta gusta matrica nastala izlivanjem smeše NG1 i PG uzorka u mnogome uspeva da spreči ekshalaciju radona iz zrnaca materijala u odnosu na uzorak u praškastom obliku, što je veoma bitno za praktičnu primenu fosfogipsa u građevinarstvu, kao dodatka prirodnom gipsu. Dakle, najsitnija frakcija fosfogipsa koja nosi najviši sadržaj ²²⁶Ra biva zarobljena u čvrstoj matrici gipsa, gde radon koji emanira u najsitnije pore ne uspeva da difunduje do površine, što rezultira smanjenjem brzine masene ekshalacije radona za 80%.

Imajući u vidu da brzina masene ekshalacije složena funkcija koja zavisi od ravnotežne koncentracije radona, efektivne konstante raspada i efektivne zapremine mernog sistema, kao i mase uzorka prema relaciji:

$$E_m = \frac{C_{eq} \cdot \lambda_{eff} \cdot V_{eff}}{m}$$

očito da je prilikom merenja u različitim mernim komorama za iste merne uzorke ($m=const.$) ne dolazi do očuvanja konstantnosti proizvoda $C_{eq} \cdot \lambda_{eff} \cdot V_{eff}$, što utiče na varijacije kako brzine ekshalacije radona tako i koeficijenta emanacije za različite merne komore. Ovo je direktna posledica varijacija curenja radona iz merih komora (sistema), ali i izraženijeg efekta povratne difuzije kod mernih komora manje zapremine. Ukoliko bi se ostvarila približna konstantnost proizvoda pomenute tri veličine, za različite zapremine merne komore, zasigurno bi se varijacije koeficijenta emanacije minimizirale, što se može postići isključivo adekvatnom eksperimentalnom postavkom za merenje ekshalacije radona.



Slika 11.7 Poređenje rezultata emanacije radona iz uzoraka fosfogipsa PG2 izmerenih aktivnim uređajima RAD 7 i RTM 1688-2 za različite zapremine mernih komora.

Da bi se potvrdili analizirani efekti, merenja su izvršena za praškaste uzorke sa najvišim koncentracijama aktivnosti ^{226}Ra , PG1 i PG2 i aktivnim uređajem RTM 1688-2. Merenja uređajem RTM 1688-2 su imala sledeći tok. Izvršena su najpre poređenja rezultata za PG1 i PG2 uzorke prema istim uslovima merenja kao sa uređajem RAD7 u različitim mernim komorama u ciklusima po 1 h, i na kraju je izvršena akumulacija radona 20 dana u mernoj komori zapremine 30 l za uzorak PG1, nakon čega je sprovedeno merenje ravnotežne koncentracije radona. Dobijene krive emanacije za uzorke PG1 i PG2 za različite zapremine mernih komora date su na Slikama 11.6b i 11.7, a paramteri nakon fitovanja krivih, vrednosti koeficijenata emanacije i brzine masene ekshalacije dati su u Tabelama 11.7 i 11.8. Na osnovu dobijenih krivi emanacije može se videti da je za manje efektivne zapremine potrebno kraće vreme za uspostavljanje radioaktivne ravnoteže (uzorak PG1, Slika 11.6b). Radioaktivna ravnoteža za uzorak PG2 je uspostavljena u komori zapremine 1,5 l za oko 160 h (oko 6,7 dana) što je oko 6 puta brže nego što je teorijski pretpostavljeno. Iz Tabele 11.7 se može videti da vrednosti efektivnih konstanti raspada radona opadaju povećanjem zapremine merne komore. Budući da je efektivna zapremina RTM 1688-2 mernog sistema manja za 1,1 l od RAD7 efektivne zapremine (Tabela 11.2), efekat povratne difuzije je izraženiji kod RTM 1688-2 mernog sistema, ako se uporede krive emanacije i vrednosti dobijene za uzorak PG2, Slika 11.7. Ovde treba naglasiti da je jedan isti uzorak meren istim uređajem RTM 1688-2 za sve zapremine mernih komora, te se mogu izvesti konkretni zaključci,

dok su gore analizirani uzorci mereni sa dva RAD7 uređaja te su prisutne značajnije varijacije efektivnih konstanti raspada radona.

Tabela 11.7 Poređenje vrednosti ravnotežnih koncentracija radona (C_{eq}) i efektivnih konstanti raspada (λ_{eff}) određenih za uzorak PG2 iz Tabele 11.1 za dva aktivna uređaja i 3 različite zapremine mernih komora.

Uređaj	$C_{eq} (\text{Bq m}^{-3})$			$\lambda_{eff} (\text{h}^{-1}) \times 10^{-3}$		
	1,5 l	2,5l	4,25l	1,5 l	2,5l	4,25l
RTM 1688-2	1954±10	1939±22	1820±44	27,6±0,6	19,4±0,6	10,6±0,5
RAD7	1880±70	1549±35	1297±75	12,5±0,8	15,8±0,6	10,7±0,9

Iz Tabele 11.7 se jasno može uočiti smanjenje vrednosti efektivne konstante raspada radona sa povećanjem zapremine merne komore pri merenju emanacije radona sa RTM 1688-2 mernim uređajem u poređenju sa dobijenim vrednostima RAD7 uređajem. Vrednosti koeficijenta emanacije radona za uzorak PG2, u ovom slučaju rastu sa povećanjem zapremine merne komore, usled slabljenja efekata povratne difuzije, što je zabeleženo i kod ostalih uzoraka merenih uređajem RAD7. Dobijene vrednosti koeficijenta emanacije određene sa dva aktivna uređaja se razlikuju od 40% za zapreminu merne komore 1,5 l do 12% kod zapremine merne komore od 4,25 l. Zaključuje se da sa povećanjem zapremine merne komore dolazi i do smanjenja razlike između dobijenih vrednosti koeficijenta emanacije među vrednostima dobijenim sa dva različita aktivna uređaja. Isto ponašanje je zabeleženo i za vrednosti brzine masene ekshalacije radona, Tabela 11.8 i direktna je posledica slabljenja integralnih doprinosa curenja i povratne difuzije radona.

Tabela 11.8 Poređenje vrednosti koeficijenta emanacije radona (ε) određenog za uzorak PG2 za dva aktivna uređaja i 3 različite zapremine mernih komora.

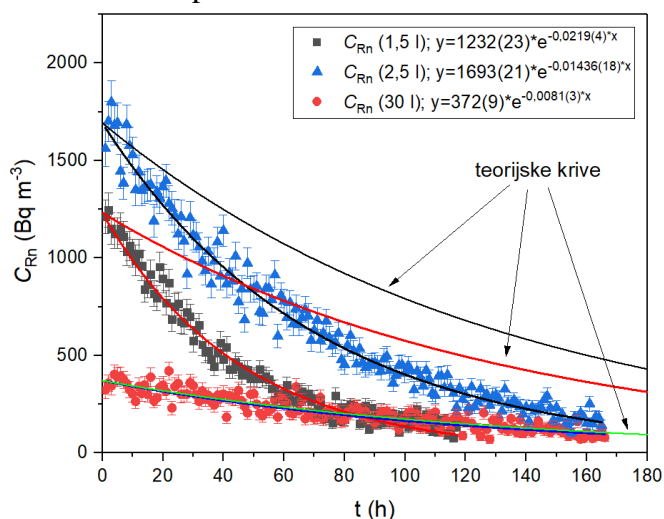
Uređaj	$\varepsilon (\%)$			$E_m (\text{Bq kg}^{-1} \text{h}^{-1})$		
	1,5 l	2,5l	4,25l	1,5 l	2,5l	4,25l
RTM 1688-2	3,41±0,15	5,56±0,24	8,80±0,38	497±11	570±19	492±26
RAD7	5,60±0,24	5,46±0,24	7,85±0,34	369±27	456±20	444±47

Da bi se ispitao uticaj efekata curenja i povratne difuzije na dobijene vrednosti efektivnih konstanti raspada, uređajem RTM 1688-2 praćene su krive raspada radona u mernim komorama zapremina 1,5; 2,5 l i 30 l (najmanje i najveća merna komora). Za eksperiment je korišćen PG2 uzorak. Koji je bio zatvoren u komori 7 dana, nakon čega je izvađen ali tako da je u komori zaostala određena koncentracija radona, i nakon toga je izvršeno merenje raspada radona narednih 5-7 dana.

Potrebno je napomenuti da RTM 1688-2 merni sistem sa komorom zapremine 1,5 l iznosi 1,55 l kao i to da uzorak zauzima oko 12% efektivne zapremine pri merenju u komori zapremine 1,5 l, a što nije u saglasnosti sa ranijim istraživanjima (Samuelsson et al., 1990; Tuccimei et al., 2006) za zanemarivanje efekta povratne difuzije. Sve ostale merne komore zadovoljavaju ovaj uslov, te se efekat difuzije teorijski može zanemariti. Da bi se potvrdila ova činjenica sprovedeno je i merenje curenja radona i u komorama zapremina 2,5 l i 30 l, takođe uređajem RTM 1688-2.

Dobijene krive raspada radona u mernim komorama date su na Slici 11.8, gde se može uočiti veće odstupanje eksperimentalnih od teorijskih krivi raspada u mernim komorama zapremina 1,5 l i 2,5 l usled izraženih efekata curenja. U komori zapremine 30 l se može uočiti da je ovo odstupanje dosta manje izraženo, te dolazi skoro do preklapanja teorijske i eksperimentalne krive

raspada radona. Dobijene vrednosti efektivnih konstanti raspada, kao i vrednosti konstanti curenja za tri analizirane merne komore dati su u Tabeli 11.9. U poređenju sa teorijskom krivom može se uočiti da efekat curenja dovodi do povećanja efektivne konstante raspada radona, odnosno povećava njegovu efektivnu brzinu raspada.



Slika 11.8 Krive raspada radona u mernim komorama zapremina 1,5 l, 2,5 l i 30 l izmerene uređajem RTM 1688-2.

Tabela 11.9 Vrednosti efektivnih konstanti raspada radona dobijene iz krivih raspada radona za tri različite merne komore određene aktivnim uređajem RTM 1688-2 i vrednosti konstanti curenja (λ_1).

Merna komora	Inicijalna koncentracija radona (Bq m^{-3})	$(\lambda_{Rn} + \lambda_1) \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}$	$\lambda_1 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}$
1,5 l	1232±23	21,9±0,4	14,3
2,5 l	1693±21	14,36±0,18	6,8
30 l	372±9	8,1±0,3	1,1

Prema relaciji (3.25), poglavlje 3.2.1, efektivna konstanta raspada tokom praćenja emanacije radona iz uzoraka predstavlja zbir konstante raspada radona (λ), konstante curenja (λ_1) i konstante povratne difuzije (λ_b), odnosno:

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda + \lambda_1 + \lambda_b$$

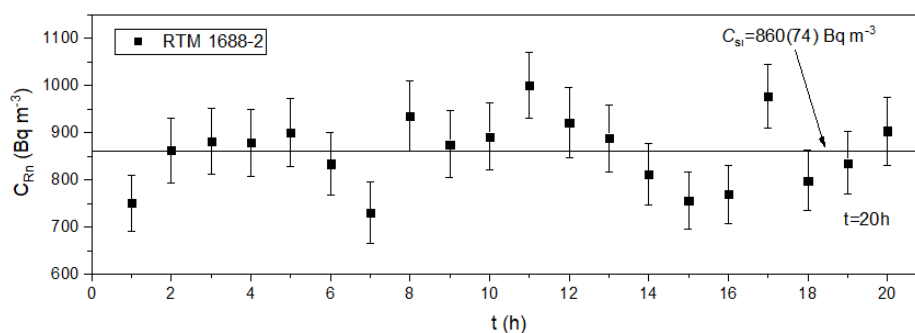
Imajući u vidu da je efektivna konstanta raspada radona dobijena raspadom radona u mernoj komori, eliminiše se postojanje efekta povratne difuzije (λ_b). Dobijena vrednost efektivne konstante raspada iz krive raspada radona predstavlja zbir konstante raspada (λ) i konstante curenja merne komore (λ_1), relacija (11.1):

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda + \lambda_1 \quad (11.1)$$

Dobijena vrednost efektivne konstante raspada iz krive raspada radona u mernoj komori zapremina 1,5 l iznosi $\lambda_b = 21,9 \pm 0,4 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}$, te se odavde može odrediti konstanta curenja radona koja iznosi $\lambda_1 = 14,3 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}$. Ako se ovo uzme u obzir kao i vrednost efektivne konstante raspada za uzorak PG2 od $27,6 \pm 0,6 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}$ (Slika 11.7a), prema relaciji (3.25),

vrednost konstantne povratne difuzije ima vrednost $\lambda_b = 5,7 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}$. Prema dobijenim rezultatima u mernoj komori zapremine 1,5 l efekat curenja je 2,5 puta izraženiji od efekta povratne difuzije, ali se i dalje ovaj efekat ne može zanemariti jer predstavlja oko 21% od vrednosti efektivne konstante raspada dobijene za uzorak PG2, dok efekat curenja predstavlja oko 52%. Dobijeni rezultati su u saglasnosti sa ranijim istraživanjima (Samuelsson et al., 1990; Tuccimei et al., 2006).

Na osnovu dobijenih vrednosti, datih u Tabeli 11.9, može se videti da se sa povećanjem zapremine merne komore dolazi do smanjenja efekta curenja radona iz merne komore, što potvrđuju i rezultati u radu (Lopez-Coto et al., 2009), gde je iznet isti zaključak. Ako se uporede dobijene vrednosti konstanti curenja sa vrednostima efektivnih konstanti za uzorke PG1 i PG2, Slike 11.6b i 11.7 može se reći da je efekat curenja bio izraženiji, od procenjenih vrednosti u Tabeli 11.9, što je direktna posledica lošeg zaptivanja mernih komora ili lošeg povezivanja sa ostalim komponentama mernog sistema. Ovim je u mnogome dat odgovor na varijacije dobijenih vrednosti efektivnih konstanti raspada, za sve analizirane uzorke. Ovde treba napomenuti da zaptivenost same merne komore u mnogome zavisi od ljudskog faktora koji dovodi do uočenih varijacija.



Slika 11.9 Rezultati merenja emanacije radona aktivnim uređajem RTM 1688-2 nakon 20 dana od momenta zatvaranja merne komore zapremine 30 l za uzorak fosfogipsa PG1.

Poređenja akumulacije radona u mernoj komori zapremine 30 l uređajima RAD7 i RTM 1688-2 za uzorak PG1 (P) prikazano je na Slici 11.6b. Ovaj uzorak je odabran jer sadrži najvišu koncentraciju aktivnosti ²²⁶Ra od analiziranih iz Tabele 11.1. Na kraju isti uzorak, PG1, ubačen je u mernu komoru zapremine 30 l, nakon čega je ona zaptivena. Merenja su izvršena posle 20 dana od momenta zatvaranja merne komore priključivanjem merne komore na uređaj RTM 1688-2 i praćenjem koncentracije radona narednih 20h u ciklusima po 1h, Slika 11.9. Poređenje dobijenih vrednosti za dva različita načina merenja radona u mernoj komori zapremine 30 l dati su u Tabeli 11.11.

Tabela 11.11 Poređenje ravnotežnih koncentracija aktivnosti radona, koeficijenta emanacije i brzine masene ekshalacije za uzorak PG1 čija je emanacija radona pačena sa dva aktivna merna uređaja u zapremini merne komore od 30 l.

Uređaj	$C_{eq} \text{ (Bq m}^{-3}\text{)}$	$\lambda_{eff} \text{ (h}^{-1}\text{)} \times 10^{-3}$	$\varepsilon \text{ (%)}$	$E_m \text{ (Bq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}\text{)}$
RTM 1688-2	260±9	19,1±1,7	5,19±0,06	101±64
RAD7	623±7	8,0±0,5	12,90±0,14	743±47
RTM 1688-2 ⁶	860±74	7,6*	17,18±0,19	940±81

*teorijska vrednost efektivne konstante raspada radona.

⁶Vrednost ravnotežne koncentracije radona dobijene merenjem radona nakon 20 dana od trenutka zatvaranja merne komore zapremine 30l, Slika 11.9.

Kao što se sa Slike 11.9 može videti izmerene vrednosti nakon 20 dana su oscilovale oko ravnotežne vrednosti, pošto je već bila uspostavljena radioaktivna ravnoteža. Ravnotežna vrednost koncentracije aktivnosti radona u ovom slučaju je dobijena kao prosečna vrednost od 20 uzastopnim merenja što iznosi $860 \pm 74 \text{ Bq m}^{-3}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Dobijena vrednost u poređenju sa vrednosti dobijenom merenjem koncentracije radona u ciklusima u istoj mernoj komori uređajima RAD7 i RTM 1688-2 koje iznose $623 \pm 7 \text{ Bq m}^{-3}$ i $260 \pm 9 \text{ Bq m}^{-3}$ je 1,4 i 3,3 puta veća, respektivno.

Za vrednost dobijenu uređajem RTM 1688-2 sa sigurnošću se može reći da je dobijena bez izraženog efekta povratne difuzije usled nastupanja radioaktivne ravnoteže što potvrđuju izmerene vrednosti. Manja vrednost ravnotežne koncentracije radona uređajem RTM 1688-2 propraćena je izraženim efektom curenja mernog sistema ($\lambda_{\text{eff}} = (19,1 \pm 1,7) \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$), što je kod RAD7 mernog sistema propraćeno dosta manje izraženim efektom curenja radona ($\lambda_{\text{eff}} = (8,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$). Kod merenja ravnotežne koncentracije radona nakon 20 dana može se pretpostaviti teorijska vrednost efektivne konstante raspada ($\lambda_{\text{eff}} = 7,6 \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$).

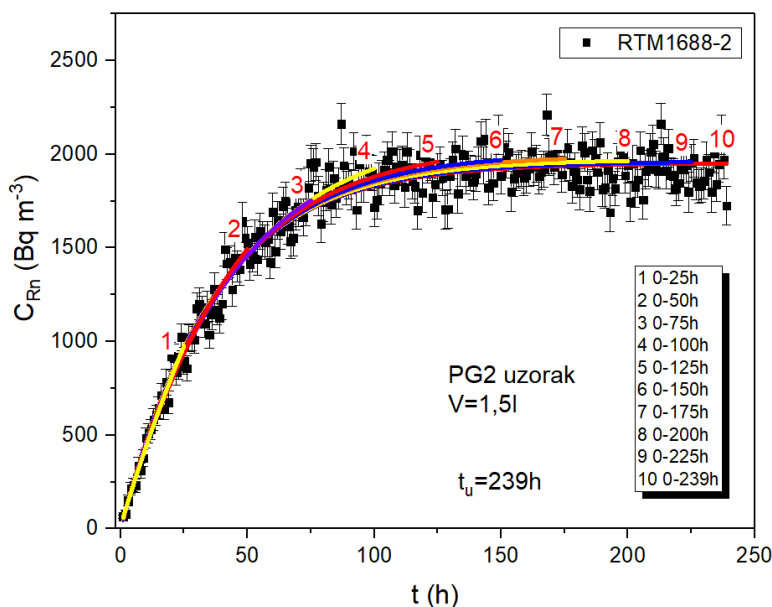
Vrednost emanacionog koeficijenta za PG1 uzorak izmerene emanacije radona nakon 20 dana RTM 1688-2 uređajem iznosi $17,18 \pm 0,19\%$, što je 1,3 puta veća vrednost u odnosu na onu uzmerenu uređajem RAD7 i 3,3 puta veća od vrednosti dobijene praćenjem emanacije radona u ciklusima uređajem RTM 1688-2, Tabela 11.11. Vrednost koeficijenta emanacije određena merenjem radona nakon 20 dana je uporediva sa dobijenom vrednošću za fosfogipssa sličnim sadržajem radijuma u radu (Lopez-Coto et al., 2009). Iz analiziranog se zaključuje da postojanje efekta curenja dovodi do loše procene koeficijenta emanacije radona, te se on može tretirati kao remetilački odnosno otežavajući faktor, koji se ni u kom slučaju ne sme zanemariti tokom merenja emanacije (ekshalacije) radona iz analiziranog građevinskog materijala.

Izraženi efekti curenja imali su uticaja i na brzinu masene ekshalacije radona, gde se može zaključiti da izražeiji efekat curenja utiče na smanjenje brzine masene ekshalacije radona.

Iz svega analiziranog može se zaključiti da je glavni uzročnik varijacija ravnotežnih koncentracija radona, a samim tim i emanacionog koeficijenta kao i brzine ekshalacije radona vrednost efektivne konstante raspada koja direktno zavisi od korišćene merne postavke ali i zaptivenosti svih sastavnih komponenti u mernom sistemu. Uticaj efektivne konstante raspada na vrednosti ravnotežnih koncentracija radona je prijavljen i u razmatranjima autora (Gutierrez-Alvarez et al., 2020), koja su direktno potvrđena detaljnim analizama u ovoj studiji.

U pojedinim istraživanjima, odnosno njihovim teorijskim razmatranjima (Gutierrez-Alvarez et al., 2020) navodi da je efektivna konstanta nepromenljiva tokom merenja akumulacije radona u mernoj komori. U tu svrhu uzorak PG2 čija je emanacija praćena uređajem RTM 1688-2 u mernoj komori 1,5 l, kod kojeg je nastupila radioaktivna ravnoteža, korišćen je za ispitivanje nepromenljivost ove konstante tokom vremena merenja do uspostavljanja radioaktivne ravnoteže.

Ukupno vreme merenja emanacije radona iz PG2 uzorka iznosilo je 239 h u ciklusima po 1h. Analiza varijacije koeficijenta emanacije radona je izvršena za 10 intervala merenja po 25 h, Slika 11.10. Fitovanja krivih emanacije su izvršena prema relaciji (3.28) uključujući početnu koncentraciju radona u mernoj komori, a rezultati su prikazani u Tabeli 11.12. Sa povećanjem vremena merenja dolazi do smanjenja početne koncentracije radona usled smanjenja gradijenta koncentracije radona između uzorka i vazduha u mernom sistemu. Uočava se da se sa povećanjem vremena merenja emanacije radona iz uzorka smanjuje vrednost ravnotežne koncentracije radona. Ovo je propraćeno povećanjem efektivne konstante raspada, koja je direktna posledica povećanja efekta povratne difuzije imajući u vidu da se ovaj efekat u ovoj mernoj komori ne može zanemariti, prema gore izvršenoj analizi.

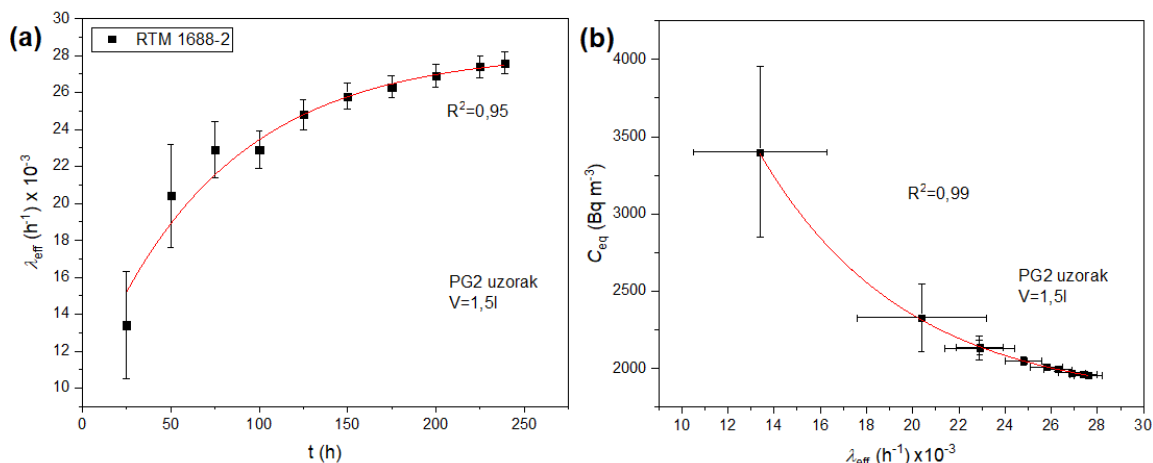


Slika 11.10 Krive emanacije fitovane za različita vremena merenja uređajem RTM 1688-2 za uzorak PG2 izmerene u komori zapremine 1,5l.

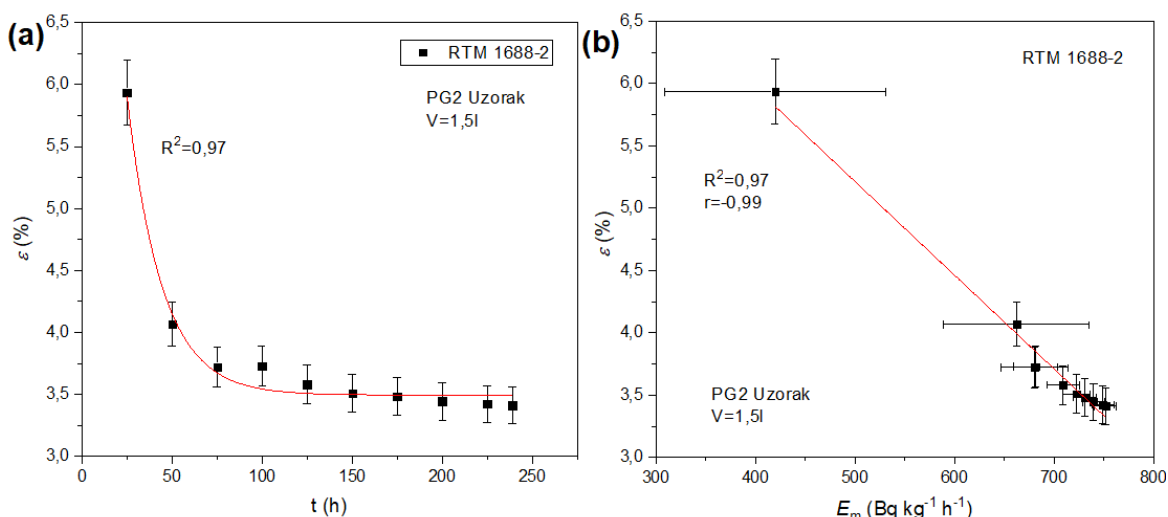
Tabela 11.12 Varijacije vrednosti početne koncentracije radona (C_0), ravnotežne koncentracije aktivnosti radona (C_{eq}), efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}), doprinosa konstante curenja i povratne difuzije ($\lambda_b + \lambda_v$) i brzine masene ekshalacije (E_m) u različitim vremenskim intervalima merenja za za uzorak PG2 čija je emanacija radona merena aktivnim uređajem RTM 1688-2.

Kriva broj	Vremenski interval (h)	C_0 ($Bq\ m^{-3}$)	C_{eq} ($Bq\ m^{-3}$)	$\lambda_{eff} (h^{-1}) \times 10^{-3}$	$\lambda_b + \lambda_v$ (h^{-1})	ε (%)	E_m ($Bq\ kg^{-1}\ h^{-1}$)
1	0-25	15±11	3400±552	13,4±2,9	5,8	5,94±0,26	420±111
2	0-50	12±10	2329±220	20,4±2,8	12,8	4,07±0,18	662±73
3	0-75	9±9	2132±77	22,9±1,5	15,3	3,72±0,16	681±34
4	0-100	9±9	2136±45	22,9±1,0	15,3	3,73±0,16	682±22
5	0-125	4±9	2051±27	24,8±0,8	17,2	3,58±0,16	709±16
6	0-150	1±9	2010±19	25,8±0,7	18,2	3,51±0,15	723±14
7	0-175	0±9	1995±14	26,3±0,6	18,7	3,48±0,15	731±12
8	0-200	0±9	1973±12	26,9±0,6	19,3	3,44±0,15	740±11
9	0-225	0±9	1961±10	27,4±0,6	19,8	3,42±0,15	749±11
10	0-239	0±9	1954±10	27,6±0,6	20	3,41±0,15	752±11

Na Slici 11.11a je prikazana zavisnost promene vrednosti efektivne konstante raspada tokom vremena, gde se jasno uočava eksponencijalni porast sa visokim faktorom korelacije ($R^2=0,95$). Ovo direktno govori da efektivna konstanta menja svoje vrednosti tokom vremena i da zajedno sa ravnotežnom koncentracijom teži konstantnoj vrednosti, te se nakon uspostavljene radioaktivne ravnoteže može reći da ima približno konstantnu vrednost. Uočava se da sa povećanjem vremena merenja dolazi do povećanja statistike odbroja što je propraćeno smanjenjem mernih nesigurnosti. Na Slici 11.11b prikazana je korelacija između ravnotežne koncentracije radona za određeni vremenski interval merenja i efektivne konstante raspada u tom vremenskom intervalu. Dobijena je jaka zavisnost ($R^2=0,99$), gde se zaključuje da što je manja efektivna konstanta raspada veća je ravnotežna koncentracija radona. Iz ovoga sledi da dostizanje viših ravnotežnih koncentracija radona upravo onemogućavaju efekti curenja i povratne difuzije sadržani u povećanju vrednosti efektivne konstante, kako je i teorijski predviđeno relacijom (3.31).



Slika 11.11 (a) Promene efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}) tokom vremena određene aktivnim uređajem RTM 1688-2 za izorak PG2; (b) korelacije između ravnotežne koncentracije aktivnosti radona (C_{eq}) i efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}).

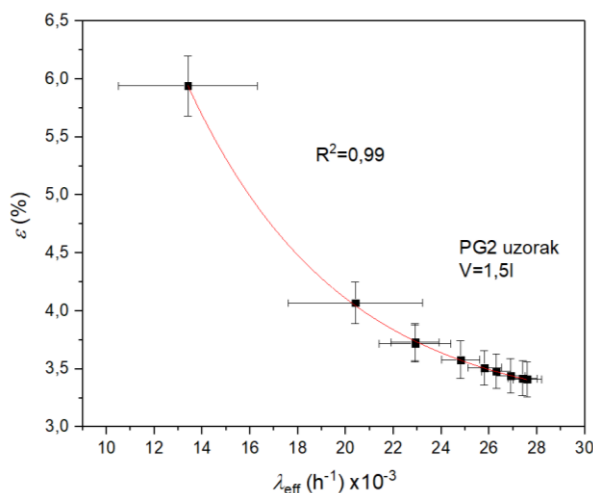


Slika 11.12 (a) Zavisnost koeficijenta emanacije (ε) od vremena merenja (t); (b) zavisnost koeficijenta emanacije od brzine masene ekshalacije za uzorak PG2 meren RTM 1688-2 uređajem u komori zapremine 1,5l.

Iz Tabele 11.12 se vidi da dolazi do varijacija emanacionog koeficijenta, odnosno do njegovog smanjenja sa porastom vremena merenja prema eksponencijalnom zakonu, kao što je prikazano na Slici 11.12a. Primećuje se da u početnim vremenskim intervalima merenja koeficijent emanacije ima najvišu vrednost, koja opada sa vremenom usled jačanja efekta povratne difuzije, koji svojom saturacijom saturiraju i vrednost emanacionog koeficijenta. Na Slici 11.13 prikazana je korelacija između koeficijenta emanacije i efektivne konstante raspada gde je dobijena jaka zavisnost sa korelacionim faktorom $R^2=0,99$. Na osnovu rezultata datih na Slici 11.11a i 11.12a može se zaključiti da sa povećanjem efektivne konstante raspada opada vrednost emanacionog koeficijenta tokom vremena, gde saturacija efektivne konstante raspada utiče i na saturaciju koeficijenta emanacije radona.

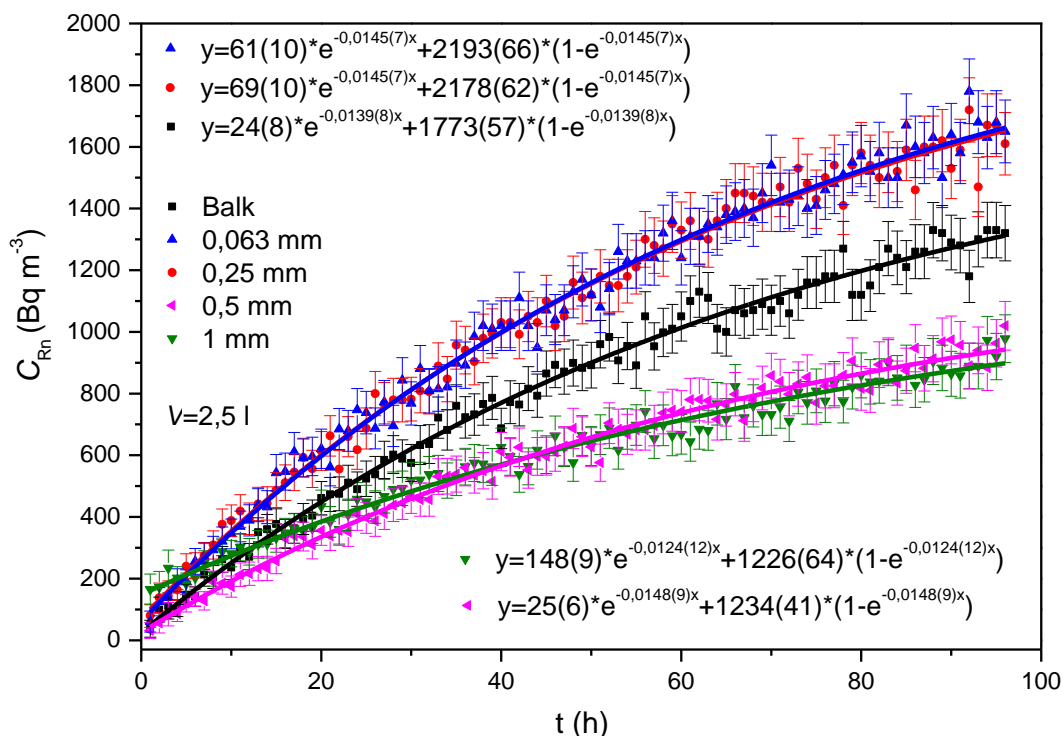
Na osnovu dobijenih vrednosti brzine masene ekshalacije radona, datih u Tabeli 11.12, uočava se da povećanje efektivne konstante raspada radona utiče i na povećanje brzine masene ekshalacije

radona u analiziranim intervalima merenja. Na Slici 11.12b prikazana je korelacija između koeficijenta emanacije i brzine masene ekshalacije radona, gde je uočena jaka linearna korelacija ($R^2=0,97$; $r=-0,99$).

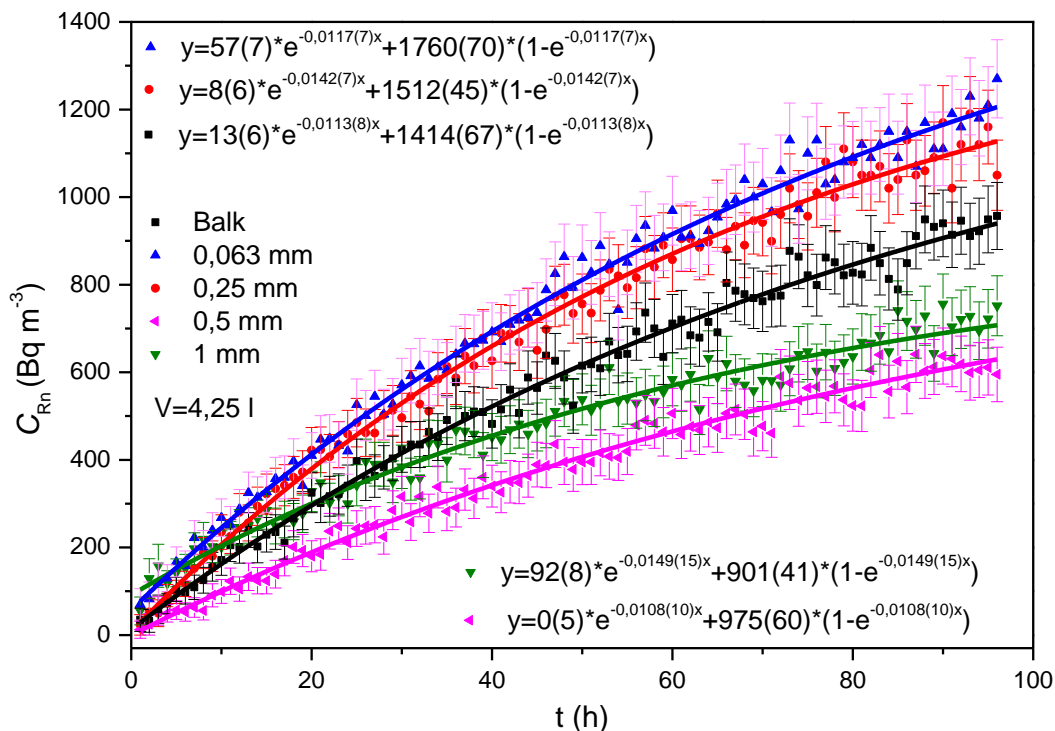


Slika 11.13 Korelacija između koeficijenta emanacije (ε) i efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}) tokom procesa emanacije radona iz uzorka PG2 u mernoj komori zapremine 1,5l određene uređajem RTM 1688-2.

Iz do sada analiziranog se može zaključiti da od integralnih doprinosa efekata povratne difuzije i curenja merne komore efektivnoj konstanti raspada zavise i vrednosti koeficijenta emanacije i brzine ekshalacije, kako tokom samog procesa emanacije kod pojedinačnog uzorka, tako i među uzorcima.



Slika 11.14 Krive akumulacije radona za PG3 uzorka iz Tabele 11.1 razdvojenog po frakcijama (1 – 0,063) mm izmerne aktivnim uređajima RD7 u mernoj komori zapremine 2,5 l.



Slika 11.15 Krive akumulacije radona za PG3 uzorka iz Tabele 11.1 razdvojenog po frakcijama (1 – 0,063) mm izmerne aktivnim uređajima RD7 u mernoj komori zapremine 4,25 l.

S obzirom da se u straživanjima naglašava da emanacija (ekshalacija) radona zavisi od veličine zrna (frakcije) (De Martino et al., 1998; Čeliković et al., 2017; Hilal et al., 2015; Imme et al., 2014; Tuccimei et al., 2006) ispitivan je ovaj uticaj na vrednosti koeficijenta emanacije radona i brzinu masene ekshalacije, istom metodologijom kao i kod prethodnih uzoraka.

U ovu svrhu korišćen je balk uzorak PG3 iz Tabele 11.1 sa koncentracijom aktivnosti ^{226}Ra od $715 \pm 32 \text{ Bq kg}^{-1}$, koji je razdvojen u 4 frakcije, 1 – 0,063 mm. Svi uzorci pre razdvajanja po frakcijama su sušeni na temperaturi od $105 \text{ }^\circ\text{C}$ 6 – 8h, tako da je % vlage u svim uzorcima bio približno isti (manji od 1%). Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra ukazuju na to da je distribucija ^{226}Ra najveća u najnižim frakcijama, odnosno raste sa veličinom frakcije, što je zabeleženo i u poglavlju 8.2. Ovo potvrđuje i rast faktora obogaćenja (EF_{Ra}) sa smanjenjem veličine frakcije, Tabela 11.13.

Merenja emanacije radona za 4 frakcije i balk uzorak fosfogipsa PG3 izvršena su sa dva aktivna uređaja RAD7 (2 merna sistema) u vremenskim intervalima od 96h u ciklusima po 1h. Merenja su sprovedena u komorama zapremina 2,5 l i 4,25 l, kako bi se minimizirao efekat povratne difuzije. Dobijene krive emanacije su predstavljene na Slikama 11.14 i 11.15. Dobijene vrednosti parametara nakon fitovanja krivih emanacije, vrednosti emanacionog koeficijenta i brzine masene ekshalacije date su u Tabelama 11.13-11.15.

Na osnovu izgleda krivih emanacije može se videti da manje frakcije imaju viši stepen emanacije radona u odnosu na balk uzorak. Nakon fitovanja pojedinačnih krivi uspostavljene su ravnotežne koncentracije aktivnosti čije vrednosti rastu sa smanjenjem veličine frakcije i smanjuju se sa povećanjem zapremine merne komore. Većina uzoraka je merena istim mernim sistemom za obe komore gde su rezultati uporedivi u odnosu na one analizirane u prvom delu ovog poglavlja.

Tabela 11.13 Mase uzoraka (M), koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , faktori obogaćenja (EF_{Ra}) i ravnotežne koncentracije aktivnosti radona (C_{eq}) za uzorak PG3 razdvojen po frakcijama (1-0,063) mm za dve zapremine mernih komora.

Frakcija (mm)	M (g)	A_{Ra} (Bq kg^{-1})	EF_{Ra}	C_{eq} (kg m^{-3})	
				2,5 l	4,25 l
1	164,2±0,05	615±25	0,86±0,05	1226±64	900±40
0,5	177,8±0,05	597±32	0,83±0,06	1234±41	975±61
0,25	169,8±0,05	811±19	1,13±0,06	2178±62	1512±45
0,063	145,1±0,05	932±18	1,30±0,06	2193±66	1760±70
Balk uzorak	197,5±0,05	715±32	1	1773±57	1414±67

Na osnovu dobijenih vrednosti efektivne konstante raspada se može uočiti da sa povećanjem zapremine merne komore kod većine uzoraka opada vrednost efektivne konstante u prilično uskim intervalima, te se u okvirima mernih nesigurnost može reći da su sve vrednosti bile uporedive odnosno ujednačene.

Tabela 11.14 Vrednosti procenjenih početnih koncentracija radona (C_0) i efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}) za uzorak fosfogipsa PG3 razdvojen po frakcijama, određeni aktivnim uređajima RAD7 za dve merne komore različitih zapremina.

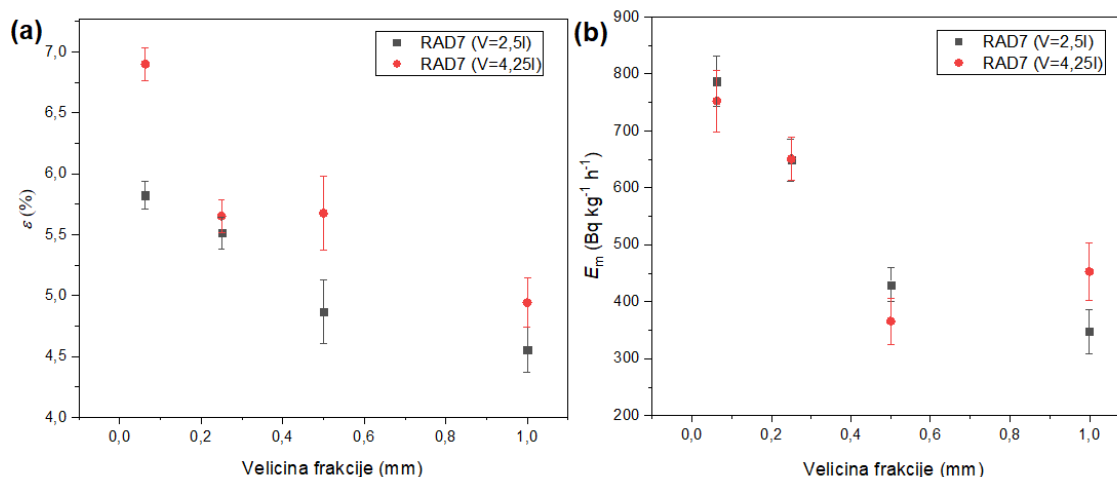
Merni sistem	Frakcija (mm)	C_0 (Bq m^{-3})		λ_{eff} (h^{-1}) $\times 10^{-3}$	
		2,5 l	4,25 l	2,5 l	4,25 l
1/2	1	148±9	92±8	12,4±1,2	14,9±1,5
1	0,5	25±6	0±5	14,8±0,9	10,8±1,0
2	0,25	69±10	8±6	14,5±0,7	14,2±0,7
1	0,063	61±10	57±7	14,5±0,7	11,7±0,7
2	Balk uzorak	24±8	13±6	13,9±0,8	11,3±0,8

Tabela 11.15 Vrednosti integralnih doprinosa efekta povratne difuzije i curenja mernih komora ($\lambda_b + \lambda_l$) ukupnoj efektivnoj konstanti raspada radona, koeficijenta emanacije radona ε (%) za uzorak fosfogipsa PG3 razdvojenog po frakcijama i brzine masene ekshalacije (E_m) određene za dve merne komore različitih zapremina sa dva aktivna uređaja RAD7.

Frakcija (mm)	$(\lambda_b + \lambda_l)$ (h^{-1}) $\times 10^{-3}$		ε (%)		E_m ($\text{Bq kg}^{-1} \text{h}^{-1}$)	
	2,5 l	4,25 l	2,5 l	4,25 l	2,5 l	4,25 l
1	4,8	7,3	4,55±0,19	4,94±0,20	347±38	453±50
0,5	7,2	3,2	4,86±0,26	5,68±0,26	430±30	366±41
0,25	6,9	6,6	5,51±0,13	5,65±0,13	648±37	651±37
0,063	6,9	4,1	5,82±0,11	6,90±0,11	787±44	752±54
Balk uzorak	6,3	3,7	4,58±0,21	5,40±0,21	455±30	436±37

Dobijene vrednosti koeficijenta emanacije radona ukazuju na povećanje njegove vrednosti sa smanjenjem veličine frakcije, Tabela 11.16, Slika 11.6a. Dobijene vrednosti koeficijenta emanacije su u saglasnosti sa ranijim istraživanjima (De Martino et al., 1998; Hilal et al., 2015). Vrednosti koeficijenta emanacije određene u mernoj komori zapremine 4,25 l su veće između 10% i 22% u odnosu na one određene u komori zapremine 2,5 l.

Dobijene vrednosti brzine masene ekshalacije radona opadaju sa porastom veličine frakcije i za obe merne komore dobijene vrednosti su uporedive u okvirima mernih nesigurnosti. Dobijene vrednosti su u saglasnosti sa ranijim istraživanjima (Čeliković et al., 2017; Hilal et al., 2015; Imme et al., 2014).



Slika 11.16 (a) Zavisnost između vrednosti koeficijenta emanacije radona i veličine frakcije; **(b)** zavisnost brzine masene eshalacije od veličine frakcije određene u mernim komorama zapremina 2,5 l i 4,25 l aktivnim uređajem RAD7.

Iz svega analiziranog može se zaključiti da sa smanjenjem veličine frakcije, povećava njegova sposobnost napuštanja zrna i emaniranje u okolni vazduh, jer da bi se to desilo u većim frakcijama, radon mora prvo da migrira u najsitnije pore pa tek onda da difunduje u okolni vazduh, što rezultira manjim koeficijentom emanacije, odnosno smanjenom brzinom ekshalacije. Iz ovog razloga je u građevinarstvu sa stanovišta zaštite od zračenja poželjnije koristiti veće frakcije čime bi se optimizovala izloženost ljudi na najmanji mogući, razuman, prihvatljiv nivo.

Glavne prednosti ovakvog načina merenja emanacije radona iz građevinskih materijala, kako za balk uzorke u prvom delu ovog poglavlja, tako i za frakcije, jesu da se u slučaju merenja aktivnom metodom može proceniti početna koncentracija aktivnosti radona (C_0) kao i efektivna konstanta raspada, što pasivnim metodama nije moguće. Ovo u znatnoj meri može uticati na radiološku karakterizaciju uzorka zbog potencijalne upotrebe u enterijeru u smislu ekshalacije radona iz materijala nečinjenog od fosfogipsa: gips-karton ploča, cigli i sličnih materijala. U slučaju merenja aktivnim uređajem, varijacije efekata povratne difuzije i curenja odnosno efektivne konstante raspada radona mogu stvoriti analizirane poteškoće što može u velikoj meri uticati na vrednosti koeficijenta emanacije, koji raste sa povećanjem zapremine merne komore usled slabljenja efekata povratne difuzije. Efekat curenja zavisi od samog dizajna komore kao i samog eksperimentatora koji vrši zaptivanje merne komore i mernog sistema u celini. Glavna prednost aktivne metode u odnosu na pasivne je što se fitovanjem krive nagomilavanja direktno može izmeriti efektivna konstanta raspada čime se dobila ispravna procena brzine emanacije i faktora emanacije.

Da su merenja izvršena nekom od pasivnih metoda npr. kanisterima sa aktivnim ugljem zasigurno bi se efekat povratne difuzije mogao zanemariti (Yanchao et al., 2020), ali se ne bi mogla izvršiti adekvatna procena efekta curenja merne komore. Dakle, ako bi se pri istim uslovima emanacija merila nekim od pasivnih detektora dobijena brzina ekshalacije bi bila potcenjena. Slično je uočeno i na osnovu dobijenih vrednosti koeficijenta emanacije koje variraju tokom kontinualnih merenja od momenta zatvaranja merne komore u odnosu na dobijene vrednosti izmerene nakon određenog perioda, pošto je bila uspostavljena radioaktivna ravnoteža (nakon 20 dana u ovoj studiji). Potrebno je koristiti merne komore koje su znatno veće zapremine u odnosu na uzorak kako bi se efekat povratne difuzije mogao zanemariti, u suprotnom rezultat koeficijenta emanacije u mnogome zavisi od koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra koji zajedno sa zapreminom

komore utiče na vrednost koeficijenta emanacije radona iz uzorka. Naročito je bitno posvetiti pažnju zaprivanju merne komore, kao i mernog sistema u celosti. Ovim preporukama se može optimizovati sam postupak merenja emanacije radona iz građevinskih materijala, jer se pomenutim preporukama dobija tačniji i precizniji rezultat koeficijenta emanacije radona.

12 Uticaj strukture materijala na emanaciju radona

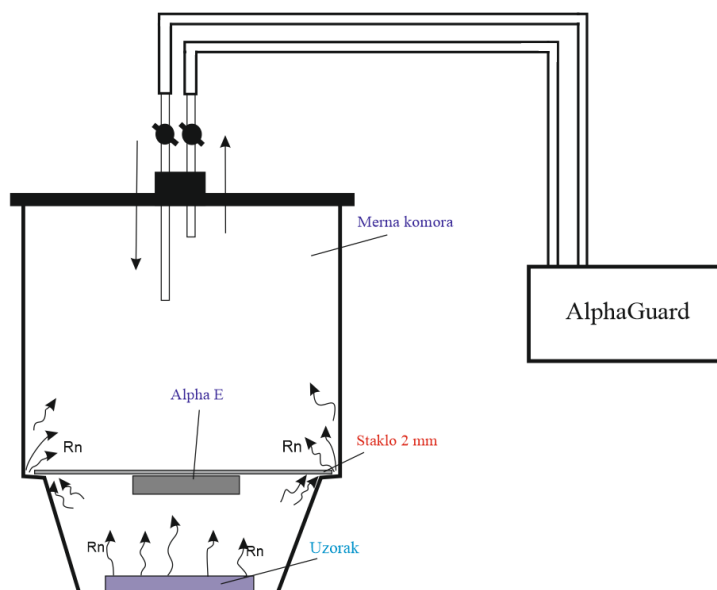
U ovom poglavlju određeni su koeficijenti emanacije radona za odabrane (selektovane) građevinske materijale koji se najčešće koriste u Srbiji za oblaganje podnih površina. Spisak 12 selektovanih uzoraka građevinskih materijala dat je u Tabeli 12.1, sa masama (M) i izmerenim vrednostima koncentracija aktivnosti ^{226}Ra metodom gama spektrometrije. Analizirani su uzorci betona, granita, keramičkih pločica, mermera, crepa i teraco pločica. Praćene su varijacije koeficijenta emanacije tokom vremena merenja za uzorak sa najvećim sadržajem radijuma. Određena je poroznost svih uzoraka metodom apsorpcije vode i živinom porozimetrijom i urađena je strukturna XRD mineraloška i XRF hemijska analiza. Na osnovu dobijenih rezultata, nivo emanacije radona dovođen je u vezu sa strukturom i teksturom analiziranih građevinskih materijala.

Tabela 12.1 Spisak selektovanih uzoraka građevinskih materijala koji se koriste u Srbiji za oblaganje podova u građevinarstvu, mase uzoraka i izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K metodom gama spektrometrije.

Oznaka uzorka	Vrsta uzorka	M (g)	^{226}Ra (Bq kg ⁻¹)	^{232}Th (Bq kg ⁻¹)	^{40}K (Bq kg ⁻¹)
B1	Beton	248,20±0,05	17,1±0,3	13,6±1,0	200±10
KO	Košuljica	204,90±0,05	16,0±0,8	12,4±0,4	191±10
G1	Granit	296,80±0,05	53,7±1,1	51,8±1,4	986±50
G2	Granit	330,00±0,05	298,4±2,2	91,4±1,9	1911±60
F1	Keramička pločica	207,90±0,05	64,6±0,8	57,2±1,8	780±30
F7	Keramička pločica	212,60±0,05	55,3±1,0	47,3±1,4	960±40
F8	Keramička pločica	196,30±0,05	96,9±1,6	69,8±1,9	1020±40
F10	Keramička pločica	234,80±0,05	49,4±0,6	45,4±1,3	668±29
KP	Keramička pločica otporna na hemikalije	248,20±0,05	48,0±1,1	58,1±1,5	820±40
M1	Mermer	310,10±0,05	4,93±0,16	0,55±0,19	17,3±2,6
BC	Stari biber crep	154,30±0,05	40,1±0,6	41,2±1,6	633±29
TP	Teraco pločica	267,80±0,05	34,8±0,4	31,9±0,8	484±21

Većina analiziranih uzoraka sadrži koncentraciju aktivnosti ^{226}Ra oko ili neznatno iznad ili ispod prosečne vrednosti od 50 Bq kg⁻¹ (UNSCEAR, 1993). Jedan uzorak granita G2 sadrži skoro 6 puta veću vrednost ovog radionuklida od prosečne. Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra se kreću u intervalu od 4,93±0,16 Bq kg⁻¹ za uzorak mermera M1 do 298,4±2,2 Bq kg⁻¹ za uzorak granita G2. Vrednosti koncentracija aktivnosti ^{232}Th se kreću u intervalu od 0,55±0,19 Bq kg⁻¹ za uzorak mermera M1 do 91,4±1,9 Bq kg⁻¹ za uzorak granita G2. Kod 5 uzoraka dobijene vrednosti prelaze prosečne vrednosti od 50 Bq kg⁻¹ (UNSCEAR, 1993). Dobijene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{40}K se kreću u intervalu od 17,3±2,6 Bq kg⁻¹ za uzorak mermera M1 do 1020±40 Bq kg⁻¹ za uzorak granita G2. 8 analiziranih uzoraka prelazi prosečnu vrednost za građevinske materijale u svetu od 500 Bq kg⁻¹ (UNSCEAR, 1993), Tabela 12.1.

Može se videti da selektovani uzorci sadrže relativno niske koncentracije aktivnosti ^{226}Ra (osim uzorka granita G2) i ovim dobro reprezentuju materijale ovog tipa koji se koriste u Srbiji za oblaganje podnih površina. Svi uzorci su pre merenja ekshalacije radona sušeni na temperaturi od $105\text{ }^{\circ}\text{C}$ 6-8h kako bi se eliminisao uticaj vlage na ekshalaciju radona iz uzoraka (Faheem and Matiullah, 2008; Hassan et al., 2011; Tuccimei et al., 2006), te se može reći da je sadržaj vlage u svim analiziranim uzorcima $< 1\%$. Sva merenja ekshalacije radona su sprovedena u mernoj komori zapremine 5,4 l aktivnim uređajem RAD7 prema metodologiji opisanoj u poglavljima 8.2 i 11, i komori zapremine 11,4 l aktivnim uređajima AlphaGuard i AlphE (poslednja 2 uređaja su korišćena samo za merenja ekshalacije radona iz uzorka granita G2, Tabela 12.1) Odnos zapremina uzorka i efektivnih zapremina uzorka je takav da uzorak zauzima manje od 10% efektivne zapremine, te se efekat povrtane difuzije može zanemariti (Samuelsson, 1990; Tuccimei et al., 2006). Eksperimentalna postavka merenja ekshalacije radona uređajima AlphaGuard i AlphaE prikazana je na Slici 12.1 i nešto se razlikuje od one merene uređajem RAD7, poglavlja 8.2 i 11.

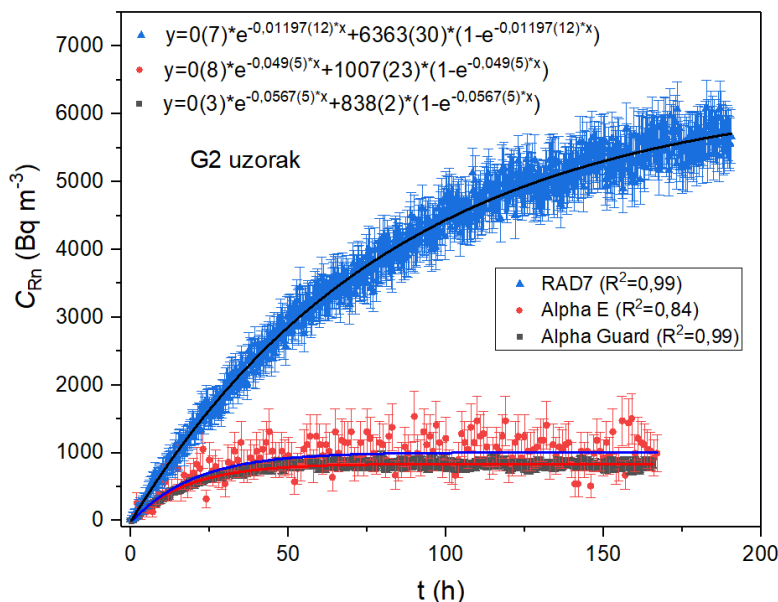


Slika 12.1 Eksperimentalna postavka merenja površinske ekshalacije radona iz uzorka granita G2 uređajima AlphaE i AlphaGuard u mernoj komori ukupne zapremine 11,4 l.

S obzirom da uređaj AlphaE ima dosta manju osetljivost od AlphaGuard-a donja zapremina merne komore je pregrađena staklenom pločom debljine 2 mm na koji je zalepljen uređaj AlphaE, ovim je prividno smanjena zapremina komore za akumuliranje radona, čime se poboljšava statistika detekcije AlphaE uređaja. Staklena ploča se samo prislonjena na donji deo komore, tako da ne predstavlja značajnu barijeru za izlazak radonskog gasa sa strane zidova merne komore. Radon se nakuplja u preostalom delu merne komore i dalje kruži kroz efektivnu zapreminu AlphaGuard sistema, Slika 12.1.

Merenja uređajem RAD7 su izvedena na Departmanu za fiziku u Novom Sadu, dok su merenja uređajima AlphaGuard-om i AlphaE-om izvršena na Odjelu za fiziku u Osijeku, Hrvatska. Najpre je merena ekshalacija radona iz uzorka granita G2 sa sva tri uređaja čiji su rezultati upoređivani. Merenja su izvršena za uzorak u obliku ploče, ali i za izdrobljeni uzorak. Krive ekshalacije radona za uzorak granitne ploče prikazane su na Slici 12.2, a za izdrobljen uzorak

izmeren aktivnim uređajem RAD7 na Slici 12.3. Ciklusi merenja radona iz granite ploče sa sva tri merna instrumenta su bili različiti i iznosili su 15 minuta, 10 minuta i 1 h za uređaje RAD7, AlphaGuard i AlphaE, respektivno, Slika 12.2. Ekshalacija radona izdrobljenog uzorka G2 merena je uređajem RAD7 u ciklusima po 1h, Slika 12.3.



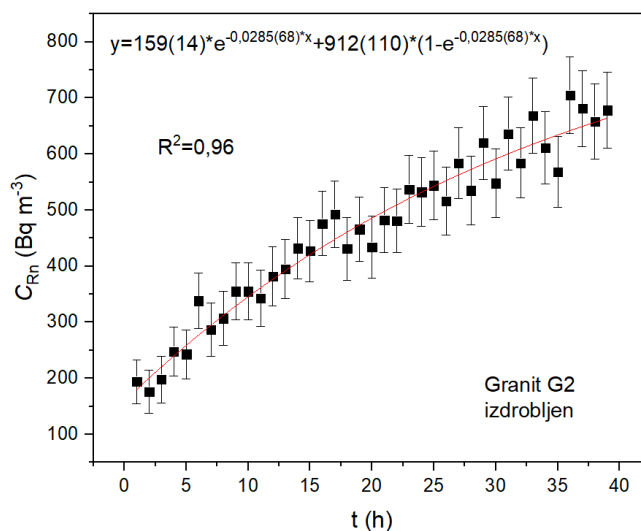
Slika 12.2 Krive ekshalacije radona iz uzorka granitne ploče G2 merene sa tri različita aktivna uređaja RAD7, AlphaE i AlphaGuard u ciklusima po 15 minuta, 1 h, i 10 minuta, respektivno.

Tabela 12.2 Parametri korišćeni za određivanje koeficijenta emanacije radona (ε) uzorka granita-G2 u obliku ploče i izdrobljenom uzorku sa tri različita aktivna uređaja RAD7, AlphaE i AlphaGuard, kao i vrednosti efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}) i njenih doprinosa od strane povratne difuzije i curenja komore ($\lambda_1 + \lambda_b$).

Uređaj	A_{Ra} (Bq kg ⁻¹)	t (h)	t_c (min)	V_{eff} (l)	C_{eq} (Bq m ⁻³)	λ_{eff} (h ⁻¹) $\times 10^{-3}$	$\lambda_1 + \lambda_b$ (h ⁻¹) $\times 10^{-3}$	ε (%)
G2 ploča								
RAD7	298,4±2,2	190,5	15	5,96	6363±30	11,97±0,12	4,37	13,81±0,10
AlphaE	298,4±2,2	167	60	11,40	1007±23	49±5	41,4	4,18±0,03
Alpha Guard	298,4±2,2	165,67	10	11,52	838±2	56,7±0,5	49,4	3,52±0,03
G2 izdrobljen								
RAD7	298,4±2,2	39	60	6,20	912±110	28,5±6,8	20,9	5,74±0,04

Zapremina uzorka granita oblika diska je oko 0,44 l (15 cm u prečniku i 2,5 cm debljine), a zapremine korišćenih mernih komora 5,4 l i 11,4 l. Uzimanjem ovoga u obzir, kao i aktivnih zapremina korišćenih uređaja dobija se efektivna zapremina mernog sistema od 5,96 l, 11,4 l i 11,52 l za merne sisteme sa aktivnim uređajima RAD7, AlphaE, AlphaGuard, respektivno. Zapremina izdrobljenog uzorka je oko 0,196 l čija je emanacija radona merena u komori zapremine 5,4 l, te efektivna zapremina mernog sistema sa aktivnim uređajem RAD7 iznosi 6,20 l. Masa uzorka granitne ploče iznosila je 920g, a izdrobljenog uzorka 330 g.

Sa Slike 12.2 se može videti da je stepen emanacije radona iz uzorka granitne ploče bio veći pri merenju sa RAD7 uređajem u mernoj komori zapremine 5,4 l, u odnosu na stepen emanacije za krive dobijene uređajima AlphaGuard i AlphaE koje su dale približnije vrednosti. Može se uočiti i to da je statistika odbroja kod AlphaE uređaja bila dosta slabija u odnosu na vrednosti dobijene sa druga dva uređaja, što potvrđuje i niži korelacioni faktor krive emanacije ($R^2=0,84$) u odnosu na druge dve krive ($R^2=0,99$).



Slika 12.3 Kriva ekshalacije radona za izdrobljeni uzorak granita G2 izmerena aktivnim uređajem RAD7 za vreme od 39 h u ciklusima po 1h.

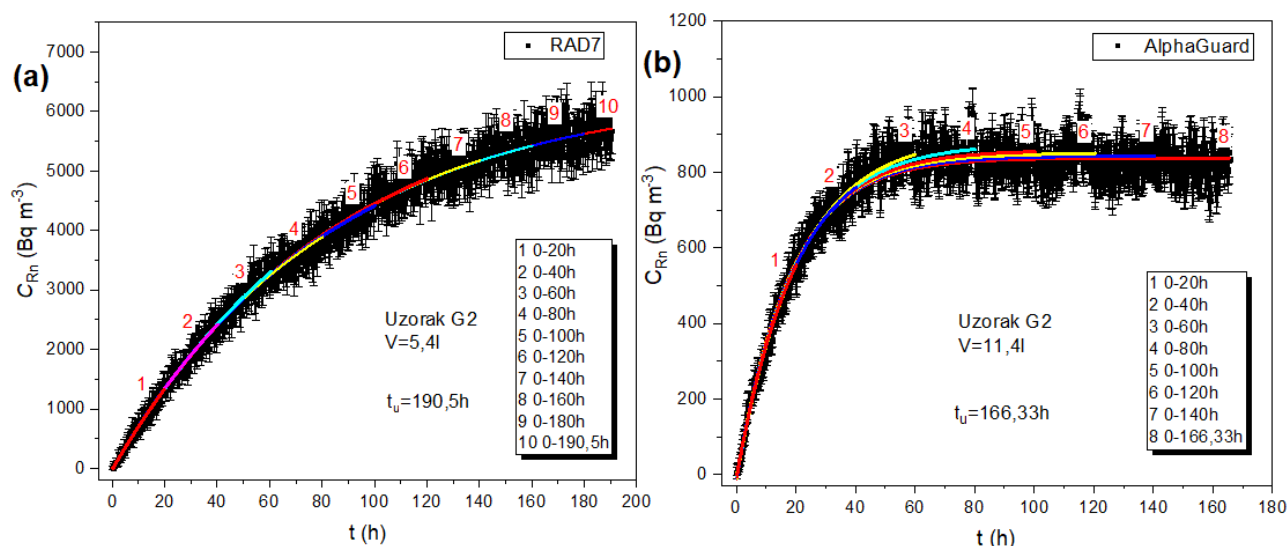
U Tabeli 12.2 su date vrednosti ravnotežnih koncentracija radona (C_{eq}), efektivnih konstanti raspada radona (λ_{eff}) kao i dobijene vrednosti koeficijenta emanacije za sva tri uređaja. Ravnotežne koncentracije radona su pratile trend da manja zapremina može da akumulira veću koncentraciju radona za kraće vreme, što nije bio slučaj kod uređaja AlphaE gde je bilo evidentno prisutno curenje radona u drugi deo merne komore, tako da su i rezultati relativno približni sa vrednošću dobijenu uređajem AlphaGuard. Kod procene emanacionog koeficijenta radona za uređaj AlphaE korišćena je ukupna zapremina merne komore od 11,4 l, imajući na umu da je radon kružio iz jednog u drugi deo komore i obrnuto. Dobijene vrednosti koeficijenta emanacije se kreću u intervalu od $3,52 \pm 0,03\%$ (određen uređajem AlphaGuard) do $13,81 \pm 0,10\%$ (određen uređajem RAD7). Dobijene vrednosti su u opsegu za građevinske materijale od (1 – 30)% (Bikit et al., 2011), ali one same predstavljaju nesklad jer je reč o jednom istom građevinskim materijalu. Dobijene vrednost koeficijenta emanacije radona uređajima AlphaE i AlphaGuard su 3,3 i 3,9 puta manja od one dobijene uređajem RAD7 za uzorak ploče G2.

Vrednosti integralnih doprinosa efekta povratne difuzije i curenja komore ($\lambda_1 + \lambda_b$) za uređaje AlphaE i AlphaGuard za uzorak ploče su 9,5 i 11,2 puta veći od istog doprinosa određenog uređajem RAD7 što je imalo direktne posledice, pre svega, na vrednosti ravnotežnih koncentracija radona. Zbog navedenih efekata, kod uzorka ploče, uočeno je nastupanje rane radioaktivne ravnoteže koja je kod uređaja AlphaE i AlphaGuard nastupila za oko 90 h (3,8 dana) dok je u sistemu sa RAD7 uređajem ravnoteža nastupila nakon 400 h (16,7 dana).

Dobijena vrednost ravnotežne koncentracije radona za izdrobljeni uzorak granita je oko 7 puta manja u odnosu na onu dobijenu kod uzorka ploče. Ovo se objašnjava i smanjenjem difuzione dužine radona usled povećanja gustine kod izdrobljenog uzorka u odnosu na balk uzorak ploče.

Vrednost doprinosa efekta povratne difuzije i cureja komore ($\lambda_t + \lambda_b$) za uzorak granita u izdrobljenom stanju je oko 5 puta veća u odnosu na vrednost dobijenu za ploču granita (određeni uređajem RAD7). Ovo je direktno uticalo na to da koeficijent emanacije radona ima 2,4 puta manju vrednost kod izdrobljenog uzorka nego kod uzorka ploče, što se direktno pripisuje izraženosti prapatnih efekata povratne difuzije i curenja.

U poređenju vrednosti koeficijenta emanacije radona za izdrobljeni uzorak izmeren RAD7 uređajem i uzorak ploče, izmeren AlphaE i AlphaGuard uređejima, može se videti da je za uzorak ploče veća vrednost koeficijenta emanacije, gde su i efekti curenja i povratne difuzije kod njega manje izraženi, što potvrđuje činjenicu da je i emanacija izraženja. Smanjenje curenja i povratne difuzije dovodi do povećanja koeficijenta emanacije radona. Ovo je u saglasnosti sa istraživanjem sprovedenim kod uzorka fosfogipsa u poglavlju 11. Da bi radon u kompaktnom uzorku izašao na površinu mora da emanira u pore materijala i da difunduje do površine, što se kod izdrobljenog uzorka odvija sa manje izraženim efektom difuzije, imajući u vidu da izdrobljeni uzorak ima veću površinu za ekshalaciju od uzorka u obliku diska. Veća poroznost samog materijala automatski osigurava i veću difuzionu dužinu radona u odnosu na izdrobljeni uzorak, što je pored efekata curenja i povratne difuzije još jedan od razloga većeg koeficijenta emanacije radona kod uzorka ploče u odnosu na izdrobljen uzorak ako se uporede rezultati dobijeni uređajem RAD7. Tipična difuziona dužina radona za granit poroznosti oko 2% iznosi oko 20 cm (Kumar and Chauhan, 2014).



Slika 12.4 Varijacije ekshalacije radona iz uzorka granitne ploče G2 u toku vremena za merenja sprovedena uređajima (a) RAD7 i (b) AlphaGuard.

Dakle, može se zaključiti da intenzivnije izražavaje doprinosa ova dva efekta dovodi do postizanja rane radioaktivne ravnoteže, što daje značajan doprinos smanjenju koeficijenta emanacije radona. Analizirani efekti se mogu smatrati glavnim uzrokom za neslaganje dobijenih vrednosti koeficijenta emanacije radona za analizirani uzorak granita. Treba naglasiti da je masa uzorka ploče oko 2,8 puta veća u odnosu na izdrobljeni uzorak, ali i to da je kod izdrobljenog uzorka veća efektivna površina sa koje se vrši ekshalacija radona. Da je ovakvo merenje bilo sprovedeno nekom od pasivnih metoda ekshalacija radona bi bila zasigurno veća jer bi se minimizirali navedeni efekti.

Da bi se analizirala neslaganja u vrednostima koeficijenata emanacije radona dobijenih na osnovu merenja uređajuma RAD7 i AlphaGuard-om krive ekshalacije su fitovane za različita vremena merenja kako bi se pratila promena efektivnih konstanti raspada, kao i koeficijenata emanacije i brzine površinske ekshalacije radona. Ukupno vreme merenja ekshalacije radona uređajem RAD7 iznosilo je 190,5h, dok je uređajem AlphaGuard to vreme iznosilo 166,33h. Vremenski opseg merenja je podeljen na 10 odnosno 8 vremenskih intervala po 20 h tokom kojih su praćene vrednosti ravnotežnih koncentracija aktivnosti radona, efektivne konstante raspada, koeficijenta emanacije kao i brzine površinske ekshalacije radona, Slika 12.4. Dobijene vrednosti ovih veličina za RAD7 i AlphaGuard uređaj date su u Tabelama 12.3 i 12.4.

Tabela 12.3 Varijacije vrednosti ravnotežne koncentracije aktivnosti radona (C_{eq}), efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}), doprinosa koeficijenta curenja i povratne difuzije ($\lambda_b + \lambda_l$) i brzine površinske ekshalacije (E_s) za uzorak granita G2 u različitim vremenskim intervalima merenja uređajem RAD7.

Kriva broj	Vremenski interval (h)	C_{eq} ($Bq\ m^{-3}$)	λ_{eff} (h^{-1}) $\times 10^{-3}$	$\lambda_b + \lambda_l$ (h^{-1}) $\times 10^{-3}$	ε (%)	E_s ($Bq\ m^{-2}\ h^{-1}$)
1	0-20	6715 \pm 523	11,2 \pm 5,8	3,60	14,58 \pm 0,11	9,5 \pm 5,3
2	0-40	6323 \pm 648	12,04 \pm 1,4	4,44	13,73 \pm 0,10	9,6 \pm 1,6
3	0-60	6790 \pm 321	11,1 \pm 0,7	3,50	14,74 \pm 0,10	9,54 \pm 0,8
4	0-80	6132 \pm 145	12,6 \pm 0,4	5,00	13,31 \pm 0,10	9,8 \pm 0,4
5	0-100	6243 \pm 98	12,3 \pm 0,3	4,70	13,55 \pm 0,10	9,7 \pm 0,3
6	0-120	6445 \pm 75	11,7 \pm 0,2	4,10	13,99 \pm 0,10	9,54 \pm 0,21
7	0-140	6379 \pm 54	11,9 \pm 0,2	4,30	13,85 \pm 0,10	9,61 \pm 0,19
8	0-160	6355 \pm 42	11,9 \pm 0,2	4,30	13,80 \pm 0,10	9,57 \pm 0,18
9	0-180	6359 \pm 34	11,98 \pm 0,13	4,38	13,81 \pm 0,10	9,64 \pm 0,12
10	0-190,5	6363 \pm 30	11,97 \pm 0,12	4,37	13,81 \pm 0,10	9,64 \pm 0,11

Tabela 12.4 Varijacije vrednosti ravnotežne koncentracije aktivnosti radona (C_{eq}), efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}), doprinosa koeficijenta curenja i povratne difuzije ($\lambda_b + \lambda_l$) i brzine površinske ekshalacije (E_s) za uzorak granita G2 u različitim vremenskim intervalima merenja uređajem AlphaGuard.

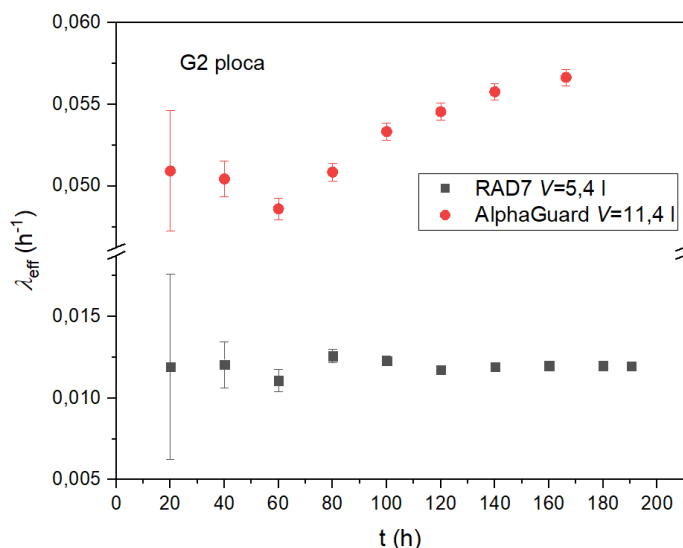
Kriva broj	Vremenski interval (h)	C_{eq} ($Bq\ m^{-3}$)	λ_{eff} (h^{-1}) $\times 10^{-3}$	$\lambda_b + \lambda_l$ (h^{-1}) $\times 10^{-3}$	ε (%)	E_s ($Bq\ m^{-2}\ h^{-1}$)
1	0-20	869 \pm 42	50,9 \pm 3,7	43,30	3,65 \pm 0,03	10,82 \pm 1,01
2	0-40	877 \pm 10	50,4 \pm 1,1	42,80	3,68 \pm 0,03	10,81 \pm 0,28
3	0-60	896 \pm 5	48,6 \pm 0,7	41,00	3,76 \pm 0,03	10,65 \pm 0,18
4	0-80	876 \pm 3	50,9 \pm 0,6	43,30	3,68 \pm 0,03	10,91 \pm 0,14
5	0-100	858 \pm 2	53,3 \pm 0,5	45,70	3,60 \pm 0,03	11,19 \pm 0,12
6	0-120	851 \pm 2	54,6 \pm 0,5	47,00	3,57 \pm 0,03	11,36 \pm 0,12
7	0-140	843 \pm 2	55,7 \pm 0,5	48,10	3,54 \pm 0,03	11,48 \pm 0,11
8	0-166,33	838 \pm 2	56,7 \pm 0,5	49,10	3,52 \pm 0,03	11,62 \pm 0,11

Dobijene vrednosti početnih koncentracija aktivnosti tokom merenja ekshalacije radona uređajem RAD7 bile su u proseku $0\pm 10\ Bq\ m^{-3}$, što odgovara standardnim koncentracijama radona u laboratorijskih uslovima. Vrednosti ravnotežnih koncentracija aktivnosti radona se kreću u intervalu od $6132\pm 145\ Bq\ m^{-3}$ do $6790\pm 321\ Bq\ m^{-3}$ sa vrednostima efektivnih konstanti raspada u intervalu od $(11,2\pm 5,8)\cdot 10^{-3}\ h^{-1}$ do $(12,04\pm 1,4)\cdot 10^{-3}\ h^{-1}$. Prosečna vrednost efektivne konstante raspada iznosila je $11,87\pm 0,45\cdot 10^{-3}\ h^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Vrednosti koeficijenta emanacije se kreću u opsegu od $13,31\pm 0,10\%$ do $14,58\pm 0,11\%$. Prosečna vrednost

koeficijenta emanacije radona iznosi $13,92 \pm 0,43\%$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija) za 10 analiziranih vremenskih intervala ekshalacije radona.

Može se videti da vrednosti svih veličina nisu imale naročite varijacije, i mogu se smatrati relativno konstantnim tokom vremena, s obzirom da efekti povratne difuzije i curenja nisu varirali u širokom opsegu. Vrednosti integralnih doprinosa curenja i povratne difuzije radona nisu bili toliko izraženi i mogu se takođe smatrati konstantnim tokom čitavog vremena merenja ekshalacije radona Slike 12.4 i 12.5, Tabela 12.3.

Površina uzorka G2 sa koje se vrši ekshalacija radona iznosila je $S=4,71 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2$. Na osnovu ove vrednosti procenjene su vrednosti brzina površinskih ekshalacija radona za analizirane vremenske opsege merenja. Dobijene vrednosti se kreću u opsegu od $9,5 \pm 5,3 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ do $9,8 \pm 0,4 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. Prosečna vrednost brzine površinske ekshalacije radona iznosila je $9,6 \pm 0,08 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija). Vrednosti brzina površinskih ekshalacija određeni uređajem RAD7 se takođe mogu smatrati konstantnim tokom vremena, što je takođe posledica konstantnosti efektivne konstante raspada radona.

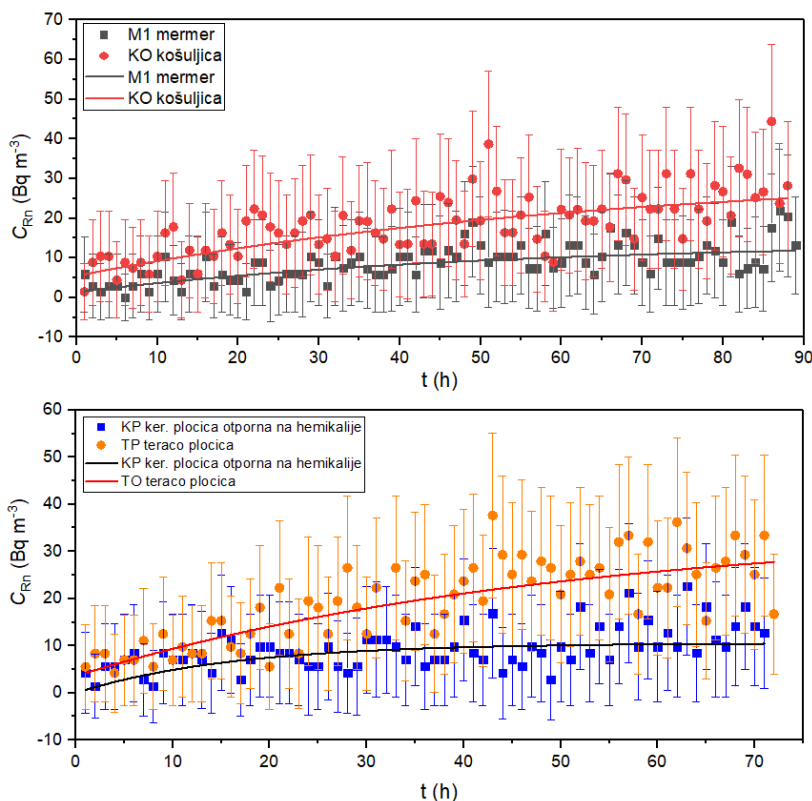


Slika 12.5 Zavisnost efektivne konstante raspada radona (λ_{eff}) za zorak granitne ploče G2 od vremena (t) za vrednosti određene uređajima RAD7 i Alpha Guard.

Dobijene vrednosti početnih koncentracija aktivnosti tokom merenja ekshalacije radona uređajem AlphaGuard bile su u proseku $0 \pm 3 \text{ Bq m}^{-3}$. Vrednosti ravnotežnih koncentracija aktivnosti radona se kreću u intervalu od $843 \pm 2 \text{ Bq m}^{-3}$ do $896 \pm 5 \text{ Bq m}^{-3}$, što je preko 7 puta niže od vrednosti dobijenih uređajem RAD7 u mernoj komori 2,1 puta manje zapremine. Vrednosti efektivnih konstanti raspada se kreću u intervalu od $(48,6 \pm 0,7) \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$ do $(56,7 \pm 0,5) \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$. Prosečna vrednost efektivne konstante raspada iznosila je $(53 \pm 3) \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija) i za oko 10 puta su vrednosti više od onih dobijenih uređajem RAD7 u istim vremenskim intervalima merenja. Sa Slike 12.5 se može videti da vrednosti efektivne konstante raspada variraju u dosta širem opsegu vrednosti u odnosu na one dobijene uređajem RAD7 gde se može reći da su bile skoro konstantne. Na osnovu dobijenih vrednosti efektivnih konstanti se može videti da su vrednosti prilično visoke u poređenju sa istim intervalom merenja uređajem RAD7, uzrok ovakvih razlika se može dovesti u vezu sa samom eksperimentalnom postavkom. Vrednosti koeficijenta emanacije se kreću u opsegu od $3,52 \pm 0,03\%$ do $3,76 \pm 0,03\%$. Prosečna vrednost koeficijenta emanacije radona iznosi $3,62 \pm 0,08\%$ (srednja vrednost \pm standardna devijacija) za 8

analiranih vremenskih intervala ekshalacije radona i oko 4 puta je niža od vrednosti u istim intervalima merenja uređajem RAD7.

Na osnovu dobijenih vrednosti može se zaključiti da efekti povratne difuzije i curenja u mnogome zavise od same eksperimentalne postavke. Imajući u vidu da su ovi efekti bili dosta manje izraženi u mernoj komori zapremine 2,1 puta manje zapremine i bili praktično konstantni za čitav interval merenja, dolazi se do zaključka da eksperimentalna postavka merenja u komori zapremine 11,4 l nije najidealnija za ovakvu vrstu merenja i određivanje koeficijeta emanacije na ovakav način. Izraženosti efekata curenja i povratne difuzije 10 puta u odnosu na RAD7 sistem merenja, doveli su do akumulacija radona u pregrađenom delu komore koji je poboljšao statistiku odbroja kod uređaja AlphaE u odnosu na prvobitne pokušaje, ali sve skupa nije dalo pouzdane rezultate, jer je vrednost koeficijeta emanacije oko 2,4 puta niža od vrednosti dobijene uređajem RAD7 sa 10 puta manje izraženim efektima curenja i povratne difuzije. Potrebno je obaviti opsežnija istraživanja, gde bi se izbeglo pregrađivanje merne komore čime bi se mogli minimizirati efekti curenja i povratne difuzije koji su uticali na smanjenje koeficijeta emanacije radona. Ovim bi se zasigurno izbegla pojava rane radioaktivne ravnoteže i smanjio uticaj uočenih efekata koji su direktna posledica pregrađivanja merne komore staklenom pločom. Odavde se može zaključiti da je realniji i bolji odabir eksperimentalne postavke za određivanje koeficijeta emanacije postavka sa uređajem RAD7, uz dobru zaptivenost merne komore i ostalih integralnih delova mernog sistema čime se minimizira efekat curenja radona.



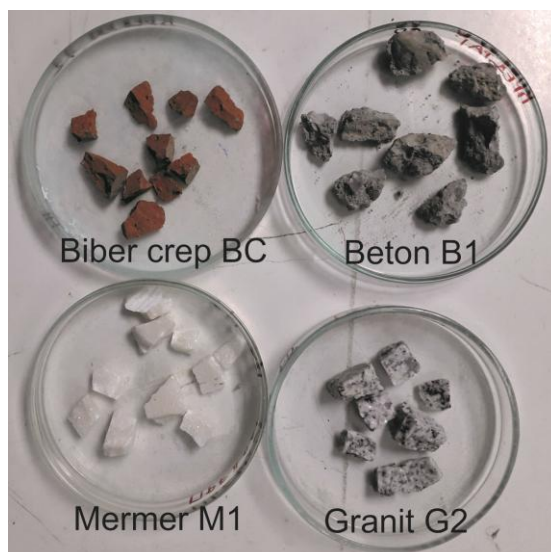
Slika 12.6 Krive ekshalacije radona za 4 uzorka građevinskih materijala koji se koriste za oblaganje podova izmerene u ciklusima po 1h izmerene aktivnim uređajem RAD7.

Pošto je ustanovljen najbolji odabir eksperimentalne postavke za merenje ekshalacije radona, kod svih ostalih uzoraka koji imaju manji sadržaj ^{226}Ra ekshalacija radona ostalih 11 uzoraka iz

Tabele 12.1 je sprovedena uređajem RAD7 u mernoj komori zapremine 5,4 l, prema istoj eksperimentalnoj postavci. Tipične krive ekshalacije radona za 4 analizirana uzorka građevinskih materijala prikazane su na Slici 12.6. Mase analiziranih uzoraka iz kojih se vršila ekshalacija, ravnotežnih koncentracija radona dobijenih fitovanjem krivih ekshalacije i vrednosti koeficijena emanacije dati su u Tabeli 12.5.

Mase analiziranih uzoraka su se kretale u opsegu od 150 g – 300 g, dok je izmerena koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima bila u rasponu od $4,93 \pm 0,16 \text{ Bq kg}^{-1}$ kod uzorka mermera M1 do $298,4 \pm 2,2 \text{ Bq kg}^{-1}$ kod uzorka granita G2. Izmerene ravnotežne koncentracije aktivnosti radona se kreću u intervalu od $10,6 \pm 0,9 \text{ Bq m}^{-3}$ kod uzorka keramičke pločice otporne na hemikalije KP do $912 \pm 110 \text{ Bq m}^{-3}$ kod uzorka granita G2. Na osnovu dobijenih ravnotežnih vrednosti koncentracija aktivnosti određene su vrednosti koeficijena emanacije radona prema relaciji (3.38) (poglavlje 3.2.2) i dobijene vrednosti se kreću u intervalu od $0,552 \pm 0,013\%$ za uzorak keramičke pločice otporne na hemikalije KP do $6,05 \pm 0,30\%$ za uzorak cementne košuljice. Dobijene vrednosti koeficijena emanacije za 8 analiziranih uzoraka su u standardnom opsegu za građevinske materijale, (1 – 30)% (Bikit et al., 2011) dok su dobijene vrednosti ispod 1% kod uzoraka keramičkih pločica F1, F10 i KP kao i kod uzorka granita G1, Tabela 12.5. Uočene niske vrednosti koeficijenta emanacije radona za uzorke keramičkih pločica su uporedive sa rezultatima u istraživanju (Verità et al., 2009). Ostale dobijene vrednosti su uporedive sa vrednostima datim u publikacijama za iste vrste materijala (Al-Jarallah, 2001; Bikit et al., 2011, Del Claro et al., 2017; Righi and Bruzzi, 2006).

Vrednosti ukupne poroznosti analiziranih materijala određenih metodom živine porozimetrije (P_{Hg}) i metodom apsorpcije vode prema ASTM C373-88 metodi (P_{ASTM}) sa vrednostima koeficijena apsorpcije vode prema SRPS EN-771-1 i ASTM C373-88 metodama (A_{EN} , A_{ASTM}) date su u Tabeli 12.5. Vrednosti zapremine otvorenih pora (V_{op}), kao i gustine zrnaca i balk gustine materijala (ρ_s , ρ_b) prema ASTM C373-88 metodi zajedno sa vrednostima medijarnih prečnika pora ($2r$) i ukupnim površinama pora (S_{uk}) u materijalu date su u Tabeli 12.6.



Slika 12.7 Izgled nekih od uzoraka građevinskih materijala pripremljenih za živinu porozimetriju.

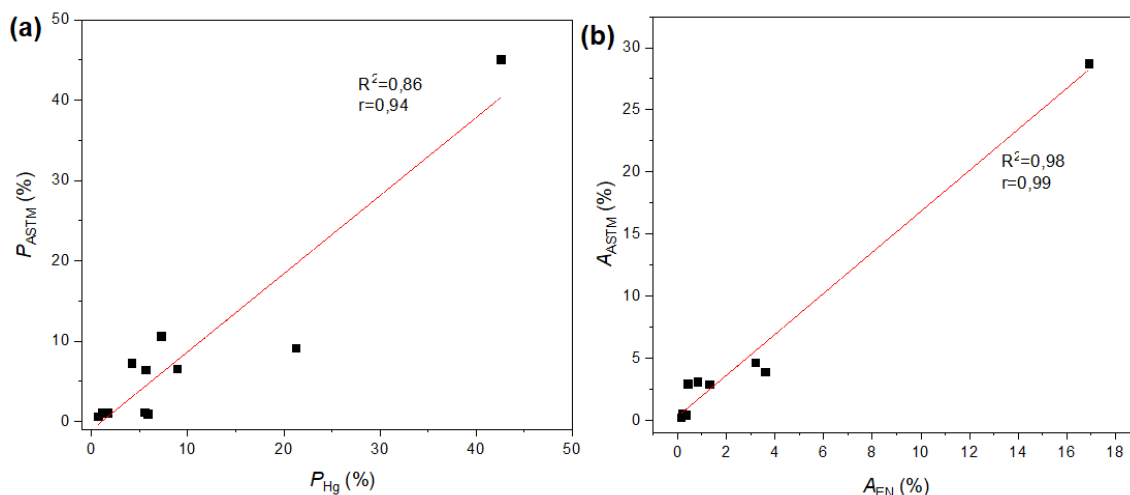
Tabela 12.5 Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra metodom gama spektrometrije, procenjene ravnotežne koncentracije radona (C_{eq}) uređajem RAD7 u mernoj komori zapremine 5,4 l, vrednosti emanacionog koeficijenta radona (ε) za 12 selektovanih uzoraka građevinskih materijala koji se koriste u Srbiji kao podne obloge. Date su takođe i vrednosti poroznosti određene metodom živine porozimetrije (P_{Hg}) i metodom apsorpcije vode ASTM C373-88 (P_{ASTM}), kao i vrednosti koeficijenata apsorpcije vode prema standardima EN-771-1 (A_{EN}) i ASTM C373-88 (A_{ASTM}).

Oznaka uzorka	Vrsta uzorka	M (g)	^{226}Ra (Bq kg^{-1})	C_{eq} (Bq m^{-3})	ε (%)	P_{Hg} (%)	P_{ASTM} (%)	A_{EN} (%)	A_{ASTM} (%)
B1	Beton	248,2	17,1±0,3	38,03±1,43	5,56±0,10	21,2213	9,15	3,60	3,90
KO	Košuljica	204,9	16,0±0,8	32±9	6,05±0,30	25,1130	-	-	-
G1	Granit	296,8	53,7±1,1	16,2±0,5	0,630±0,013	1,6581	1,10	0,25	0,42
G2	Granit	330,0	298,4±2,2	912±110	5,74±0,04	1,1125	1,12	0,33	0,45
F1	Keramička pločica	207,9	64,6±0,8	14,68±1,86	0,678±0,08	8,9165	6,60	1,31	2,92
F7	Keramička pločica	212,6	55,3±1,0	23,25±0,96	1,23±0,02	5,5123	1,16	0,19	0,52
F8	Keramička pločica	196,3	96,9±1,6	30,91±0,76	1,01±0,02	5,8252	0,96	-	0,41
F10	Keramička pločica	234,8	49,4±0,6	13,76±0,81	0,736±0,009	5,6066	6,43	0,42	2,93
KP	Keramička pločica otporna na hemikalije	248,2	48,0±1,1	10,6±0,9	0,552±0,013	4,1765	7,32	0,82	3,10
M1	Mermer	310,1	4,93±0,16	13,9±3,1	5,64±0,18	0,6646	0,67	0,14	0,25
BC	Stari biber crep	154,3	40,1±0,6	27,1±0,8	2,72±0,04	42,5618	45,12	16,90	28,76
TP	Teraco pločica	267,8	34,8±0,4	35±8	2,53±0,03	7,2388	10,64	3,20	4,65

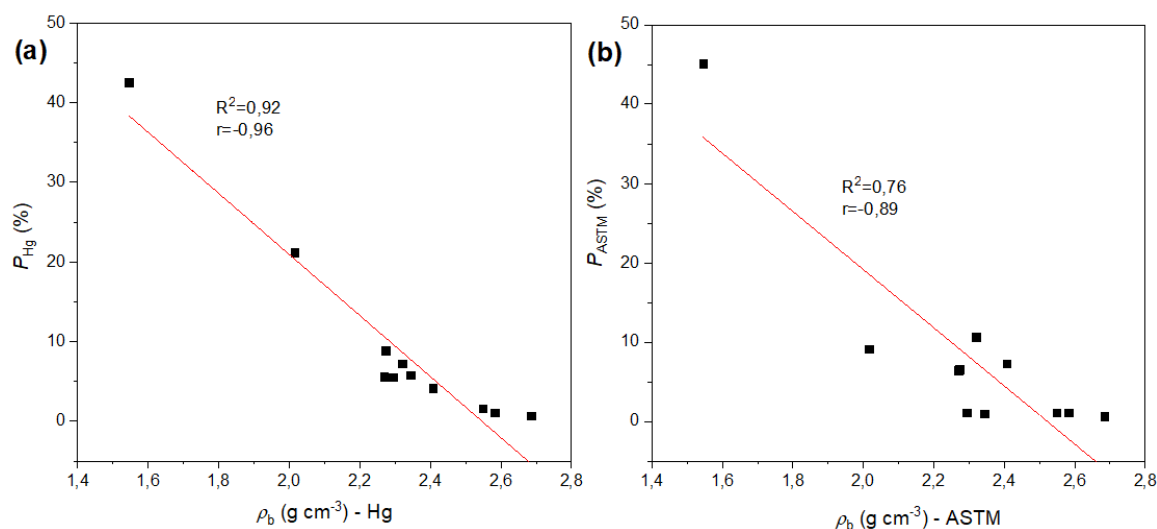
Tabela 12.6 Vrednosti zapremine uzorka (V) i otvorenih pora (V_{op}), privodne (ρ_s) i gustine balk uzorka (ρ_b) određene prema ASTM C373-88 standardu kao i medijarne vrednosti prečnika pora ($2r$) i ukupne površine pora (S_{uk}) određeni metodom živine porozimetrije za 12 selektovanih uzoraka građevinskih materijala.

Oznaka uzorka	Vrsta uzorka	V (cm^3) - ASTM	V_{op} (cm^3) - ASTM	ρ_s (g cm^{-3}) - ASTM	ρ_b (g cm^{-3}) - ASTM	ρ_b (g cm^{-3}) - Hg	$2r$ (μm) - Hg	S_{uk} ($\text{m}^2 \text{g}^{-1}$) - Hg
B1	Beton	79,98	7,32	2,20	2,00	2,0159	0,6676	4,186
KO	Košuljica	-	-	-	-	1,8431	1,6369	1,404
G1	Granit	23,66	0,26	2,62	2,60	2,5478	13,0821	0,028
G2	Granit	12,46	2,52	2,52	2,49	2,5827	13,0965	0,041
F1	Keramička pločica	31,97	2,11	2,42	2,26	2,2730	0,7066	0,566
F7	Keramička pločica	22,33	0,26	2,28	2,26	2,2936	0,0411	2,621
F8	Keramička pločica	29,66	0,28	2,30	2,28	2,3436	0,102	1,023
F10	Keramička pločica	22,24	1,43	2,35	2,19	2,2695	0,1305	1,363
KP	Keramička pločica otporna na hemikalije	55,17	4,04	2,55	2,36	2,4073	0,1491	1,883
M1	Mermer	14,91	0,10	2,69	2,67	2,6852	37,6961	0,006
BC	Stari biber crep	17,64	7,96	2,86	1,57	1,5449	0,851	2,868
TP	Teraco pločica	30,83	3,28	2,56	2,29	2,3191	0,0188	3,124

Pre početka merenja poroznosti metodom živine porozimetrije uzorci su sušeni 45 minuta na 105 °C. Izgled pripremljenih uzoraka prikazan je na Slici 12.7. Uvek su birani komadi materijala za manje zapremine penetrometara kako bi se optimizovala potršnja žive.



Slika 12.8 (a) Korelacija između poroznosti materijala određene metodom apsorpcije vode i živine porozimetrije prema ISO 15901-1 standardu; (b) korelacija apsorpcionih koeficijeneata vode za selektovane građevinske materijale prema metodama ASTM C373-88 i SRPS EN 771-1 za 11 selektovanih uzoraka građevinskih materijala.



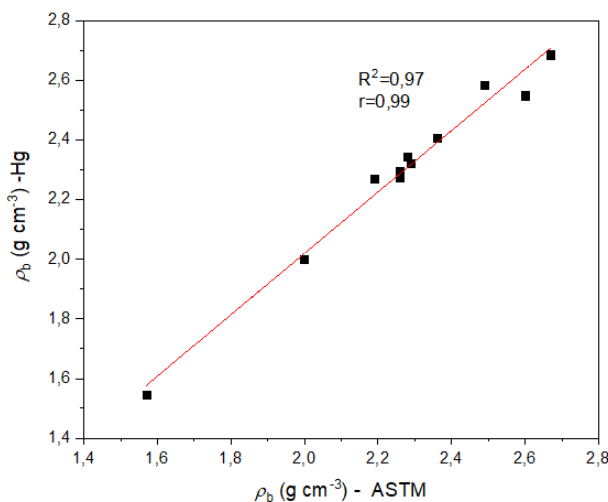
Slika 12.9 Korelacija između otvorene poroznosti određene metodom živine porozimetrije (P_{Hg}) i gustine (ρ) selektovanih građevinskih materijala iz Tabele 12.5, određene sa dve različite metode.

Vrednosti ukupne poroznosti (mezo i makro pora) dobijene metodom živine porozimetrije, za analizirane uzorke, kreću se u intervalu od 0,6646% za uzorak mermera M1 do 42,5618% za uzorak biber crepa BC. Vrednosti ukupne poroznosti (makro pora) dobijene metodom apsorpcije vode prema ASTM C373-88 metodi kreću se u intervalu od 0,67% za uzorak mermera M1 do 45,12% za uzorak biber crepa BC, što je uporedivo sa vrednostima živine porozimetrije. Dobijene vrednosti koeficijeneata apsorpcije vode su više kod onih određenih metodom ASTM C373-88 imajući u vidu da je kuvanje uzoraka doprinelo prodoru vode i u sitnije pore (forsirano upijanje

vode), što nije moguće kod metode SRPS EN-771-1 i što je glavni uzrok razlike u rezultatima. Na Slici 12.8 date su korelacije između otvorene poroznosti određene metodom živine porozimetrije (P_{Hg}) i metodom apsorpcije vode (P_{ASTM}) kao i korelacije apsorpcionih koeficijenata vode prema 2 različite metode (A_{ASTM} i A_{EN}). Dobijene su relativno jake korelacije sa faktorima korelacije $R^2=0,84$ i $R^2=0,98$, što potvrđuju i visoke vrednosti Pirsonovih koeficijenata ($r=0,94$ i $r=0,99$).

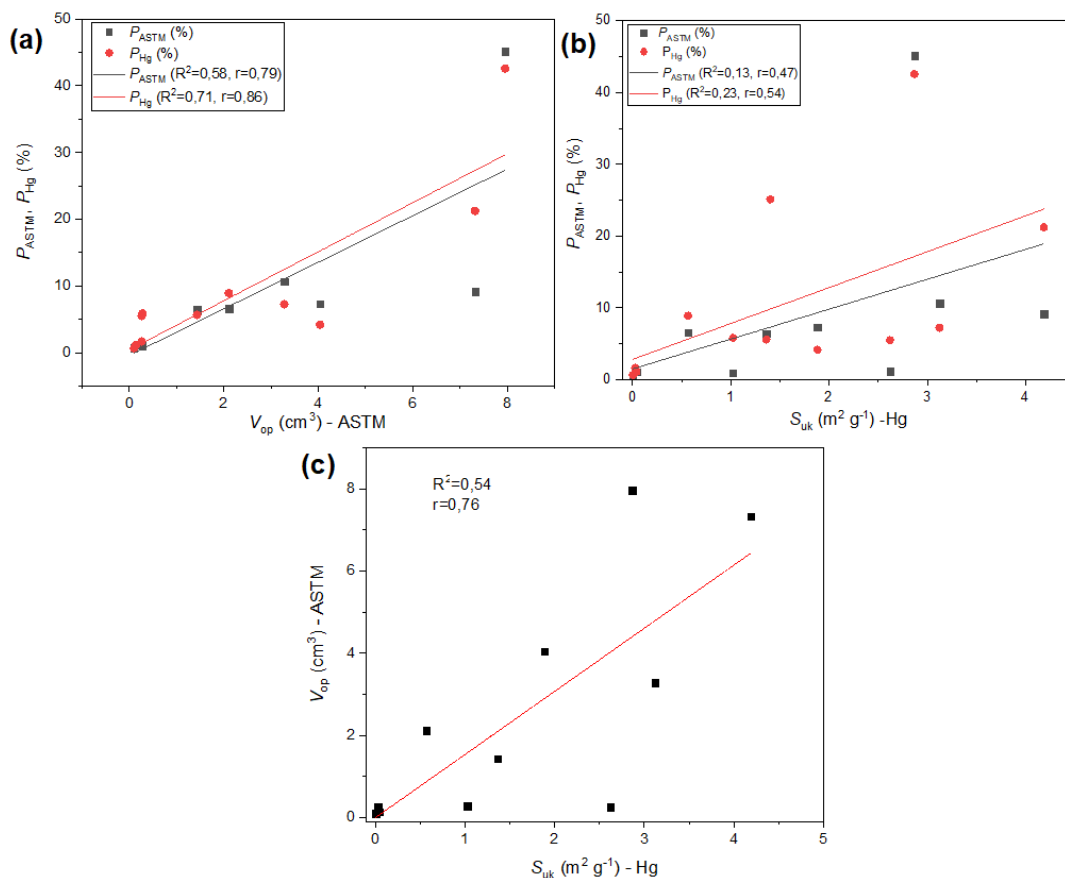
Vrednosti gustine zrnaca i balk gustine analiziranih uzoraka određene su metodom apsorpcije vode, dok je balk gustina određena i prema metodi živine porozimetrije. Vrednosti balk gustine prema metodi živine porozimetrije se kreću u intervalu od $1,54 \text{ g cm}^{-3}$ za uzorak biber crepa BC do $2,69 \text{ g cm}^{-3}$ za uzorak mermera M1, dok su vrednosti prema metodi apsorpcije vode u rasponu od $1,57 \text{ g cm}^{-3}$ za uzorak biber crepa BC do $2,67 \text{ g cm}^{-3}$ za uzorak mermera M1. Korelacije između poroznosti prema metodama živine porozimetrije i apsorpcije vode i balk gustina prikazane su na Slici 12.9. Prema vrednostima koeficijenata korelacije ustanovljene su jake korelacije sa korelacionim faktorima ($R^2=0,96$; $r=0,96$ i $R^2=0,76$; $r=0,89$). Odavde se može reći da je poroznost u direktnoj vezi sa gustinom materijala i da sa povećanjem gustine materijala ukupan udeo otvorenih pora u materijalu linearno opada.

Na Slici 12.10 data je korelacija između balk gustina analiziranih građevinskih materijala određenih metodom živine porozimetrije i metodom apsorpcije vode ASTM C373-88. Između dobijenih vrednosti uspostavljena je jaka korelacija što potvrđuju vrednosti koeficijenata korelacije ($R^2=0,97$; $r=0,99$). Ova korelacija potvrđuje ispravnost rezultata poroznosti određene sa dve korišćene metode.

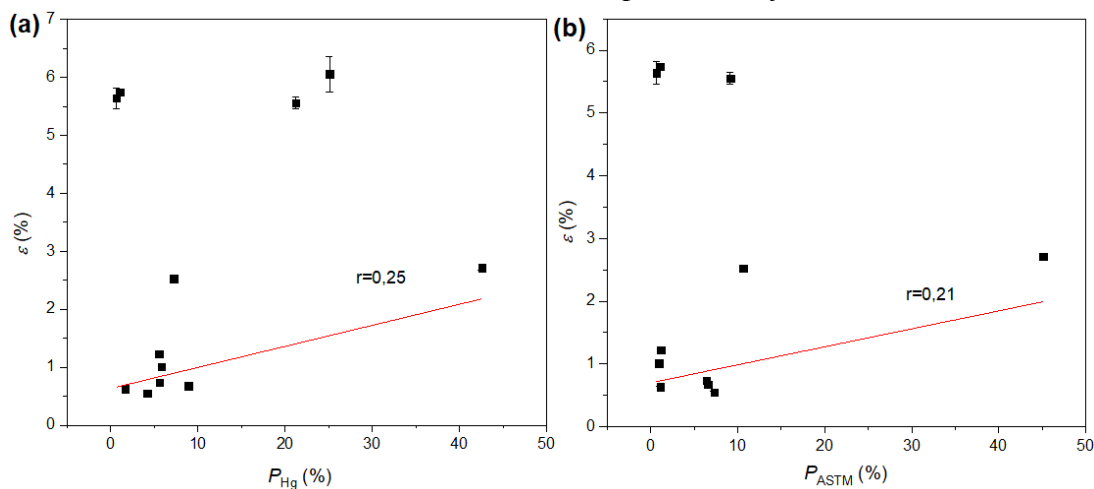


Slika 12.10 Korelacija između balk gustina određenih metodom živine porozimetrije i metodom apsorpcije vode ASTM C373-88.

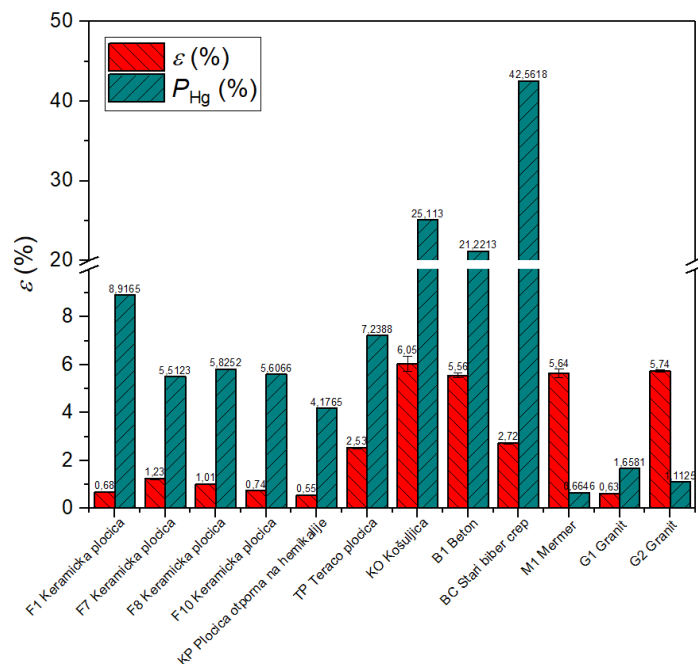
Na Slici 12.11a date su korelacije između poroznosti određene dvema korišćenim metodama (P_{ASTM} i P_{Hg}) i zapremine otvorenih pora (V_{op}) određene metodom apsorpcije vode. Dobijene su dobre korelacije što potvrđuju vrednosti korelacionih faktora. Na Slici 12.11b uspostavljene su umerene korelacije između vrednosti poroznosti (P_{ASTM} i P_{Hg}) i ukupne površine otvorenih pora (S_{uk}) određene metodom živine porozimetrije. Na Slici 12.11c prikazana je koelacija između vrednosti ukupne zapremine otvorenih pora i ukupne površine otvorenih pora (S_{uk}) u analiziranim materijalima određeni sa dve metode, gde je uočena relativno dobra korelacija ($R^2=0,54$, $r=0,76$).



Slika 12.11 (a) Korelacija između poroznosti selektovanih građevinskih materijala određenih ASTM C373-88 metodom i metodom živine porozimetrije sa zapreminama otvorenih pora (V_{op}) u materijalu određenih ASTM C373-88 metodom; (b) Korelacija između poroznosti datog građevinskog materijala određena sa dve različite metode i ukupne površine otvorenih pora u materijalu (S_{uk}) određena metodom živine porozimetrije; (c) Korelacija između i zapremine otvorenih pora (V_{op}) određene metodom apsorpcije vode i ukupne površine otvorenih pora (S_{uk}) određene metodom živine porozimetrije.



Slika 12.12 Korelacija između koeficijenta emanacije radona (ε) i otvorene poroznosti (P_{Hg}) i (P_{ASTM}) izmerene metodom živine porozimetrije i metodom apsorpcije vode ASTM C373-88 za 11 selektovanih uzoraka građevinskih materijala.



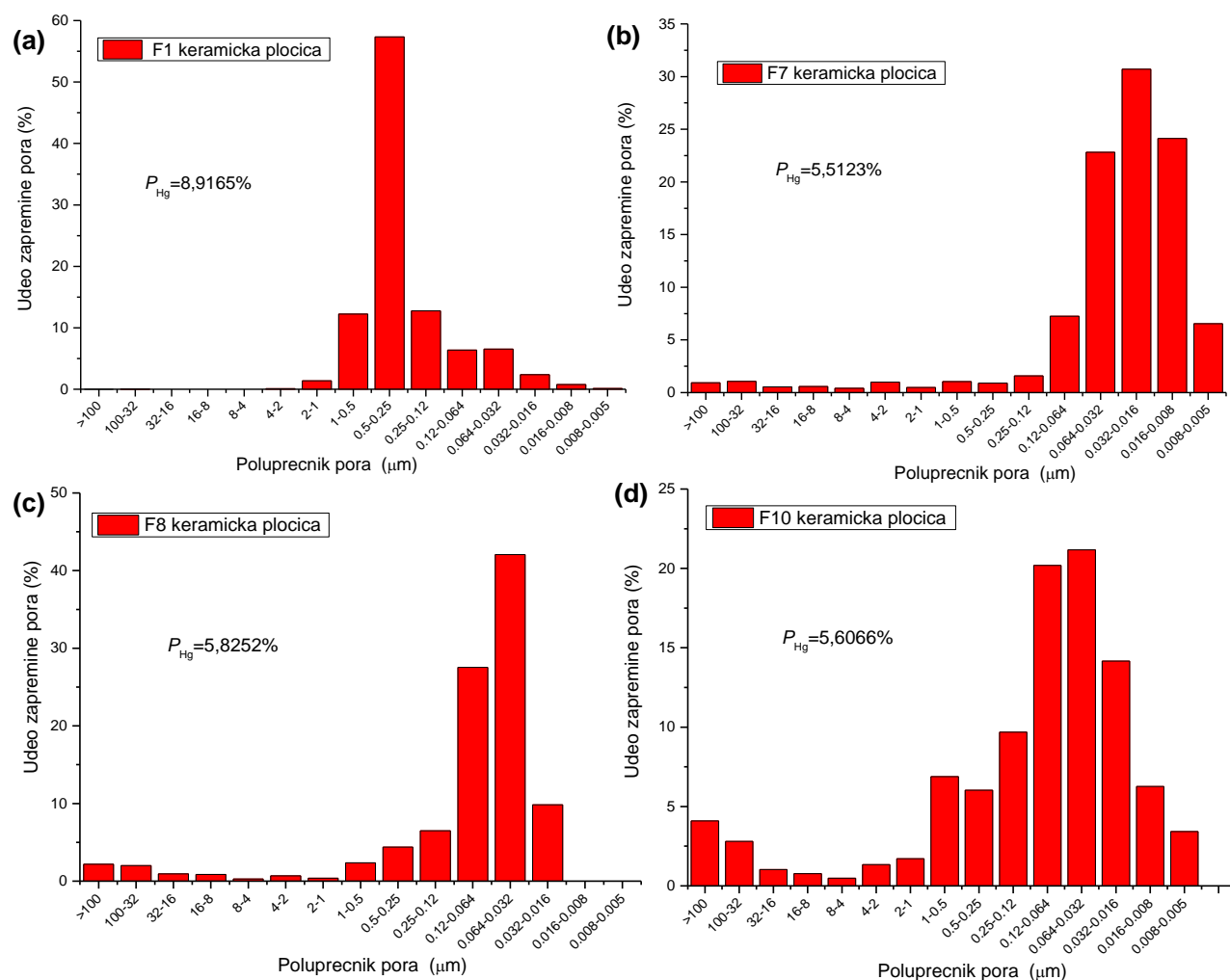
Slika 12.13 Poređenje vrednosti koeficijenta emanacije radona i vrednosti ukupne poroznosti u materijalu određene metodom živine porozimetrije.

Na Slici 12.12 prikazane su korelacije koeficijenta emanacije (ε) i ukupnog udela otvorenih pora u materijalu prema metodama živine porozimetrije (P_{Hg}) i metodi apsorpcije vode (P_{ASTM}). Na osnovu vrednosti Pirsonovih koeficijenata ($r=0,25$ i $r=0,21$) može se zaključiti da postoji slaba korelacija između koeficijenata emanacije i ukupne poroznosti među analiziranim građevinskim materijalima. Između koeficijenta emanacije (ε) i medijarnih prečnika ($2r$), kao ni između zapremine otvorenih pora (V_{op}) u ukupne površine pora (S_{uk}) nisu uspostavljene značajne korelacije.

Na Slici 12.13 date su vrednosti koeficijenta emanacije i vrednosti ukupne poroznosti (P_{Hg}) analiziranih uzoraka građevinskih materijala određenih metodom živine porozimetrije. Može se uočiti, kod većine uzoraka, da sa povećanjem poroznosti raste i vrednost koeficijenta emanacije radona. Ovo se naročito odnosi na vrednosti industrijskih materijala, keramičkih pločica, teraco pločice, betona i cementne košuljice, dok se kod prirodnih materijala, mermera i garnita uočavaju varijacije emanacionih koeficijenata koji su direktna posledica njihovih strukturnih osobina, ali i koncentracije aktivnosti ^{226}Ra .

Metodom živine porozimetrije određena je raspodela udela zapremine pora (u ukupnoj otvorenoj poroznosti) po veličini pora (poluprečniku pora). Dobijeni rezultati za 12 analiziranih uzoraka građevinskih materijala prikazani su na Slikama 12.14-12.16. XRD mineraloška analiza svih 12 uzoraka data je na Slikama 12.17-12.20, a XRF analiza glavnih oksida sadržanih u analiziranim građevinskim materijalima u Tabeli 12.7.

Sa Slike 12.14 se može videti da materijali proizvedeni presovanjem u industriji tj. keramički materijali, imaju najveće udele pora u opsegu $0,5-0,016 \mu\text{m}$, gde udeo pora iz ovog opsega dostiže oko 60% kod uzorka F1, što mu daje ukupnu poroznost 8,92%. Uzorci keramičkih pločica sadrže veoma mali udeo pora većih od $4 \mu\text{m}$, osim kod uzorka F10. Pošto je ustanovljeno da je gustina u direktnoj korelaciji sa ukupnom poroznošću materijala, koeficijent emanacije radona je usled visoke gustine i doprinosa ukupnoj poroznosti sa relativno malim dimenzijama imao niske vrednosti za 4 uzorka keramičkih pločica između 0,69 i 1,23%.



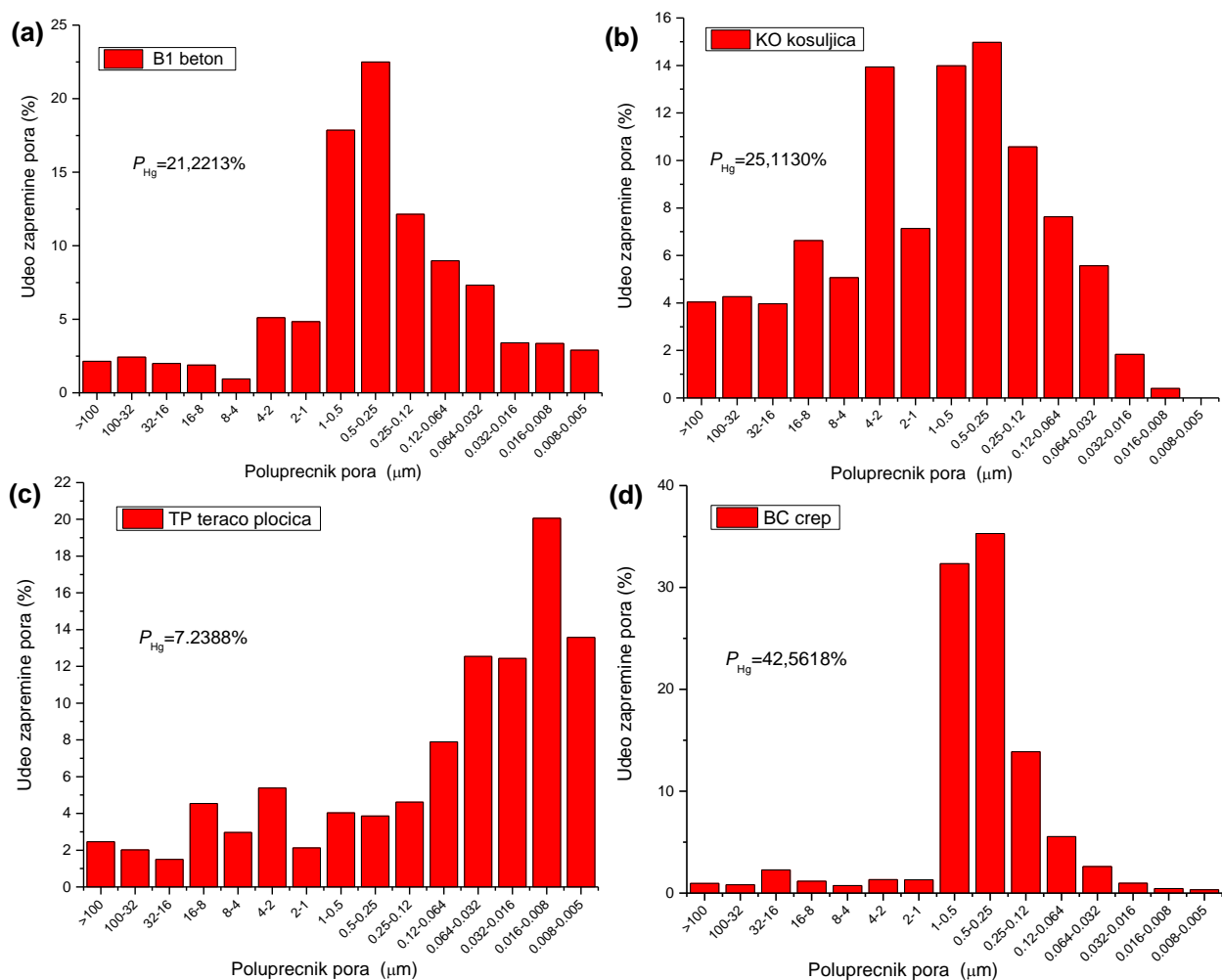
Slika 12.14 Raspodela udela zapremine pora (u ukupnoj efektivnoj zapremini pora) po poluprecnicima pora za 4 uzorka podnih keramičkih pločica proizvedenih u fabrici Zorka Keramiča iz Šapca iz Tabele 12.5.

Visoku ukupnu poroznost betona (21,22%) determiniše najveći doprinos pora iz opsega 1-0,25 μm , Slika 12.15a. Kod uzorka cementne košuljice, relativno sličnom materijalu betonu, najveći udeo pora je iz opsega 4-0,064 μm što je rezultiralo i većom ukupnom poroznošću (25,11%) u odnosu na uzorak betona. Uzorak košuljice sadrži i znatno veći udeo pora većih od 100 μm (oko 4%), Slika 12.15b, što je imalo za posledicu i veću vrednost koeficijenta emanacije radona u odnosu na beton, Tabela 12.5, Slika 12.13.

Uzorak teraco pločice TP sa ukupnom poroznošću od 7,24% sadrži najveći udeo pora iz opsega 0,12-0,005 μm , Slika 12.15c. Imajući u vidu da ovaj materijal predstavlja beton sa utisnutim drobljenim mermerom i da ne prolazi kroz proces pečenja sadrži relativno nisku ukupnu poroznost u poređenju sa uzorcima keramičkih pločica koji se podvrgavaju kako procesu presovanja tako i pečenju. Vrednost koeficijenta emanacije je znatno niša u odnosu na vrednost dobijenu za beton usled veće vrednosti gustine (oko 2,32 g cm^{-3}), Tabela 12.5.

Uzorak biber crepa BC sa najvišom izmerenom vrednosti ukupne poroznosti metodom živine porozimetrije od 42,56% sadrži najveći udeo pora iz opsega 1-0,032 μm (oko 70% od ukupnog udela otvorenih pora), Slika 12.15d. Zbog većeg udela pora sa većim poluprecnicima to je uticalo i

na veću vrednost koeficijenta emanacije radona u odnosu na druge keramičke materijale F1,7,8,10 i KP kod kojih je ustavovljen veći udeo pora sa manjim poluprečnicima. Za uzorak biber crepa metodom ASTM C373-88 ustanovljena je i visoka vrednosti koeficijenta apsorpcije vode, oko 29%, te se može reći da uzorak ima zasigurno visok udeo otvorenih pora, dobijena vrednost je uporediva sa rezultatima u publikaciji (Coletti et al., 2016). Visoka vrednost koeficijenta apsorpcije vode je još jedna potvrda uzroka veće vrednosti koeficijenta emanacije radona u odnosu na ostale analizirane keramičke materijale koji prolaze proces pečenja.

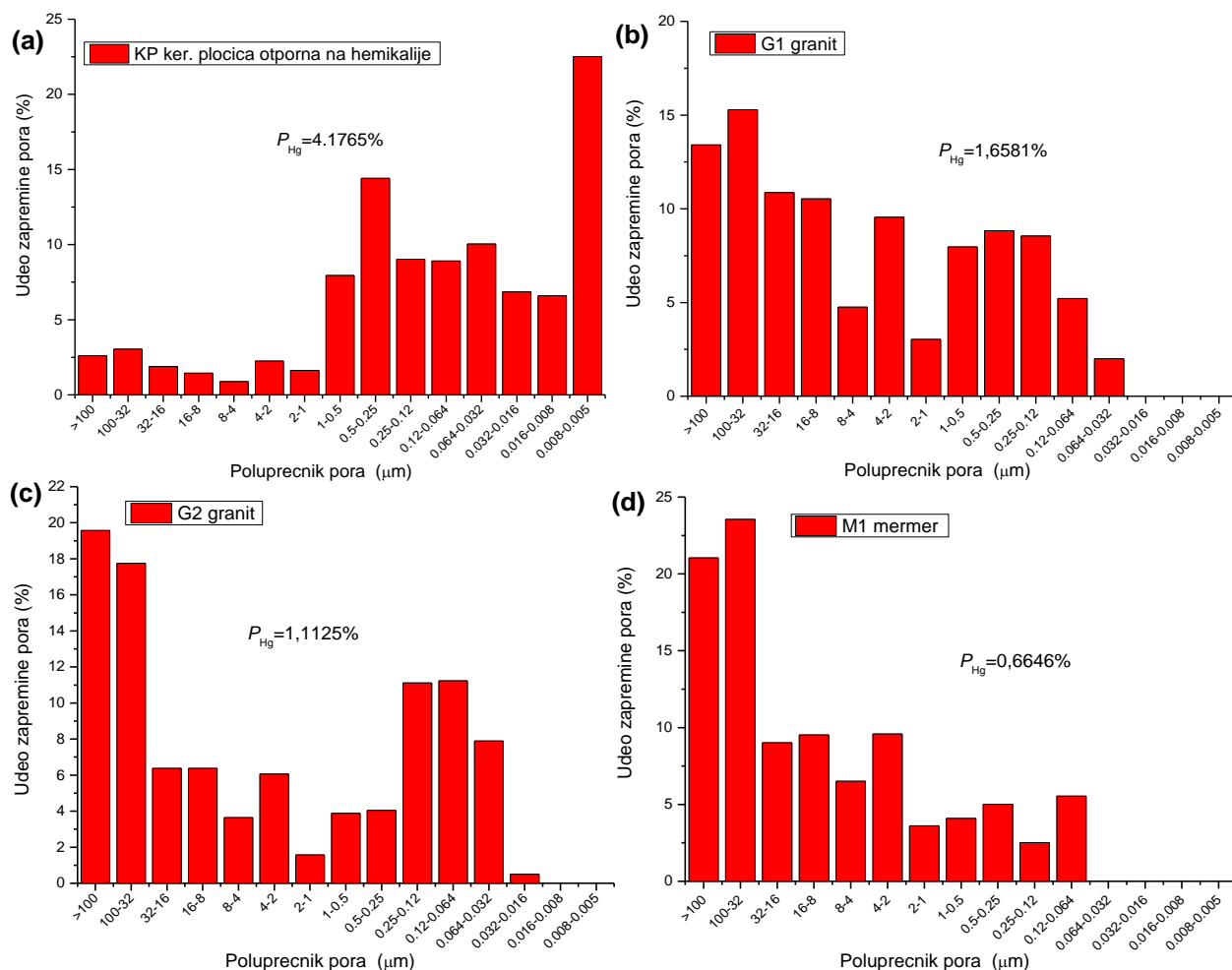


Slika 12.15 Raspodela udela zapremine pora (u ukupnoj efektivnoj zapremini pora) po poluprečnicima pora za uzorak betona, košuljice, teraco pločice i biber crepa.

Uzorak keramičke pločice otporne na hemikalije KP sa ukupnom poroznošću od 4,18% sadrži najveći udeo pora iz opsega 1-0,005 μm , Slika 12.16a. Ovo je u odnosu na ostala 4 uzorka keramičkih pločica zbog većeg sadržaja najsitnijih pora iz opsega 0,08-0,05% rezultiralo i manjom vrednosti ukupne poroznosti, ali i manjom vrednosti koeficijenta emanacije radona, Tabela 12.5.

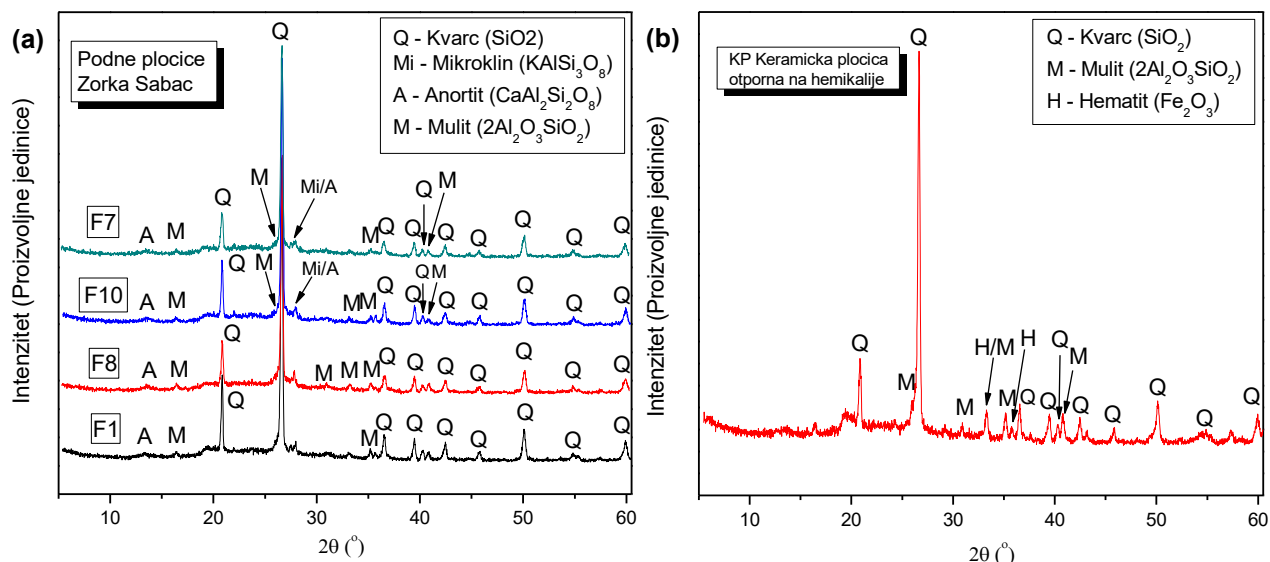
Kod prirodnih materijala mermera i granita zabeležen je nizak nivo ukupnih poroznosti manjih od 1,7%, kod sva tri uzorka (dva uzorka granita i jednog uzorka mermera). Dobijene vrednosti ukupne poroznosti granita su uporedive sa istraživanjem (Dentoni et al., 2020). Svi

uzorci sadrže najveći udeo velikih pora iz opsega $>100-0,032 \mu\text{m}$, Slika 12.16. Uzorci granita G1 i G2 sadrže prilično sličan udeo pora prema poluprečnicima u celom analiziranom opsegu, tako u opsegu $>100-8 \mu\text{m}$ oba uzorka sadrže oko 50% ovih pora. S obzirom da oba uzorka sadrže sličnu raspodelu pora, a u mnogome različite koeficijente emanacije radona (koeficijent emanacije radona za uzorak G1 iznosi 0,63, a za uzorak G2 5,74, što je oko 9 puta veća vrednost). Glavni razlog je u tome što uzorak granita G2 sadrži 5,6 puta veću vrednost koncentracije aktivnosti ^{226}Ra što mu omogućava veći stepen emanacije i veću sposobnost difuzije radona do površine uzorka, ako se uzme u obzir da imaju približno iste vrednosti difuzionih dužina za radon.



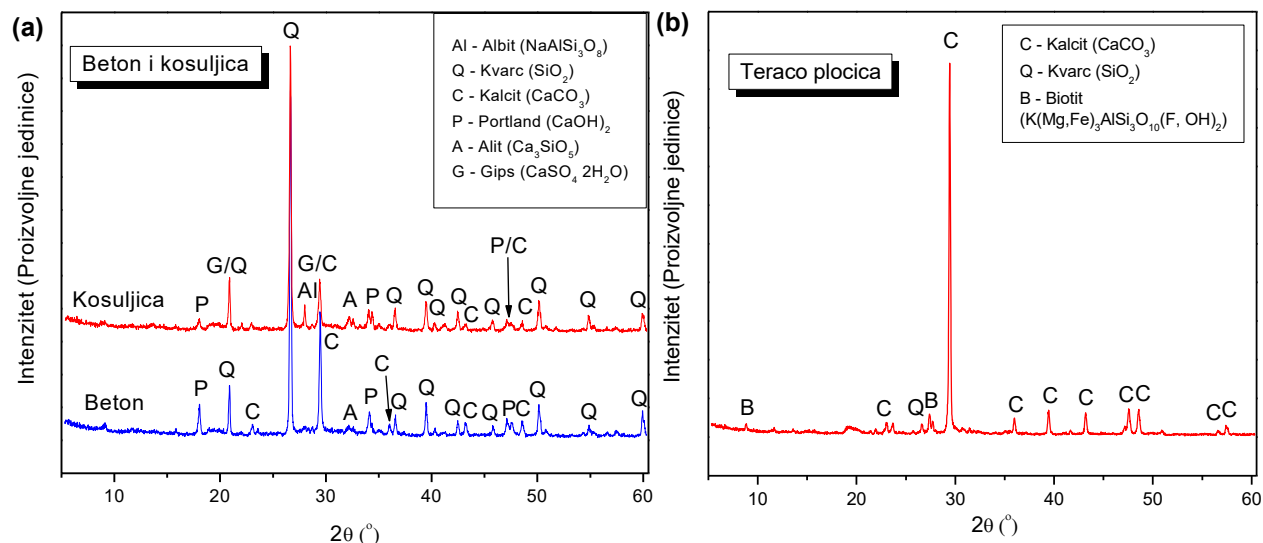
Slika 12.16 Raspodela udela zapremine pora (u ukupnoj efektivnoj zapremini pora) po poluprečnicima pora za uzorak keramičke pločice otporne na hemikalije, 2 uzorka granita i jedan uzorak belog mermera.

Kod 4 uzoraka keramičkih pločica F1,7,8,10, i s obzirom da su proizvedeni u istoj fabrici, sadrže i prilično sličan mineraloški sastav. Glavne mineraloške faze uočene kod ovih uzoraka su: kvarc, mulit kao i feldspatne faze mikroklin i anortit, Slika 12.17a. Na osnovu XRF analize keramičkih pločica glavni oksidi sa udelom većim od 1% su: SiO_2 sa udelom od 65,87-69,08%, Al_2O_3 sa udelom u rasponu od 22,64-24,95%, zatim K_2O sa udelom u opsegu od 2,52-4,00% i CaO sa udelom u rasponu 1,37-2,53%. Dobijeni rezultati su u dobroj saglasnosti sa nađenim mineralnim fazama na XRD šemi.



Slika 12.17 XRD šema 4 uzorka keramičkih pločica (a) i uzorka keramičke pločice otporne na hemikalije KP (b).

Kod uzorka keramičke pločice otporne na hemikalije KP, osim kvarcne i izražene mulitne faze uočena je i hematitna faza zbog koje imaju jaku crvenu boju biskvita, Slika 12.17b. Najveći udeo oksida zabeležen je od kvarcne faze SiO₂ - 68,72%, zatim Al₂O₃ sa udelom 17,10%, Fe₂O₃ 6,11%, K₂O sa udelom 2,94% i SO₃ sa udelom 1,02%. Izraženija mulitna faza nego kod klasičnih podnih keramičkih pločica ukazuje na višu temperaturu pečenja koja je rezultirala većom gustinom uzorka u odnosu na klasične glazirane podne keramičke pločice, Tabela 12.6, Tabela 12.7.

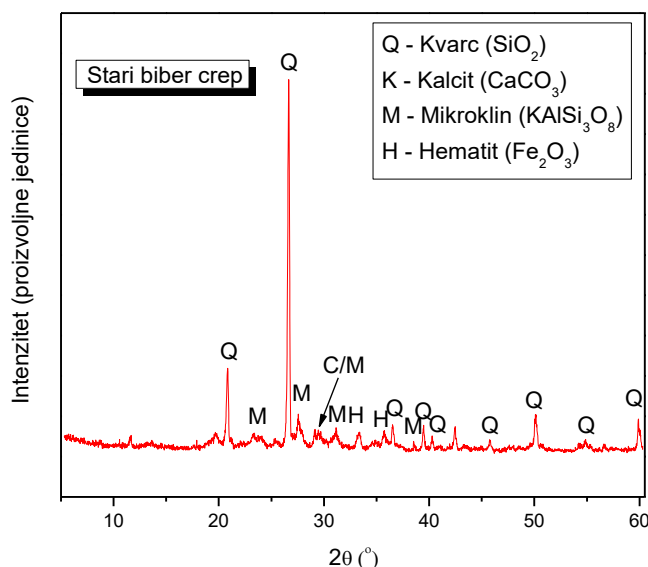


Slika 12.18 XRD šema uzoraka betona B1, košuljice KO (a) i teraco pločice TP (b).

Kod uzorka betona B1 i košuljice KO ustanovljene su glavne mineralne faze: kvarc, alit, kalcit i portland. Dodatno prisustvo gipsa i manje faze albita je zabeleženo kod uzorka košuljice, Slika 12.18a. Na osnovu rezultata XRF analize može se uočiti da je sadržaj glavnih oksida: SiO₂ sa udelom od 60,69% za uzorak košuljice i 56,13% za uzorak betona, potom CaO sa udelom 31,23%

za uzorak košuljice i 38,86% za uzorak betona, zatim Al_2O_3 sa udelom od 1,10% kod uzorka košuljice i 1,46% kod uzorka betona. Kod uzorka košuljice sadržaj Na_2O iznosi 1,62% zbog udela albitne mineralne faze, a sadržaj SO_3 zbog udela faze gipsa iznosi 1,77%, Tabela 12.7.

Kod uzorka teraco pločice TP uočene su glavne mineralne faze kvarc, kalcit i biotit, Slika 12.18b. Rezultati XRF analize ukazuju na glavni udeo CaO od 47,89%, zatim SiO_2 od 37,49%, Al_2O_3 6,09%, Fe_2O_3 2,96%, MgO 1,83% i K_2O 1,58%.



Slika 12.19 XRD šema uzorka starog biber crepa BC.

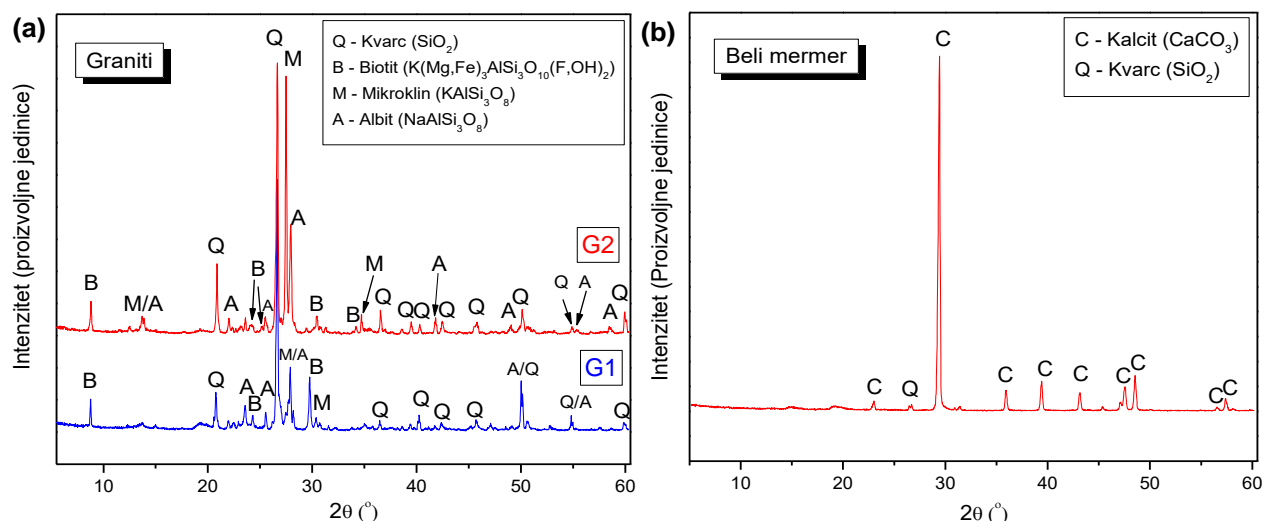
U uzorku starog biber crepa uočene su mineralne faze: kvarc, kalcit, mikroklin i hematitna faza koja je odgovorna za crvenu boju, Slika 12.19. Prema XRF analizi udeo oksida većih od 1% je: SiO_2 sa udelom od 64,41%, Al_2O_3 16,11%, Fe_2O_3 10,34%, K_2O 2,42%, CaO 1,72%, MgO 1,52% i SO_3 1,2%.

Tabela 12.7 XRF analiza glavnih oksida prisutnih u selektovanim uzorcima građevinskih materijala izraženih u mas. %.

Oznaka uzorka	Na_2O	MgO	Al_2O_3	SiO_2	SO_3	K_2O	CaO	TiO_2	MnO_2	Fe_2O_3	ZrO_2	Ukupno
F1	0,38	0,97	22,64	69,08	0,05	2,98	1,37	0,59	0,02	0,74	0,30	99,13
F8	0,76	0,64	24,61	66,81	0,07	4,00	1,51	0,57	0,01	0,47	0,18	99,63
F7	0,24	0,38	24,95	65,87	0,23	3,61	2,37	0,62	0,02	0,17	0,16	98,63
F10	0,30	0,31	23,15	68,31	0,04	2,52	2,53	0,64	0,03	0,31	0,12	98,27
KO	1,62	0,54	1,10	60,69	1,77	0,73	31,23	0,71	0,03	0,80	0,04	99,27
B1	0,43	0,43	1,46	56,13	0,52	0,73	38,86	0,05	0,12	0,49	0,09	99,32
BC	0,16	1,52	16,11	64,41	1,22	2,42	1,72	0,69	0,06	10,34	0,09	98,75
M1	0,15	0,25	0,53	2,40	0,12	0,06	95,49	0,02	0,01	0,03	0,05	99,11
G1	1,65	0,86	19,79	71,07	0,03	3,74	0,31	0,35	0,03	0,26	0,03	98,12
G2	3,20	0,58	15,78	72,14	0,07	6,97	0,34	0,30	0,02	0,16	0,04	99,60
TP	0,31	1,83	6,09	37,49	0,62	1,58	47,89	0,30	0,04	2,96	0,15	99,28
KP	0,76	0,68	17,10	68,72	1,02	2,94	0,57	0,42	0,01	6,11	0,19	98,52

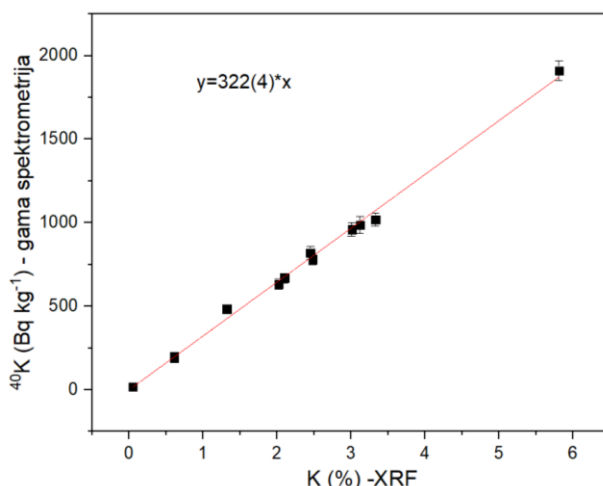
Za uzorke granita G1 i G2 uočene su mineralne faze: kvarc, biotit, i feldspatne faze mikroklin i albit. U uzorku granita G2 uočen je značajno viši udeo feldspatnih faza mikroklin i albita, ovo može biti uzrok i povećanog sadržaja ^{226}Ra koji je vezan kao nečistoća za ove faze, Slika 12.20a. Veći udeo mikroklin potvrđuju i rezultati XRF analize, gde je dobijen veći udeo

K_2O kod uzorka G2 skoro 2 puta u odnosu na uzorak G1. Iz Tabele 12.7 se može videti da osim kalijuma, oksidi sa udelom većim od 1% su i SiO_2 sa udelom od 71,07% odnosno 72,14%; potom Al_2O_3 sa udelom 19,79% odnosno 15,78%; zatim Na_2O sa udelom od 1,65% odnosno 3,20% za uzorke granita G1 i G2 respektivno. Dobijeni XRF rezultati daju prilično dobro slaganje sa nađenim mineralnim fazama prema XRD šemi, za uzorke granita G1 i G2.



Slika 12.20 XRD šema 2 uzorka granita G1 i G2 (a) i jednog uzorka belog mermera M1 (b).

Na Slici 12.20b data je XRD šema belog mermera koju je prema svom osnovnom sastavu kalcijum-karbonat ($CaCO_3$), te je ta mineralna faza i zabeležena u velikom procentu u obliku minerala kalcita, dok se kvarc javlja kao nečistoća. Prema XRF analizi udeo CaO u uzorku je 95,49%, dok je udeo SiO_2 odnosno kvarca 2,40%, Tabela 12.7.



Slika 12.21 Korelacija između sadržaja radioaktivnog ^{40}K i prirodnog K izmereni sa 2 različite merne tehnike za selektovanih uzoraka građevinskih materijala.

Na Slici 12.21 data je korelacija izmerenih vrednosti radioaktivnog ^{40}K (Tabela 12.7) i prirodnog K određenog XRF metodom. Dobijene je jaka korelacija $R^2=0,98$, $r=0,99$. Dobijena

korelacija uspostavlja vezu da 1% prirodnog kalijuma odgovara $322 \pm 4 \text{ Bq kg}^{-1}$, što je uporedivo sa prethodnim korelacijama au ovoj studiji, ali istraživanjem u radu (Pilakouta et al., 2017). Dobijene korelacija potvrđuje dobru usaglađenost i kalibrisanost dve merne tehnike.

Tabela 12.8 Vrednosti Pirsonovog koeficijenta (r) za korelacije između koeficijenta emanacije radona i sadržaja glavnih oksida u materijalima.

	Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	SO ₃	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO ₂	Fe ₂ O ₃	ZrO ₂
ε (%)	0,28	0,18	-0,46	-0,44	0,09	0,28	0,47	-0,25	0,34	0,05	-0,21

U Tabeli 12.8 date su vrednosti Pirsonovih koeficijenata između glavnih oksida u analiziranim uzorcima građevinskih materijala. Može se videti da su dobijene umerene korelacije između koeficijenta emanacije i udela Al₂O₃, SiO₂ i CaO u materijalima ($r=-0,46$; $r=-0,44$ i $r=0,47$, respektivno).

Na osnovu analiziranih rezultata se može reći da materijali sa višim udelom CaO imaju i više koeficijente emanacije radona (što je zabeleženo kod uzoraka koji ne prolaze termičku obradu, kao što su beton, košuljica, teraco pločica i mermer) za razliku od npr. keramičkih pločica ili keramičke pločice otporne na hemikalije.

Dobijene vrednosti ukazuju da su niži koeficijenti emanacije radona svojstveni za keramičke materijale. Keramičke pločice se peku na temperaturama $\geq 1250 \text{ }^\circ\text{C}$ i prolaze kroz proces vitifikacije odnosno pojave tečne faze, rastopa, što rezultira relativno niskom ukupnom poroznošću kao i raspodelom veličine pora sa nižim poluprečnicima. Ovo je naročito bilo izraženo kod keramičke pločice otporne na hemikalije KP kod koje je zapažen veći udeo mulitne faze u odnosu na 4 ostala uzorka keramičkih pločica, koja je doprinela većoj gustini, ali i manjoj ukupnoj poroznosti materijala. Analizirani materijali u ovoj studiji kod kojih je uočeno prisustvo mulite kristalne faze imaju relativno veliku gustinu (veću od $2,2 \text{ g cm}^{-3}$) koja utiče na to da radon ostane zarobljen u sitnijim porama, što je rezultiralo niskim vrednostima koeficijenta emanacije. Isti zaključci za keramičke pločice izvedeni su i u istraživanju (Verità et al., 2009). Radon zarobljen u porama gustog materijala nema mogućnost difundovanja ka površini, usled male koncentracije ²²⁶Ra u uzorku, što je glavni uzrok niskih koeficijenata emanacije.

Veći udeo hematitne faze kod materijala koji se peku na nižim temperaturama, uzorak starog biber crepa BC (odnsno Fe₂O₃) može se dovesti u vezu sa povećanjem poroznosti materijala ali i sa većim vrednostima koeficijenta emanacije u odnosu na ostale keramičke materijale.

Dakle, materijali koji prolaze kroz process pečenja na nižim temperaturama rezultuju većom ukupnom poroznošću u odnosu na one pečene na višim pemperaturama, što se dovodi u vezu i sa koeficijentom emanacije koji opada sa povećanjem temperature pečenja analiziranog građevinskog materijala.

Kod granita usled velike gustine materijala (veće od $2,5 \text{ g cm}^{-3}$) ukupna poroznost je mala, što je praćeno udelom pora sa većim poluprečnicima. Koeficijent emanacije u ovom slučaju zavisi direktno od mineralošskog sastava ali i koncentracije aktivnosti ²²⁶Ra, gde je uočeno da uzorak granita sa većom koncentracijom ²²⁶Ra ima i veću sposobnost difuzije do površine materijala, što je praćeno većim koeficijentom emanacije radona.

Iz svega anliziranog se može zaključiti da je koeficijent emanacije radiološko svojstvo za svaki materijal zasebno i da u mnogome zavisi ne samo od udela ²²⁶Ra nego i od strukturnih karakteristika kao što su udeo veličine pora u ukupnoj poroznosti, mineralošskog i hemijskog sastava, odnosno načina proizvodnje.

Da bi se uspostavile značajnije korelacije potrebno je obaviti još opsežnija istraživanja. Ovde se pre svega misli da istraživanja treba obaviti sa materijalima sa višim koncentracijama aktivnosti

²²⁶Ra čime bi se poboljšala statistika odbroja. Potrebno je uporediti navedene rezultate ekshalacije radona sa nekom od pasivnih mernih tehnika, kako bi se uporedile dobijene vrednosti koeficijenata emanacije radona.

Korišćenjem materijala sa sadržajem radijuma većim od 100 Bq kg^{-1} za buduća ispitivanja bi se zasigurno preciznije odredili koeficijenti emanacije imajući u vidu veću sposobnost difuzije radona iz najsitnijih pora ka površini materijala, što je kod većine analiziranih materijala iz Tabele 12.1 bio glavni problem koji je uticao na statistiku odbroja, usled niskog sadržaja ²²⁶Ra.

13 Zaključak

U ovoj studiji kroz šest poglavlja razmatrane su radiološke, strukturne i teksturalne karakteristike građevinskih materijala koji su dostupni u Srbiji. Sa stanovišta radiološke karakterizacije analizirano je ukupno 348 uzoraka različitih građevinskih materijala, što obuhvata veliki broj sirovinskih materijala kao i finalnih građevinskih materijala. Mineraloška, hemijska i teksturalna karakterizacija izvršena je za selektovane građevinske materijale. Iz dobijenih rezultata predstavljenih u poglavljima 7-12 mogu se izneti sledeći zaključci:

1. Iz svega analiziranog u poglavlju 8.1 za 40 uzoraka granita može se zaključiti da izmerene vrednosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K više od 2 puta premašuju prosečne vrednosti za građevinske materijale u svetu, Tabela 8.1. Procenjene vrednosti hazard indeksa premašuju preporučene vrednosti za većinu analiziranih uzoraka, dok su godišnje efektivne doze gama zračenja ispod preporučene granice od 1 mSv y^{-1} (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018), što ukazuje da ne postoji naročit radijacioni rizik od gama zračenja pri upotrebi ovakvih materijala u enterijeru. Sprovedena procena doprinosa radona unutrašnjim koncentracijama za najgori mogući scenario ukazuje da u slučaju normalne provetrenosti u prostoriji, ekshalacija radona iz granita nema značajan uticaj na izloženost ljudi, dok za slučaj loše provetrenosti u prostoriji unutrašnja koncentracija radona može premašiti gornju preporučenu granicu od 300 Bq m^{-3} (WHO, 2009). Ovo predstavlja značajnu koncentraciju radona ako se zna da građevinski materijali u prizemnim objektima ne treba da predstavljaju glavni izvor radona, već tlo ispod poda u prostoriji. Rezultati ukazuju da u slučaju slabe provetrenosti u prostoriji radon može predstavljati radijacioni hazard i na višim spratovima u zgradama.
2. U poglavlju 8.8.1 za 6 uzoraka granita izvršena je procena jačine apsorbovane doze gama zračenja korišćenjem Monte Karlo simulacija uz poređenje sa teorijski procenjenim vrednostima prema relaciji (6.4a). Ljudsko telo predstavljeno je vodenim cilindrom u koji se deponuje energija gama zračenja, a u obzir uzete sve elektromagnetne interakcije gama zračenja koje se emituju iz granitne matrice. Dobijeni rezultati jačine apsorbovane doze i godišnje efektivne doze su upoređivani sa rezultatima jačina apsorbovanih doza i godišnjih efektivnih doza procenjenih pomoću relacije (6.4a). Analizom rezultata jačina apsorbovanih doza i godišnjih efektivnih doza dobijenih Monte Karlo simulacijama ustanovljeno je da su simulirane vrednosti oko 30-40% veće od teorijski procenjenih prema relaciji (6.4a). Zaključeno je da povećanje vrednosti specifičnih brzina doza u relaciji (6.4a) za približno 40% (tj. na vrednosti 0,17, 0,20 i 0,0134, izraženo u nGy h^{-1} po Bq kg^{-1} , za ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , respektivno) dovode do realnije procene apsorbovane doze za određene koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u uzorcima granita. Međutim, rezultati izračunati na takav način, čak i iz modifikovane relacije (6.4a), predstavljaju relativno grubu procenu apsorbirane doze u odnosu na rezultate simulacije. Kako bi se prikazala najrealnija situacija i stekla, što je više moguće, tačnija metoda za određivanje jačine apsorbovane doze gama zračenja, ovo može predstavljati dobar osnov za dalja istraživanja. Ispitivan je i uticaj poližaja vodenog cilindra u prostoriji na vrednosti jačine apsorbovane doze gde je uočeno da su vrednosti više za oko 20% u odnosu na vrednosti u centru prostorije. Ovo se u budućim istraživanjima mora uzeti u obzir,

kako bi se za ciljnu grupu što tačnije i preciznije odredila jačina apsorbovane doze koja potiče iz datog građevinskog materijala.

- U poglavlju 8.2 data su razmatranja o radiološkoj karakteristici fosfogipsa kao NORM materijala proizvedenog u Srbiji i mogućnost njegovom iskorišćenju za proizvodnju gips-karton ploča uz procenu radijacionog rizika. Dobijena prosečna koncentracija aktivnosti ^{226}Ra u PG uzorcima iznosila je oko 600 Bq kg^{-1} , što je oko 90 puta veće od prosečne koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u GB uzorcima koji se koriste u Srbiji. Izmerene vrednosti ^{232}Th i ^{40}K su zanemarljivo niske kao i vrednosti ^{226}Ra u NG i GB uzorcima, ako se izvrši poređenje sa prosečnim vrednostima ovih radionuklida za građevinske materijale u svetu.

Razdvajanjem po frakcijama jednog od analiziranih PG uzoraka uočeno je povećanje koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K sa smanjenjem veličine čestica u PG uzorku. Uočeno je smanjenje koncentracije aktivnosti ^{226}Ra i do 37% za veličinu frakcije $> 2 \text{ mm}$ u poređenju sa balk uzorkom, što je važno za praktičnu upotrebu fosfogipsa. Dakle, zaključeno je da je distribucija ^{226}Ra najveća u najnižim frakcijama, koje su nakon sušenja i mlevenja uzorka prisutne u najvećoj meri. Prema procenjenim vrednostima hazard indeksa i godišnjih efektivnih doza zračenja utvrđeno je postojanje značajnog radijacionog rizika od izloženosti gama zračenju pri potencijalnom korišćenju fosfogipsa za proizvodnju gips-karton ploča i njihove upotrebe u enterijeru. Zbog toga da bi se izloženost gama zračenju optimizovala na prihvatljiv nivo preporučuje se njegoa upotreba kao dodatka prirodnom gipsu. Merenjem ekshalacije radona iz jednog uzorka PG i jednog NG određena je brzina ekshalacije radona iz uzoraka, i izvršena procena unutrašnjih koncentracija radona. Zaključuje se da su sve procenjene vrednosti unutrašnjih koncentracija radona ispod ili oko donje granice od 100 Bq m^{-3} , za lošu provetrenost prostorije, te se može zaključiti da ne postoji radijaciona opasnost od izloženosti radonu, ako se posmatra isključivo doprinos radona iz građevinskog materijala. Za slučaj da se u prizemnim objektima uzme u obzir da je glavni izvor tlo ispod podloge, procenjene vrednosti u velikoj merni povećavaju izloženost ljudi radinu u prostoriji. Dobijene vrednosti unutrašnjih koncentracija radona pri normalnoj provetrenosti prostorije neznatno su iznad vrednosti na otvorenom prostoru. Bez obzira na relativno niske koncentracije radona koje bi se mogle stvoriti u prostoriji pri normalnoj provetrenosti, samostalna upotreba fosfogipsa se ne preporučuje usled postojanja radijacionog rizika od izloženosti gama zračenju. Prema mineraloškoj analizi u uzorcima prirodnog gipsa uočene su glave faze gips, basanit, anhidrid i kalcit, dosu u uzorku fosfogipsa uočene glavne minerale faze gips, basanit i kvarc kao propratna nečistoća, Slika 8.19. Prema hemijskoj analizi glavni elementi prisutni u svim uzorcima su S i Ca sa udelom $\text{S} > 20\%$ i $\text{Ca} > 24\%$. Ostali analizirani elementi bili su znatno manje zastupljeni. PG uzorci sadrže mnogo više Si i P kao propratnih nečistoća iz hemijskih tretmana u poređenju sa NG i GB uzorcima.

- Na osnovu dobijenih rezultata analize sirovinskih materijala, poglavlje 8.3 i finalnih keramičkih pločica, poglavlje 8.4, mogu se izvesti sledeći zaključci. Na osnovu izmerenih vrednosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K , izvršena je detaljna procena radijacionog rizika za radnike u keramičkoj industriji, a dobijeni rezultati pokazuju da ne postoji posebna opasnost od izloženosti radnika jonizujućem zračenju tokom rada sa NORM materijalima (kaolin, feldspat, kvarc i cirkon) u srpskim keramičkim industrijama. Izmerene vrednosti pokazuju da relativni doprinos ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K ukupnoj koncentraciji aktivnosti u keramičkim pločicama zavisi od relativnog doprinosa tih radionuklida u kaolinu i feldsparu, kao glavnim polaznim sirovinama prilikom proizvodnje.

Na osnovu izmerenih vrednosti uočava se da je koncentracija aktivnosti ^{226}Ra značajno viša kod uzoraka cirkona (oko 50 puta je viša od prosečne za građevinske materijale u svetu) u poređenju sa ostalim sirovinama koje se koriste u keramičkoj industriji. Kod 41 analiziranog uzorka cirkona vrednosti hazard indeksa su drastično viši u odnosu na ostale analizirane sirovinske materijale koji se koriste u keramičkoj industriji i premašuju preporučene vrednosti. Godišnje efektivne doze procenjene za izloženost radnika od 800 h godišnje ne prelaze preporučenu granicu od 20 mSv godišnje za sve uzorke (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 86/2011 i 50/2018, 2018), te se može reći da ne postoji viša opasnost od izloženosti gama zračenju od propisane. Na osnovu procenjenih alfa doznih ekvivalentana i brzina masenih ekshalacija radona zaključuje se da ne postoji posebna opasnost od izloženosti radnika radonu u keramičkoj industriji, te je pridržavaje standardnim merama zaštite od zračenja (nošenje zaštitnih maski radi sprečavanja direktne ingestije i inhalacije praškastih materijala sa povišenim sadržajem radionuklida) dovoljno za minimiziranje izloženosti zračenju.

Analizirano je ukupno 99 uzoraka keramičkih pločica od kojih je 21 uzorak proizveden u srpskoj keramičkoj industriji Zorka Keramika iz Šapca. Izmerene vrednosti koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K su oko prosečnih vrednosti za građevinske materijale u svetu. Relativna zastupljenost ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K u uzorcima iz Srbije je približna onima proizvedenim u drugim zemljama u svetu, Slika 8.33. Procenom radijacionog rizika od izloženosti gama zračenju iz analiziranih uzoraka keramičkih pločica dobijeni rezultati pokazuju da keramičke pločice kako iz Srbije tako i iz drugih zemalja ne predstavljaju značajnu opasnost od zračenja za ljude, jer su dobijene vrednosti hazard indeksa kao i godišnjih efektivnih doza gama zračenja daleko ispod 1 mSv y^{-1} (EU, 2014; Sl. Glasnik RS 36/18, 2018). Dobijeni rezultati dobijeni za keramičke pločice bili su uporedivi sa prethodnim studijama radiometrijskih analiza keramičkih pločica u Srbiji i drugim zemljama u svetu, Tabela 8.39. Uočene su značajne korelacije među koncentracijama aktivnosti analiziranih radionuklida, hazard indeksa kao, godišnjih efektivnih doza i rizika od nastanka kancera tokom života, Tabela 8.36

XRD mineraloškom analizom keramičkih pločica uočene su glavne mineralne faze: kvarc, mulit i feldspat, Slika 8.34. Elementi sa najvećom zastupljenošću u glazuri keramičkih pločica su: Si, Ca, Zr, Al, Zn i K sa masenim udelom $> 1\%$, Tabela 8.40. Elementi prisutni u biskvitu sa masenim udelom $> 1\%$ su: Si, Al, Ca, K i Fe. Uočeno je da je maseni udeo K i Ca veći u zidnim nego u podnim keramičkim pločicama zbog većeg udela Ca-, K- feldspata, Slika 8.34 i Tabela 8.40.

Da bi se ispitaio uticaj ekshalacije radona iz keramičkih pločica, odnosno njihov doprinos ukupnoj unutrašnjoj koncentraciji radona, izvršena su merenja ekshalacije radona iz tri analizirana uzorka (2 uzorka podnih i jedan uzorak zidnih keramičkih pločica) aktivnim uređajem RAD7. Merenja su izvršena u kraćim vremenskim intervalima uz zanemarivanje efekata curenja i povratne difuzije koji se mogu javiti kao remetilački faktori pri merenju. Tačnost merenja ekshalacije radona uređajem RAD7 je potvrđena i aktivnim uređajem RTM 1688-2. RAD7 uređajem su određene su vrednosti koeficijenta emanacije za jedan uzorak podne pločice i jedan uzorak zidne pločice gde su dobijene vrednosti $< 1\%$ za oba uzorka. Vrednosti unutrašnje koncentracije radona su merene aktivnim uređajem RTM 1688-2, gde je određena koncentracija radona u prostoriji oko 220 Bq m^{-3} . Merenje je izvršeno i pasivnom mernom tehnikom pomoći ugljenih kanistera gde je dobijena vrednost oko 410 Bq m^{-3} , što se pripisuje dužem vremenu eksponiranja kao i dnevnim varijacijama radona. Na osnovu određenih vrednosti koeficijenta emanacije kao i koncentracije aktivnosti ^{226}Ra u uzorcima pločica, koje su bile oko 55 Bq kg^{-1} , izvršena je procena unutrašnje koncentracije radona od analiziranih uzoraka. Dobijene vrednosti njihovog doprinosa su manje od 1 Bq m^{-3} , odakle se

zaključuje da keramičke pločice ugrađene u prostoriji predstavljaju zanemarljiv izvor radona. Dobijene vrednosti ekshalacije radona su uporedive sa rezultatima u sličnim istraživanjima.

U pojedinim prostorijama obloženim analiziranim podnim keramičkim pločicama izmerena je koncentracija radona oko 600 Bq m^{-3} , odakle se zaključuje da keramičke pločice ne predstavljaju zaštitu od ulaska radona u prostoriju. Veliki udeo stvorenog radona iz zemlje uspe ući u prostoriju bilo difuzijom kako kroz betonsku podlogu tako i kroz spojeve keramičkih pločica ili difuzijom kroz same keramičke pločice, što može rezultirati godišnjom efektivnom dozom iznad 11 mSv y^{-1} , Tabela 8.44.

Kod jednog od analiziranih uzoraka praćena je ekshalacija radona do postizanja sekularne radioaktivne ravnoteže. Izvršena su fitovanja dobijenih rezultata prema linearnom i eksponencijalnom fitu (Slika 8.39), gde je uočen porast brzine površinske ekshalacije radona tokom vremena merenja, što je propraćeno porastom efektivne konstante raspada radona. Glavni doprinos efektivnoj konstanti raspada daje efekat curenja, koji potiče od loše zaptivenosti merne komore na granici pod-radonska komora, na čemu treba poraditi u budućim istraživanjima kako bi se optimizovala istraživanja ekshalacije radona za duže vremenske intervale merenja.

5. U poglavlju 9 izvršena je gama spektrometrijska analiza 37 građevinskih materijala opšte upotrebe, razdvojenih u 6 grupa, proizvedenih i korišćenih u građevinarstvu u Srbiji, kao i 14 sirovina koje se koriste za njihovu proizvodnju koje su razvrstane u 5 grupa, Tabele 9.1-9.3. Na osnovu izmerenih koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K procenjene su vrednosti hazard indeksa i godišnjih efektivnih doza. Na osnovu dobijenih vrednosti se može zaključiti da je većina vrednosti bila ispod preporučenih vrednosti kao i vrednosti za građevinske materijale u svetu, tako da se analizirani građevinski materijali mogu smatrati radiološki bezbednim za upotrebu u enterijeru u pogledu gama zračenja.

Procenjene vrednosti doprinosa unutrašnjim koncentracijama radona za analiziranih 37 građevinskih materijala u slučaju normalne provetrenosti prostorije, bile su u opsegu preporučenih vrednosti za sve građevinske materijale (ispod donje preporučene vrednosti od 100 Bq m^{-3}) (WHO, 2009). Upotreba siporeksa se ne preporučuje za upotrebu u izgradnji prostorija sa lošom ventilacijom (podrumi i prostorije bez prozora), zbog mogućnosti unutrašnje koncentracije radona veće od 300 Bq m^{-3} (WHO, 2009) što može rezultirati godišnjom efektivnom dozom iznad $5,63 \text{ mSv y}^{-1}$. Vrednosti jačina doza za građevinske materijale izmerene monitorom zračenja Radiagem 2000 pokazale su da ne postoji poseban rizik od zračenja u poređenju sa dozom koja potiče od izloženosti iz prirodnih izvora i iznosi $2,4 \text{ mSv y}^{-1}$ (UNSCEAR, 2000). Jačine doza gama zračenja koje potiču od građevinskih materijala merene su u kontaktnoj geometriji u jednoj od tipičnih kuća u Srbiji, izgrađenoj od materijala koji se obično koriste i proizvode u Srbiji. Izmerene vrednosti su ispod prosečne vrednosti od $2,4 \text{ mSv y}^{-1}$ (UNSCEAR, 2000), tako da se može zaključiti da ne postoji naročit radijacioni rizik od izloženosti zračenju iz građevinskih materijala u ovoj kući koji je iznad svetskog proseka. Metodom ugljenih kanistera u jednoj od dve prostorije, u analiziranoj kući, u kojoj nema betonske podloge izvršeno je merenje koncentracije radona. Izmerena je vrednost od oko 610 Bq m^{-3} , koja na godišnjem nivou rezultuje godišnjom efektivnom dozom od $11,5 \text{ mSv y}^{-1}$, što je skoro 5 puta veća vrednost od prosečne vrednosti od $2,4 \text{ mSv y}^{-1}$ (UNSCEAR, 2000). Izmerena vrednost koncentracije radona ukazuje na potrebu češće provetrenosti prostorije tokom dana koja bi spustila koncentraciju radona a prihvatljiv nivo, kao i sprovođenje adekvatnih mera remedijacije, kako bi se unutrašnja koncentracija radona svela ispod prihvatljivih 300 Bq m^{-3} . Sprovođenje mera remedijacije treba izvršiti postavljanjem

betonske podloge u prostoriji i dodatno oblaganje poda nekim materijalom koji u određenoj meri može da spreči propagaciju radona iz tla.

- U poglavlju 10 razmatrane su mogućnosti upotrebe fosfogipsa kao dodatka glini u proizvodnji opeke. Izvršena je radiološka karakterizacija sirovina kao i dobijenih uzoraka nakon pečenja na 1000 °C kao i standardna opeka. Za sve uzorke izvršena je procena radijacionog rizika. S obzirom da u istraživanjima do sada nije ustanovljena precizna i jasna metodologija procene jačina apsorbovanih doza gama zračenja za uzorke opeke, procena ovih vrednosti za sve uzorke izvršena je korišćenjem Monte Carlo simulacija. Uočeno je da se korišćenjem teorijskih relacija datih u (EC, 1999) ne mogu dobiti tačne vrednosti jačine apsorbovanih doza gama zračenja, metodom Monte Carlo simulacija je ustanovljeno da relacija (6.4a) pri proceni daje za oko 90% niže vrednosti od onih dobijenih u Monte Carlo simulacijama. Za precizniju procenu, predložena je korekcija specifičnih brzina doza na vrednosti 0,23 nGy h⁻¹ po Bq kg⁻¹ za ²²⁶Ra, 0,26 nGy h⁻¹ po Bq kg⁻¹ za ²³²Th i 0,018 nGy h⁻¹ po Bq kg⁻¹ za ⁴⁰K. Ovim su dobijene vrednosti svedene na maksimalno odstupanje od 15% u odnosu na simulirane vrednosti. Uočene su značajne korelacije između simuliranih vrednosti jačina apsorbovanih doza gama zračenja i koncentracija aktivnosti ²²⁶Ra, ²³²Th i ⁴⁰K, Slika 10.6.

Aktivnim uređajem RAD7 određene su vrednosti koeficijenta emanacije radona < 1%. Na osnovu vrednosti koeficijenta emanacije radona procenjene su brzine površinske ekshalacije radona koje su uporedive sa vrednostima za tipične građevinske materijale. Procenjene vrednosti unutrašnjih koncentracija radona u potencijalno izgrađenoj prostoriji od obih materijala, su ispod donje granice od 100 Bq m⁻³ i uporedive su sa ranije sprovedenim sličnim istraživanjima.

Na osnovu XRD analize uočene su glavne mineraloške faze u uzorcima opeke: kvarc, anhidrid, mulit kao i gelenit. Uočava se da samo mali udeo anhidrovane faze gipsa uspeva da se transformiše prilikom pečenja, formirajući mineral gelenit.

Uočene su značajne korelacije između brzine površinske ekshalacije i koeficijenta apsorpcije vode, koeficijenta emanacije i udela fosfogipsa u uzorku, kao i brzine površinske ekshalacije radona i masenog udela Ca i S u uzorcima, kao i ostalih analiziranih elemenata XRF metodom.

Na osnovu svega analiziranog u poglavlju 10 može se zaključiti da upotreba fosfogipsa u proizvodnji opeke sa udelom fosfogipsa do 40% ne daje prekomernu izloženost ljudi zračenju u zatvorenom prostoru. Sve dobijene vrednosti su oko ili ispod preporučenih vrednosti za građevinske materijale. Dobijeni rezultati su uporedivi sa drugim sličnim studijama što potvrđuje tačnost dobijenih rezultata. Iz ovoga se može zaključiti da upotreba fosfogipsa sa sadržajem ²²⁶Ra oko 500 Bq kg⁻¹ u proizvodnji opeke ne predstavlja naročitu radijacionu opasnost za izloženost ljudi jer je sam tehnološki postupak proizvodnje, odnosno pečenja, doveo do minimiziranja radijacionih efekata, pre svega emanacije radona iz uzoraka. Prema dobijenim rezultatima karakterizacije uzoraka opeke može se zaključiti da ovakav način iskorišćavanja fosfogipsa daje pozitivne efekte. Ovakvim načinom iskorišćenja otpadnog fosfogipsa smanjile bi se velike količine otpada na deponijama u blizini reka i mora, i smanjili neželjeni efekti kontaminacije životne sredine, a dobila bi se i velika ekonomska korist.

- U poglavlju 11 aktivnim uređajima RAD7 i RTM 1688-2 merena je akumulacija radona iz uzoraka fosfogipsa i prirodnog gipsa u mernim komorama različitih zapremina 1,5-30 l. Merenja su izvršena kako za praškaste tako i za uzorke u čvrstom stanju. Uočene su značajne varijacije efektivne konstante raspada radona koja kao integralne doprinose sadrži efekat

povratne difuzije i efekat curenja radona koji su uticali na varijacije koeficijenta emanacije radona, kao i brzine masene ekshalacije. Uočene varijacije pri merenju u komori zapremine 1,5 l pripisuju se izraženom efektu povratne difuzije, dok je za više zapremine glavni uzrok dobijenih varijacija izražen efekat curenja mernih sistema prilikom merenja akumulacije radona. Nakon merenja uređajem RAD7 sprovedena su dodatna merenja ekshalacije za pojedine uzorke uređajem RTM 1688-2, gde je jasno uočeno smanjenje efektivne konstante raspada sa povećanjem zapremine mernog sistema. Merenjem curenja radona iz mernih komora zapremina 1,5 l, 2,5 l i 30 l uređajem RTM 1688-2 ustanovljeno je da i efekat curenja opada sa povećanjem zapremine merne komore. Ako se uporede dobijene konstante curenja sa određenim vrednostima efektivnih konstanti raspada uređajem RTM 1688-2, uočena neslaganja su direktna posledica loše zaptivenosti mernih sistema, tako da se i sam ljudski faktor mora uzeti u obzir. Isti zaključci mogu se izvesti i pri merenju sa dva RAD7 uređaja, ali treba naglasiti da svaki karakterišu različite konstante povratne difuzije kao i konstante curenja radona. Ovde je potrebno sprovoditi dodatna istraživanja curenja dva RAD7 merna sistema, kako bi se zasigurno potvrdila dominantnost efekta curenja koji je odgovoran za varijacije koeficijenta emanacije radona.

Fitovanje krive akumulacije radona u mernoj komori sa najizraženijim efektom povratne difuzije, komora zapremine 1,5 l u kojoj je nastupila sekularna radioaktivna ravnoteža, je sprovedeno u 10 vremenskih intervala po 25h sa ciljem praćenja efektivne konstante raspada i koeficijenta emanacije radona tokom vremena. Uočeno je povećanje efektivne konstante raspada tokom vremena, što je rezultiralo smanjenjem koeficijenta emanacije radona kao i povećanjem brzine masene ekshalacije, što je potvrđeno uspostavljanjem značajnih korelacija, Slike 11.11 i 11.2.

Između ostalog analizirana je i emanacija radona iz uzorka fosfogipsa razdvojenog u 3 frakcije. Može se zaključiti da se sa smanjenjem veličine frakcije povećava njegova sposobnost napuštanja zrna i emaniranje u okolni vazduh, jer da bi se to desilo u većim frakcijama, radon mora prvo da migrira u najsitnije pore pa tek onda da difunduje u okolni vazduh, što rezultira manjim koeficijentom emanacije, odnosno smanjenom brzinom ekshalacije, Slika 11.16. Dakle uočeno je povećanje koeficijenta emanacije i brzine masene ekshalacije radona sa smanjenjem veličine frakcije.

Glavne prednosti ovakvog načina merenja emanacije radona iz građevinskih materijala, kako za balk uzorke, tako i za frakcije, jesu da se u slučaju merenja aktivnom metodom može proceniti početna koncentracija aktivnosti radona u mernom sistemu, kao i efektivna konstanta raspada, što pasivnim metodama nije moguće. U slučaju merenja aktivnim uređajem, varijacije efekata povratne difuzije i curenja odnosno efektivne konstante raspada radona mogu stvoriti analizirane poteškoće što može u velikoj meri uticati na vrednosti koeficijenta emanacije, koji raste sa povećanjem zapremine merne komore usled slabljenja efekata curenja i povratne difuzije. Efekta curenja zavisi od samog dizajna komore kao i samog eksperimentatora koji vrši zaptivanje merne komore i mernog sistema u celini.

Dakle, integralni efekti povrate difuzije i curenja mogu biti veoma izraženi kod uzoraka sa visokom koncentracijom aktivnosti ^{226}Ra , što je bio slučaj u ovoj studiji. Kod uzoraka građevinskih materijala sa niskim sadržajem ^{226}Ra ($< 10 \text{ Bq kg}^{-1}$) glavni uzroci loših procena vrednosti koeficijenta emanacije, odnosno njihovih varijacija leže i u malom akumuliranom odbroju u aktivnom uređaju, praćenim visokom mernom nesigurnosti, što je uočeno kod NG uzoraka. Ovo ukazuje na potrebu za opsežnijim istraživanjima, u kojima bi se poboljšala statistika odbroja uzoraka sa niskim sadržajem ^{226}Ra i preciznije odredili koeficijenti emanacije radona.

Is svega se može zaključiti da je pri određivanju koeficijenta emanacije radona iz uzoraka građevinskih materijala potrebno koristiti merne komore koje su znatno veće zapremine u odnosu na ispitivani uzorak kako bi se efekat povratne difuzije mogao zanemariti. U suprotnom rezultat koeficijenta emanacije u mnogome zavisi od koncentracije aktivnosti ^{226}Ra kao i zapremine uzorka i merne komore. Naročito je bitno posvetiti pažnju zaptivanju merne komore, kao i mernog sistema u celosti. Ovim preporukama se može optimizovati sam postupak merenja emanacije radona iz građevinskih materijala, jer se pomenutim preporukama dobija tačniji i precizniji rezultat koeficijenta emanacije radona. Potrebno je sprovesti dodatna istraživanja kako bi se dobijene vrednosti uporedile sa kraćim intervalima merenja npr. do 5h, gde bi se uočeni efekti povratne difuzije i curenja mogli zanemariti, a dobijene vrednosti uporedile sa onim datim u poglavlju 11. Potrebna su dodatna istraživanja kako bi se optimizovala metoda merenja ekshalacije radona kod uzoraka građevinskih materijala koji sadrže niže koncentracije aktivnosti ^{226}Ra , kao što je to bio slučaj sa uzorcima prirodnog gipsa u ovoj studiji. Optimizacijom metode merenja bi se uspostavile značajnije korelacije za krive akumulacije radona i time prociznije odredio koeficijent emanacije radona.

- U poglavlju 12 određeni su koeficijenti emanacije radona za selektovane građevinske materijale koji se najčešće koriste u Srbiji za oblaganje podnih površina. Izvršena je XRD i XRF analiza svih uzoraka kao i merenje poroznosti prema metodi živine porozimetrije kao i metodama apsorpcije vode. Najpre su sprovedena merenja ekshalacije iz uzorka granita sa najvišim sadržajem ^{226}Ra od oko 300 Bq kg^{-1} . Merenja su sprovedena koristeći dve različite eksperimentalne postavke uređajima RAD7 (postavka kao u poglavlju 11) kao i uređajima AlphaGuard i AlphaE (postavka data na Slici 12.1). Uočene su varijacije koeficijenata emanacije usled izraženih efekata curenja i povratne difuzije pri merenju sa različitim eksperimentalnim postavkama. Ovim je zaključeno da eksperimentalna postavka data na Slici 12.1 nije najidealnija za određivanje koeficijenta emanacije radona iz uzoraka građevinskih materijala, pre svega zbog izraženih efekata curenja i povratne difuzije koji dovode do prekomerne varijacije u rezultatima.

Određena je poroznost svih uzoraka metodama apsorpcije vode i živinom porozimetrijom, gde su uočene značajne korelacije među izmerenim veličinama. Metodom živine porozimetrije određena je raspodela udela pora u ukupnoj zapremini otvorenih pora prema poluprečnicima. Dobijeni rezultati ukazuju da najveće udele najsitnijih pora $< 1\mu\text{m}$, imaju materijali koji prolaze kroz proces presovanja i pečenja na visokim temperaturama kao što su keramičke pločice. Prirodni materijali kao što su mermer i granit imaju nisku ukupnu poroznost sa najvećim udelom pora $> 4 \mu\text{m}$. Uzorak biber crepa najveći udeo pora u ukupnoj poroznosti sadrži u opsegu $1-0,12 \mu\text{m}$, dok ostali analizirani uzorci sadrže udele pora u dosta širim opsezima.

Može se zaključiti da materijali sa višim udelom CaO imaju i više koeficijente emanacije radona (što je zabeleženo kod uzoraka koji ne prolaze termičku obradu, kao što su beton, košuljica, teraco pločica i mermer) za razliku od npr. keramičkih pločica ili keramičke pločice otporne na hemikalije.

Dobijene vrednosti ukazuju da su niži koeficijenti emanacije radona svojstveni za keramičke materijale upravo zbog sadržaja najsitnijih pora sa najvećim udelom u ukupnoj poroznosti. Dakle materijali koji prolaze kroz proces vitifikacije odnosno pojave tečne faze odnosno rastopa rezultiraju relativno niskom ukupnom poroznošću kao i raspodelom veličine pora sa nižim poluprečnicima. Ovo je praćeno prisustvom mulite kristalne faze što dovodi

do relativno velikih gustina materijala (većih od $2,2 \text{ g cm}^{-3}$) koja utiče na to da radon ostane zarobljen u sitnijim porama, što je rezultiralo niskim vrednostima koeficijenta emanacije.

Veći udeo hematitne faze kod materijala koji se peku na nižim temperaturama, kao kod uzorka starog biber crepa BC može se dovesti u vezu sa povećanjem poroznosti materijala ali i sa većim vrednostima koeficijenta emanacije u odnosu na druge keramičke materijale.

Kod granita usled velike gustine materijala (veće od $2,5 \text{ g cm}^{-3}$) ukupna poroznost je niska, što je praćeno udelom pora sa većim poluprečnicima. Koeficijent emanacije u ovom slučaju zavisi direktno od mineraloškog sastava, ali i koncentracije aktivnosti ^{226}Ra što je praćeno većim koeficijentom emanacije radona.

Dakle, koeficijent emanacije u mnogome zavisi ne samo od koncentracije aktivnosti ^{226}Ra nego i od strukturnih karakteristika kao što su udeo veličine pora u ukupnoj poroznosti, mineraloškog i hemijskog sastava, odnosno načina proizvodnje analiziranog materijala.

Da bi se uspostavile značajnije korelacije između koeficijenta emanacije radona i ukupne poroznosti materijala, ali i odgovarajućeg opsega veličine pora u ukupnoj poroznosti, potrebno je obaviti još opsežnija istraživanja. Dodatna istraživanja treba sprovesti sa materijalima viših koncentracija aktivnosti ^{226}Ra čime bi se poboljšala statistika odbroja prilikom merenja ekshalacije radona. Potrebno je merenja ekshalacije radona sprovesti sa nekom od pasivnih mernih tehnika, kako bi se uporedile dobijene vrednosti koeficijenata emanacije radona.

Korišćenjem materijala sa sadržajem radijuma većim od 100 Bq kg^{-1} u budućim ispitivanjima bi se zasigurno preciznije odredili koeficijenti emanacije imajući u vidu veću sposobnost difuzije radona iz najsitnijih pora ka površini materijala, što je kod većine analiziranih materijala iz Tabele 12.1 bio glavni problem koji je uticao na statistiku odbroja, usled niskog sadržaja ^{226}Ra , što je zaključeno i u poglavlju 1 kod uzoraka prirodnog gipsa.

Iz svega zaključenog se može reći da je ova doktorska disertacija svojim zaključcima nesumnjivo dala značajan doprinos povezivanju strukturnih i radioloških karakteristika građevinskih materijala, što joj daje jedinstven i originalan karakter kako u Srbiji tako i u svetu.

Doktorska disertacija je po prvi put sprovela karakterizaciju fosfogipsa kao NORM materijala proizvedenog u Srbiji, razmotrila načine i mogućnosti njegovog recikliranja i time dala na svome značaju. Studija je predložila inovativno rešenje njegovog iskorišćenja u proizvodnji opeke kojim se mogu ukloniti velike količine opasnog hemijskog otpada što potvrđuju rezultati dobijeni u ovoj studiji. Potom još jedan od najvažnijih naučnih doprinosa, pored ostalih, koji je ova doktorska disertacija dala jeste i predlog korekcije teorijskih modela procene jačina apsorbovanih doza gama zračenja za pojedine vrste građevinskih materijala.

Iz svega predstavljenog može se uočiti da ova obimna studija daje konkretne zaključke koji su od interesa za samu Republiku Srbiju iz oblasti zaštite od zračenja i zaštite životne sredine. Iz tog razloga će dobijeni rezultati zasigurno poslužiti za dalja istraživanja i studije o proceni radijacionog uticaja građevinskih materijala na izloženost ljudi.

14 Prilozi

14.1 Prilog A

Emisija gama zračenja iz granitnih ploča koje pokrivaju unutrašnjost betonske sobe primenom Monte Karlo simulacija na bazi softveskog paketa GEANT 4 (v. 4.9.5)

DetectorConstruction.cc fajl

Definisanje sastava i gustine granita:

```
materijalsManager->AddMaterijal("Granit", "O0.481987-Na0.0273-Mg0.00426-Al0.0764-Si0.3386-P0.000528-K0.0342-Ca0.0129-Ti0.0018-Mn0.000385-Fe0.02164", 2.75*g/cm3, "");
```

Konstrukcija betonske sobe i granitnim pločama pokrivena unutrašnjosti:

```
// S O B A (DOBIJENA TAKO STO JE IZ VECE ZAPREMINE KVADRA CIJE SU DIMENZIJE BoxOutX
,BoxOutY, BoxOutZ "IZVADJENA" ZAPREMINA KVADRA CIJE SU DIMENZIJE BoxInX, BoxInY, BoxInZ
```

```
//unutrasnji -aktivni granitni deo sobe iz kojeg se vrsi emisija gama zracenja (granit
debljine 3 cm, bez emisije iz plafona)
```

```
G4double BoxOutX=506*cm; G4double BoxOutY=406*cm; G4double BoxOutZ=286*cm;
G4double BoxZ=0*cm;
```

```
G4double BoxInX=500*cm; G4double BoxInY=400*cm; G4double BoxInZ=280*cm;
```

```
G4Box* solidPlastBoxOut=new G4Box("solidPlastBoxOut",BoxOutX/2,BoxOutY/2,BoxOutZ/2);
G4Box* solidPlastBoxIn=new G4Box("solidPlastBoxIn",BoxInX/2,BoxInY/2,BoxInZ/2);
G4SubtractionSolid* solidPlastBox=new
G4SubtractionSolid("solidPlastBox",solidPlastBoxOut,solidPlastBoxIn);
G4LogicalVolume* logicalPlastBox=new
G4LogicalVolume(solidPlastBox,Granit,"logicalPlastBox",0,0,0);
logicalPlastBox-
>SetVisAttributes(G4VisAttributes(G4Colour(0.9,0.9,0.0)));
G4VPhysicalVolume* physicalPlastBox
=new
G4PVPlacement(0,G4ThreeVector(0,0,BoxZ),logicalPlastBox,"physicalPlastBox",logicWorld,false
,0);
```

```
//*****SPOLJNI PASIVNI BETONSKI ZIDOVI SOBE iz kojih nema emisije gama zracenja
```

```
G4double Box1OutX=526*cm; G4double Box1OutY=426*cm; G4double Box1OutZ=306*cm;
G4double Box1Z=0*cm;
```

```
G4double Box1InX=506*cm; G4double Box1InY=406*cm; G4double Box1InZ=286*cm;
```

```
G4Box* solidPlastBox1Out=new
G4Box("solidPlastBox1Out",Box1OutX/2,Box1OutY/2,Box1OutZ/2);
G4Box* solidPlastBox1In=new G4Box("solidPlastBox1In",Box1InX/2,Box1InY/2,Box1InZ/2);
G4SubtractionSolid* solidPlastBox1=new
G4SubtractionSolid("solidPlastBox1",solidPlastBox1Out,solidPlastBox1In);
```

```

G4LogicalVolume* logicalPlastBox1=new
G4LogicalVolume(solidPlastBox1,Concrete,"logicalPlastBox1",0,0,0);
                logicalPlastBox1-
>SetVisAttributes(G4VisAttributes(G4Colour(0.4,0.5,0.0)));
G4VPhysicalVolume* physicalPlastBox1
                =new
G4VPPlacement(0,G4ThreeVector(0,0,Box1Z),logicalPlastBox1,"physicalPlastBox1",logicWorld,fa
lse,0);

```

Zadavanje emisije gama zračenja iz granitnog sloja debljine 3cm na podlozi i bocnim zidovima primenom naredbe "confine" u .mac fajlu (emisioni cilindar poluprecnika 5m i poluvisine 1.45 m (visina 2.9m) se preklapa sa objektom *physicalPlastBox* definisanim u *DetectorConstruction.cc*, ali tako da je centar cilindra pomeren relativno u odnosu na centar objekta *physicalPlastBox* z-osi, te gornji granitni sloj ostaje nepreklopljen sa emisionim cilindrom, cime izostaje emisija gama zracenja iz gornjeg (plafonskog) granitnog sloja)

CONFINE-Ra-Th-K-RUN1.mac fajl

```

/gps/pos/type Volume
/gps/pos/shape Cylinder
/gps/pos/radius 5 m
/gps/pos/halfz 1.45 m # poluvisina cilindra
/gps/pos/centre 0 0 5 cm

```

```

/gps/pos/confine physicalPlastBox # Naziv mora odgovarati physicalVolume ,tj. objektu
definaisanom u DetectorConstruction.cc

```

```

/gps/ang/type iso//izotropna emisija

```

```

/gps/particle gamma//gama zracenje

```

Zadavanje energije gama kvanata i broja emitovanih gama kvanata u jednom konkretnom run-u:

```

# 1000 000 raspada #Ra226 *****

```

```

/gps/energy 186. keV//energija
/run/beamOn 32000//broj emitovanih gama kvanata date energije

```

```

/gps/energy 609.3 keV
/run/beamOn 462000

```

```

/gps/energy 768.4 keV
/run/beamOn 50000

```

```

/gps/energy 1120.3 keV
/run/beamOn 151000

```

```

/gps/energy 1764. keV
/run/beamOn 158000

```

```

/gps/energy 295.2 keV
/run/beamOn 192000

```


14.2 Prilog B

Tabela 14.1 Lista alaniziranih uzoraka keramičkih pločica korišćenih u građevinarstvu u Srbiji sa zemljama porekla i izmerenim koncentracijama ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K .

Redni broj	Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)		
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
1	Italija	63±5	57±4	780±50
2	Italija	63±6	33±3	360±30
3	Indija	87±7	76±5	530±40
4	Italija	58±6	51±5	640±50
5	Italija	54±4	51±4	660±50
6	Italija	84±5	41±3	720±50
7	Italija	62±5	49±4	890±60
8	Italija	89±7	52±4	930±70
9	Italija	17±3	27±4	< 60
10	Italija	48±5	31±4	470±50
11	Italija	92±9	68±8	830±70
12	Italija	33±4	36±4	700±50
13	Italija	72±5	37±3	350±40
14	Italija	95±7	53±6	900±60
15	Italija	113±7	50±5	1000±80
16	Italija	62±6	84±7	600±60
17	Italija	110±7	49±4	470±40
18	Italija	36±3	42±4	410±40
19	Italija	44±4	26±3	330±40
20	Italija	59±5	54±4	480±40
21	Italija	34±4	68±7	885±50
22	Italija	44±4	27±3	440±30
23	Italija	96±8	71±6	505±29
24	Italija	42±4	20±2	560±50
25	Italija	57±4	36±4	600±60
26	Italija	69±6	61±5	740±60
27	Italija	252±10	69±7	790±60
28	Italija	43±4	48±5	510±40
29	Italija	120±6	34±2	517±29
30	Italija	46±4	28±3	500±40
31	Italija	43±4	24±3	550±50
32	Italija	56±5	36±3	440±40
33	Italija	51±5	45±4	560±50
34	Italija	52±5	40±5	420±40
35	Italija	60±5	24±3	280±30
36	Italija	107±7	50±5	580±60
37	Italija	48±5	94±8	540±50
38	Italija	76±7	54±5	511±35
39	Italija	47±4	40±4	653±30
40	Italija	39±4	21±2	370±40
41	Italija	23±2	54±4	410±40

Tabela 14.1 (nastavak)

Redni broj	Zemlja porekla	Koncentracija aktivnosti (Bq kg ⁻¹)		
		²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
42	Španija	111±9	51±5	1070±80
43	Španija	59±5	52±5	960±40
44	Španija	55±5	58±6	890±60
45	Španija	50±4	31±3	290±30
46	Španija	70±6	77±7	600±50
47	Španija	46±3	31±3	400±30
48	Španija	59±6	50±5	840±60
49	Španija	54±4	48±4	810±60
50	Španija	43±4	61±5	435±30
51	Španija	65±7	72±8	1110±80
52	Španija	79±6	59±6	530±50
53	Španija	55±4	46±4	810±60
54	Španija	39±3	32±3	240±30
55	Španija	37±3	30±3	188±24
56	Španija	63±6	69±7	320±19
57	Španija	99±8	40±4	634±30
58	Španija	46±4	33±4	710±60
59	EU	56±6	55±7	698±99
60	EU	116±10	66±5	710±60
61	EU	53±4	31±3	390±40
62	Hrvatska	21±2	10±2	230±30
63	Hrvatska	16±2	7±2	71±12
64	Hrvatska	46±4	42±4	430±30
65	Hrvatska	82±5	24±2	430±30
66	Slovenija	19±2	< 4	221±13
67	Kina	82±6	96±8	650±70
68	Kina	88±7	85±6	820±50
69	Kina	109±10	65±8	320±50
70	Kina	149±10	54±4	456±27
71	Kina	47±5	58±5	340±40
72	Kina	71±5	94±8	760±50
73	Kina	106±8	117±11	550±40
74	Kina	79±4	159±7	580±40
75	Kina	185±9	84±7	980±60
76	Turska	39±3	28±3	370±40
77	Bugarska	39±3	35±3	169±25
78	Rumunija	28±2	23±2	247±16

14.3 Prilog C

Definisanje sastava i gustine opeke sa fosfogipsom (primer sastava za uzorak br.1):

```
materijalsManager->AddMaterijal("Opeka", "00.48161-Na0.0048-Mg0.0101-Al0.1532-Si0.2689S0.00021-K0.0198-Ca0.0041-Mn0.00008-Fe0.0572", 1.5*g/cm3, "");
```

Konstrukcija sobe od opeke sa fosfogipsom:

```
// S O B A (DOBIJENA TAKO STO JE IZ VECE ZAPREMINE KVADRA CIJE SU DIMENZIJE BoxOutX
,BoxOutY, BoxOutZ "IZVADJENA" ZAPREMINA KVADRA CIJE SU DIMENZIJE BoxInX, BoxInY,
BoxInZ
```

```
    primetiti da je debljina zidova od 25 cm obezbedjenan asledecinacin,
    obzirom da su spoljasnji i untrasnjikvadar medjusobno centrirani:
    (BoxOutX - BoxInX)/2 = 1/2*(550*cm - 500*cm) = 25 cm
    . (BoxOutY - BoxInY)/2 = 1/2*(450*cm - 400*cm) = 25
    cm . (BoxOutZ - BoxInZ)/2 = 1/2*(330*cm - 280*cm) =
    25 cm .
```

```
G4double BoxOutX=550*cm; G4double BoxOutY=450*cm; G4double
BoxOutZ=330*cm; G4double BoxZ=0*cm;
```

```
G4double BoxInX=500*cm; G4double BoxInY=400*cm; G4double BoxInZ=280*cm;
G4Box* solidPlastBoxOut=new
G4Box("solidPlastBoxOut", BoxOutX/2, BoxOutY/2, BoxOutZ/2);
G4Box* solidPlastBoxIn=new G4Box("solidPlastBoxIn", BoxInX/2, BoxInY/2, BoxInZ/2);
G4SubtractionSolid* solidPlastBox=new
G4SubtractionSolid("solidPlastBox", solidPlastBoxOut, solidPlastBoxIn);
G4LogicalVolume* logicalPlastBox=new
G4LogicalVolume(solidPlastBox, Opeka, "logicalPlastBox", 0, 0, 0);
logicalPlastBox->SetVisAttributes(G4VisAttributes(G4Colour(0.9, 0.9, 0.0)));
G4VPhysicalVolume* physicalPlastBox
=new
G4VPlacement(0, G4ThreeVector(0, 0, BoxZ), logicalPlastBox, "physicalPlastBox", logicWorld, false, 0);
```

Zadavanje emisije gama zračenja samo iz zidova (bez plafona i poda) primenom naredbe "confine" u .mac fajlu (emisioni cilindar poluprečnika 5m i poluvisine 1.40 m (visina 2.8 m) se preklapa sa objektom *physicalPlastBox* definisanim u DetectorConstruction.cc, tako da se centar cilindra i centar objekta *physicalPlastBox* (koji reprezentuje sobu) poklapaju, te pod i plafon sobe ostaju nepreklopljeni sa emisionim cilindrom, cime izostaje emisija gama zračenja iz poda i plafona)

CONFINE-Ra-Th-K-RUN-phospo1.mac fajl

```
/gps/pos/typeVolume
/gps/pos/shapeCylinder
/gps/pos/radius 5 m
/gps/pos/halfz 1.40 m # poluvisina cilindra
/gps/pos/centre 0 0 0 cm
```

```
/gps/pos/confinephysicalPlastBox
```

```
# Naziv mora odgovarati physicalVolume ,tj.  
objektu definisanom u DetectorConstruction.cc
```

```
/gps/ang/typeiso
```

```
/gps/particlegamma
```

Zadavanje energije gama kvanata i broja emitovanih gama kvanata u jednom konkretnom run-u (prime remisije u slučaju uzorka sa 0% PG):

```
# 1000 000 raspada #Ra226 *****
```

```
/gps/energy 186. keV  
/run/beamOn 32000
```

```
/gps/energy 609.3 keV  
/run/beamOn 462000
```

```
/gps/energy 768.4 keV  
/run/beamOn 50000
```

```
/gps/energy 1120.3 keV  
/run/beamOn 151000
```

```
/gps/energy 1764. keV  
/run/beamOn 158000
```

```
/gps/energy 295.2 keV  
/run/beamOn 192000
```

```
/gps/energy 351.9 keV  
/run/beamOn 372000
```

```
# 1.16 x 1000 000 raspada Th232 *****
```

```
/gps/energy 338. keV  
/run/beamOn 131161
```

```
/gps/energy 911.1 keV  
/run/beamOn 321518
```

```
/gps/energy 969.1 keV  
/run/beamOn 192679
```

```
/gps/energy 238.6 keV  
/run/beamOn 517679
```

```
/gps/energy 583.1 keV  
/run/beamOn 348214
```

```
/gps/energy 2614.5 keV  
/run/beamOn 413214
```

```
# 11.1 x 1000 000 raspada K40 *****
```

```
/gps/energy 1460.8 keV  
/run/beamOn 1168040
```

Zadavanje vodenog cilindra u kojem se posmatra deponovanje energije gama zracenja:

```
if(DetectorCode=="D")  
  
DetectorRadius=110*mm; DetectorHeight=1700*mm;  
  
    z[0]=0*m; z[1]=z[0]+DetectorHeight;          r[0]=0*mm; r[1]=0*mm;  
R[0]=DetectorRadius; R[1]=DetectorRadius;  
  
    G4ThreeVector positionDetector = G4ThreeVector(0,0,-300*mm);  
DetectorMater = materijalsManager->GetMaterijal("G4_WATER");  
solidDetector = new G4Polycone("detector",0.,twopi,2,z,r,R);  
logicDetector = new G4LogicalVolume(solidDetector ,DetectorMater, "Detector",0,0,0);  
physiDetector = new G4PVPlacement(0, positionDetector,  
logicDetector,"Detector",logicWorld,false,0);          logicDetector-  
>SetSensitiveDetector(SD);          ScoringVolumeMass=logicDetector->GetMass();  
  
};
```

15 Reference

- Abbasi, A. and Hassanzadeh, M., 2017. Measurement and Monte Carlo simulation of gamma-ray dose rate in high-exposure building materijals. *Nucl. Sci. Tech.* 28,1-5. <https://doi.org/10.1007/s41365-016-0171-x>
- Abbasi, A., 2013. Calculation of gamma radiation dose rate and radon concentration due to granites used as building materijals in Iran. *Radiat. Prot. Dosim.*, 155, 335–342. doi:10.1093/rpd/nct003
- Abdullahi, S., Ismail, A.F., Samat, S., 2019. Determination of indoor doses and excess lifetime cancer risks caused by building materijals containing natural radionuclides in Malaysia. *Nucl. Eng. and Technol.* 51, 325-336. <https://doi.org/10.1016/j.net.2018.09.017>
- Abo-Elmagd, M., 2014. Radon exhalation rates corrected for leakage and back diffusion – Evaluation of radon chambers and radon sources with application to ceramic tile. *J. Radiat. Res. Appl. Sci.*, 7(4), 390–398. doi:10.1016/j.jrras.2014.07.001
- Abo-Elmagd, M., Saleh, A., Afifi, G. 2018. Evaluation of radon related parameters in environmental samples from Jazan city, Saudi Arabia. *J. Radiat. Res. Appl. Sci.*, 11(1), 104–110. doi:10.1016/j.jrras.2017.12.001
- Agaguunodo, T.A., George, A.L., Ojoawo, I.A., Ojesanmi, K., Ravisnkar, R., 2018. Radioactivity and radiological hazards from a kaolin mining field in Ifonyintedo, Nigeria, *MethodsX*, 5, 362–374. <https://doi.org/10.1016/j.mex.2018.04.009>
- Agostinelli, S., et al. 2003. GEANT4 - A simulation toolkit. *Nucl. Instrum. Meth. A.*, 506, 250–303. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(03\)01368-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01368-8).
- Ajam, L., Ben El Haj Hassen, A., Reguigui, N., 2019. Phosphogypsum utilization in fired bricks: Radioactivity assessment and durability. *J. Build. Eng.*, 26, 100928. <https://doi.org/10.1016/j.jobbe.2019.100928>
- Ajam, L., Ouezdou, M.B., Felfoul, H.S., El Mensi, R., 2009. Characterization of the Tunisian phosphogypsum and its valorization in clay bricks, *Constr. Build. Mater.*, 23(10), 3240-3247, <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2009.05.009>
- Alali, E., Al-Shboul, K.F., Albhour, S.A., 2018. Radioactivity measurement and radiological hazard assessment of the commonly used granite and marble in Jordan. *Radiat. Prot. Dosim.* 182:386-393 doi: 10.1093/rpd/ncy077
- Al-Azmi, D., Okeyode, I.C., Alatise, O.O., Mustapha, A.O., 2018. Setup and procedure for routine measurements of radon exhalation rates of building materijals. *Radiat. Meas.*, 112, 6–10. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2018.03.001>

- Al-Hwaiti, M.S., 2015. Assessment of the radiological impacts of treated phosphogypsum used as the main constituent of building materijals in Jordan. *Environ. Earth. Sci.*, 74(4), 3159–3169. doi:10.1007/s12665-015-4354-2
- Aligizaki, K., 2006. Pore structure of cement-based materijals Taylor & Francis. New York, SAD.
- Al-Jarallah, M., 2001. Radon exhalation from granites used in Saudi Arabia. *J. Environ. Radioac.* 53, 91-98. doi:10.1016/s0265-931x(00)00110-7
- Al-Jundi, J., Al-Ahmad, N., Shehadeh, H., Afaneh, F., Maghrabi, M., Gerstmann, U., Hollriegl, V., Oeh, U., 2008. Investigations on the activity concentrations of ^{238}U , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb and ^{40}K in Jordan phosphogypsum and fertilizers. *Radiat. Prot. Dosim.*, 131(4), 449–454. doi:10.1093/rpd/ncn214
- Al-Zahrani, J.H., 2017. Estimation of natural radioactivity in local and imported polished granite used as building materijals in Saudi Arabia. *J. Radiat. Res. Appl. Sci.* 10, 241–245. <https://doi.org/10.1016/j.jrras.2017.05.001>
- Amin, S.A. and Naji, M., 2013. Natural radioactivity in different commercial ceramic samples used in Yemeni buildings. *Radiat. Phys. Chem.* 86 37–41. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2013.01.026>
- Anjos, R.M., Juri Ayub, J., Cid, A.S., Cardoso, R., Lacerda, T., 2011. External gamma-ray dose rate and radon concentration in indoor environments covered with brazilian granites. *J. Environ. Radioact.*, 102(11), 1055–1061. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2011.06.001>.
- Anjos, R.M., Veiga, R., Soares, T., Santos, A.M.A., Aguiar, J. G., Frascá, M.H.B.O., et al., 2005. Natural radionuclide distribution in Brazilian commercial granites. *Radiat. Meas.*, 39(3), 245–253. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2004.05.002>.
- Antović, I. and Antović, N., 2018. Uticaj zračenja na biološke sisteme. Matica srpska – Društvo članova u Crnoj Gori i Akademska knjiga Novi Sad, Podgorica, Novi Sad.
- ASTM C20 –00, 2010. Standard Test Methods for Apparent Porosity, Water Absorption, Apparent Specific Gravity, and Bulk Density of Burned Refractory Brick and Shapes by Boiling Water.
- ASTM C373–88, 2006. Standard Test Method for Water Absorption, Bulk Density, Apparent Porosity, and Apparent Specific Gravity of Fired Whiteware Products.
- Attallah, M.F., Hilal M.A., Moussa, S.I., 2017. Quantification of some elements of nuclear and industrial interest from zircon mineral using neutron activation analysis and passive gamma-ray spectroscopy. *Appl. Radiat. Isotopes.*, 128, 224–230. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2017.07.018>
- Awhida, A., Ujić, P., Đurašević, M., Kandić, A., Čeliković, I., Lončar, B., Kolarž, P., 2016. Novel method of measurement of radon exhalation from building materijals. *J. Environ. Radioact.* 164, 337-343. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2016.08.009>

- Aykamis, A.S, Turhan, S., Aysun Ugur, F., Baykan, U.N., Kilic, A.M., 2013. Natural radioactivity, radon exhalation rates and indoor radon concentration of some granite samples used as construction materijal in Turkey. *Radiat. Prot. Dosim.* 157: 105–111. doi:10.1093/rpd/nct110
- Bala, P., Kumar, V., Mehra, R., 2017. Measurement of radon exhalation rate in various building materijals and soil samples. *J. Earth. Syst. Sci.*, 126, 31. doi:10.1007/s12040-017-0797-z
- Ballesteros, L, Zarza, I., Ortiz, J., Serradell, V., 2008. Occupational exposure to natural radioactivity in a zircon sand milling plant. *J. Environ. Radioact.* 99, 1525-1529. doi:10.1016/j.jenvrad.2007.12.019
- Baskaran, M., 2016. Radon: A Tracer for Geological, Geophysical and Geochemical Studies. Springer International Publishing AG Switzerland. ISBN 978-3-319-21329-3, doi: 10.1007/978-3-319-21329-3
- Beck, K., Al-Mukhtar, M., Rozenbaum, O., Rautureau, M. 2003. Characterization, water transfer properties and deterioration in tuffeau: building materijal in the Loire valley—France. *Build. Environ.*, 38(9-10), 1151–1162. doi:10.1016/s0360-1323(03)00074-x
- Beckhoff, B., Langhoff, N., Kanngiesser, B., Wedell, R., Wolff, H., 2006. Handbook of Practical X-ray Fluorescence Analysis, Springer Berlin Heidelberg New York. ISBN-13 978-3-540-28603-5
- Beddiaf, S., Chihi, S., Leghrieb, Y., 2015. The determination of some crystallographic parameters of quartz, in the sand dunes of Ouargla, Algeria. *J. Afr. Earth. Sci.*, 106, 129–133. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jafrearsci.2015.03.014>
- Beretka, J., Mathew, P.J., 1985. Natural radioactivity of Australian building materijals, industrial waste sand by-products. *Health. Phys.* 48, 87–95.
- Bikit, I., Mrda, D., Grujic, S., Kozmidis-Luburic, U., 2011. Granulation effects on the radon emanation rate. *Radiat. Prot. Dosim.* 145, 184–188. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncr055>.
- Bikit, I., Mrdja, D., Bikit, K., Grujic, S., Knezevic, D., Forkapic, S., Kozmidis-Luburic, U. 2015. Radon adsorption by zeolite. *Radiat. Meas.*, 72, 70–74. doi:10.1016/j.radmeas.2014.12.001
- Borges, R.C., Araujo Ribeiro, F.C.A., Da Costa Lauria, D., Bellido Bernedo, A.V., 2013. Radioactive characterization of phosphogypsum from Imbituba, Brazil. *J. Environ. Radioactiv.* 126, 188-195. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.07.020>
- Bruzzi, L., Mele R., Padoani, F., 1992. Evaluation of gamma and alpha doses due to natural radioactivity of building materijals, *J. Radiol. Prot.*, 12(2), 67-76. doi: 10.1088/0952-4746/12/2/002

- Calin, M., R., Radulescu, I., Calin, M.A., 2015. Measurement and evaluation of natural radioactivity in phosphogypsum in industrial areas from Romania. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 304, 1303–1312. doi 10.1007/s10967-015-3970-3
- Camarini, G. and De Milito, J.A., 2011. Gypsum hemihydrate–cement blends to improve renderings durability. *Constr. Build. Mater.*, 25(11), 4121–4125. doi:10.1016/j.conbuildmat.2011.04.048
- Campos, M. P., Costa, L. J. P., Nisti, M. B., Mazzilli, B. P., 2017. Phosphogypsum recycling in the building materijals industry: assessment of the radon exhalation rate. *J. Environ. Radioactiv.*, 172, 232–236. doi:10.1016/j.jenvrad.2017.04.002
- Castellanos, O. M., Ríos, C. A., Ramos, M. A., Plaza, E. V., 2012. A comparative study of mineralogical transformations in fired clays from the laboyos valley, upper magdalena basin (Kolombia). *Boletin de Geologia* 34(1), 43-55.
- Bikit, I., Slivka, J., Mrdja, D., Zikic-Todorovic, N., Curcic, S., Varga, E., Veskovic, M., Conkic, Lj., 2003. Simple Method for Depleted Uranium Determination. *Jpn. J. Appl. Phys.* 42 5269–5273. DOI: 10.1143/JJAP.42.5269.
- Cazula, C.D, Campos, M.P., Mazzilli, B.P., 2015. Gamma exposure due to building materijals in a residential building at Peruibe, Sao Paulo, Brazil. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 306, 637–640.
- Chandara, C., Azizli, K.A.M., Ahmad, Z.A., Sakai, E., 2009. Use of waste gypsum to replace natural gypsum as set retarders in portland cement. *Waste Manage.*, 29, 1675-1679. doi:10.1016/j.wasman.2008.11.014
- Chang, B.U., Koh, S.M., Kim, Y.J., Seo, J.S., Yoon, Y.Y., Row, J.W., Lee, D.M., 2008. Nationwide survey on the natural radionuclides in industrial raw minerals in South Korea. *J. Environ.Radioact.* 99, 455-460. doi:10.1016/j.jenvrad.2007.08.020
- Chao, C.Y.H., Tung, T.C.W., Chan, D.W.T., Burnett, J., 1997. Determination of radon emanation and back diffusion characteristics of building materijals in small chamber tests. *Build. Environ.*, 32, 355–362.
- Chauhan, R.P., Chakarvarti, S.K., 2002. Radon diffusion through soil and fly ash: effect of compaction. *Radiat. Meas.* 3, 143–146. [https://doi.org/10.1016/S1350-4487\(01\)00287-6](https://doi.org/10.1016/S1350-4487(01)00287-6)
- Chen, J., Rahman ,N.M., Atiya, I.A., 2010. Radon exhalation from building materijals for decorative use. *J. Environ. Radioac.* 101, 317–322. doi:10.1016/j.jenvrad.2010.01.005
- Chowdhury, M.I., Alam, M.N., Ahmed, A.K.S., 1998. Concentration of radionuclides in building and ceramic materijals of Bangladesh and evaluation of radiation hazard, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 231, 117-122 <https://doi.org/10.1007/BF02388016>

- Coletti, C., Cultrone, G., Maritan, L., Mazzoli, C., 2016. Combined multi-analytical approach for study of pore system in bricks: How much porosity is there? *Mater. Charact.*, 121, 82-92. <http://dx.doi.org/10.1016/j.matchar.2016.09.024>
- Coletti, C., Cultrone, G., Maritan, L., Mazzoli, C., 2016. Combined multi-analytical approach for study of pore system in bricks: How much porosity is there? *Mater. Charact.*, 121, 82-92.
- Colle R., Rubin R. J., Knab L. 1., 1981. Hutchinson J. M. R., Radon transport through and exhalation from building materials: A Review and Assessment, NBS TECHNICAL NOTE 1139, U.S. DEPARTMENT OF COMMERCE.
- Committee , 2006. Committee to Assess Health Risks from Exposure to Low Levels of Ionizing Radiation, Board on Radiation Effects, Research Division on Earth and Life Studies, 2006. Health risks from exposure to low levels of ionizing radiation: BEIR VII, Phase 2, National Research Council of the National Academies. ISBN 0-309-53040-7.
- Contreras, M., Teixeira, S.R., Santos, G.T.A., Gázquez, M.J., Romero, M., Bolívar, J.P., 2018. Influence of the addition of phosphogypsum on some properties of ceramic tiles *Constr. Build. Mater.*, 175, 588-600. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.04.131>
- Corte, F.D., Umans, H., Vandenberghe, D., De Wispelaere, A., Van den haute, P., 2005. Direct gamma-spectrometric measurements of the ^{226}Ra 186.2 keV line for detecting $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ disequilibrium in determining the environmental dose rate for the luminescence dating of sediments. *Appl. Radiat. Isotopes* 63 589–598. doi:10.1016/j.apradiso.2005.05.008.
- Cosma, C., Dancea, F., Jurcut, T., Ristoiu, D., 2001. Determination of ^{222}Rn emanation fraction and diffusion coefficient in concrete using accumulation chambers and the influence of humidity and radium distribution. *Appl. Radiat. Isotopes.*, 54(3), 467–473. doi:10.1016/s0969-8043(00)00286-4
- Crespo, M.T., Peyres, V., Jose Ortiz, M., Gomez-Mancebo, M.B., Sanchez, M., 2018. Dissolution and radioactive characterization of resistate zircon sand. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 318, 1043–105. <https://doi.org/10.1007/s10967-018-6214-5>
- Cuadri, A.A., Navarro, F.J., García-Morales, M., Bolívar, J.P., 2014. Valorization of phosphogypsum waste as asphaltic bitumen modifier. *J. Hazard. Mater.* 279, 11–16. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2014.06.058>
- Currie, L. A., 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination. *Anal. Chem.* 40, 586–593. <https://doi.org/10.1021/ac60259a007>
- Čeliković, I., Đurašević, M., Ujić, P., Repić, P., Kandić, A., Lončar, B., 2017. Ispitivanje brzine ekshalacije radona: uticaj spršenosti i vlažnosti uzorka. 30. simpozijum Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore, 27-29. septembar 2017. Srebrno jezero, 225-231, Beograd. ISBN 978-86-7306-144-3
- Čonkić, Lj., 1997. Uvod u zaštitu životne sredine. Prirodno-matematički fakultet Novi Sad.

- Ćurguz, Z., Žunić, Z.S., Tollefsen, T., Jovanović, P., Nikezić, D., Kolarž, P., 2013. Active and Passive Radon Concentration Measurements And First-Step Mapping in Schools of Banja Luka, Republic of Srpska. *Rom. Journ. Phys.* 58, Supplement, P. S90–S98.
- Damla, N., Cevik, U., Kobya, A. I., Celik, A., Celik, N., Yıldırım, I. 2011. Assessment of natural radioactivity and mass attenuation coefficients of brick and roofing tile used in Turkey. *Radiat. Meas.*, 46(8), 701–708. doi:10.1016/j.radmeas.2011.06.004
- de Freitas V.P., and Delgado J.M.P.Q., 2013. *Durability of Building Materijals and Components.* Springer-Verlag Berlin Heidelberg. ISBN 978-3-642-37475-3. DOI 10.1007/978-3-642-37475-3.
- De Jong, P., Van Dijk, W. 2008. Modeling gamma radiation dose in dwellings due to building materijals. *Health Phys.*, 94(1), 33–42. <https://doi.org/10.1097/01.HP.0000278509.65704.11>.
- De Martino, S., Sabbarese, C., Monetti, G., 1998. Radon emanation and exhalation rates from soils measured with an electrostatic collector. *Appl. Radiat. Isotopes.*, 49(4), 407–413. [https://doi.org/10.1016/S0969-8043\(96\)00300-4](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(96)00300-4)
- De With, G., Kovler, K., Haquin, G., Yungrais, Y., de Jong, P., 2017. A comparison of methods for determination of the natural radioactivity content and radon exhalation. *Radiat. Meas.*, 105, 39-46. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2017.08.005>
- Del Claro, F., Paschuk, S.A., Corrêa, J.N., Denyak, V., Kappke, J., Perna, A.F.N., Martins, M.R., Santos, T.O., Rocha, Z., Schelin, H.R., 2017. Radioisotopes present in building materijals of workplaces. *Radiat. Phys. Chem.* 140, 141-145. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2017.02.037>
- Dentoni, V., Da Pelo, S., Mousavi Aghdam, M., Randaccio, P., Loi, A., Careddu, N., Bernardini, A., 2020. Natural radioactivity and radon exhalation rate of Sardinian dimension stones. *Constr. Build. Mater.*, 247, 118377. doi:10.1016/j.conbuildmat.2020.118377
- Discher, M., Mauz, B., Martin, L., Durcan, J. A., King, G. E., Tsakalos, E., Christodoulakis, J., Lang, A., 2018. Calculating or simulating the dose rate? A comparison. *Radiat. Meas.* 120 202–208. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2018.09.006>.
- Đarmati, Š.A., Veselinović, D.S., Gržetić, I.A., Marković, D.A., 2008. *Životna sredina i njena zaštita, knjiga I.* Fakultet za primenjenu ekologiju Futura, Beograd, Srbija. ISBN 978-86-86859-01-3.
- EC, 1990. (European Commission), Commission recommendation of February 1990 on the protection of the public against indoor exposure to radon (90/143/Euroatom).
- EC, 1999. (European Commission), Radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materijals, Radiation Protection 112. (Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection, European Commission, 1999). <https://ec.europa.eu/energy/sites/ener/files/documents/112.pdf>

- EC, 2002. (European Commission), Radiation protection 122 practical use of the concepts of clearance and exemption (Part II Application of the concepts of exemption and clearance to natural radiation sources). Directorate-General Environment https://ec.europa.eu/energy/sites/ener/files/documents/122_part2.pdf
- Eisenbud, M., and Gesell, T., 1997. Environmental Radioactivity from Natural, Industrial and Military Sources, 4th Edition. Academic Press. ISBN: 9780080505800.
- El Afifi, E.M., Hilal, M.A., Khalifa, S.M., Aly, H.F. 2006. Evaluation of U, Th, K and emanated radon in some NORM and TENORM samples. Radiat. Meas. 41, 627–633. doi:10.1016/j.radmeas.2005.09.014
- El Nouhy, H.A., 2013. Assessment of some locally produced Egyptian ceramic wall tiles, HBRC Journal 9, 201–209. <http://dx.doi.org/10.1016/j.hbrcj.2013.08.001>
- El-Bahi, S.M., Sroor, A., Gehan, Y.M., El-Gendy, N.S., 2017. Radiological impact of natural radioactivity in Egyptian phosphate rocks, phosphogypsum and phosphate fertilizers. Appl. Radiat. Isot. 123 121–127. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2017.02.031>
- El-Didamony, H., Ali, M.M., Awwad, N.S., Fawzy, M.M., Attallah, M.F, 2012. Treatment of phosphogypsum waste using suitable organic extractants. J. Radioanal. Nucl. Chem. 291, 907–914. doi 10.1007/s10967-011-1547-3.
- El-Didamony, H., Gado, H. S., Awwad, N. S., Fawzy, M. M., Attallah, M. F., 2013. Treatment of phosphogypsum waste produced from phosphate ore processing. J. Hazard. Mater., 244-245, 596–602. doi:10.1016/j.jhazmat.2012.10.053
- Eremić Savković, M., Udovičić, V., Maletić, D., Pantelić, G., Ujić, P., Celikovic, I., Forkapić S., Marković V., Arsić V., Ilić, J., Markoski, B., 2020. Results of the first national indoor radon survey performed in Serbia. J. Radiol. Prot., doi:10.1088/1361-6498/ab749e
- EU, 2014. (European Union), Council Directive 2013/59/Euratom of 5 Dec. 2013 (2014) Laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom. L13, vol 57. ISSN 1977-0677. <https://ec.europa.eu/energy/sites/ener/files/documents/CELEX-32013L0059-EN-TXT.pdf>
- Exploranium GR-135, 2004. System Manual. Part 87317-1 Rev.3.4., Mississauga, Ontario.
- Faheem, M. and Matiullah. 2008. Radon exhalation and its dependence on moisture content from samples of soil and building materijals. Radiat. Meas., 43(8), 1458–1462. doi:10.1016/j.radmeas.2008.02.023
- Fathivand, A.A. and Amidi, J., 2009. Natural radioactivity concentration in raw materijals used for manufacturing refractory products, Radioprotection, 44, 265–268. doi: 10.1051/radiopro/20095051

- Forkapić, S., Bikit, K., Arsić, V., Ilić, J., Pantelić, G., Živanović M., 2016. Results of the 2015 national indoor radon intercomparison measurements in Serbia. *NUKLEONIKA* 61(3), 321. doi: 10.1515/nuka-2016-0053
- Forkapić, S., Lakatoš, R., Čeliković, I., Bikit-Schroeder, K., Mrdja, D., Radolić, V., Samardžić, S., 2019. Proposal and optimization of method for direct determination of the thoron progeny concentrations and thoron equilibrium. *Radiat. Phys. Chem.* 159: 57-63. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.02.043>
- Forkapić, S., Lakatoš, R., Hansman, J., Samardžić, S., Bikit-Schroeder, K., Mrdja D., and Nemeš T., 2020. Indoor Radon and Thoron Study and Assessment of Geogenic Radon Potential. Chapter 11 in *Radionuclides Properties, Behavior and Potential Health Effects*, Environmental Science, Engineering and Technology, editors: Todorović, N., and Nikolov, J. Nova Science Publishers, Inc, New York. ISBN 9781536173802
- Forkapic, S., Maletić, D., Vasin, J., Bikit, K., Mrdja, D., Bikit, I., Udovičić, V., Banjanac, R. 2017. Correlation analysis of the natural radionuclides in soil and indoor radon in Vojvodina, Province of Serbia. *J. Environ. Radioact.*, 166, 403–411. doi:10.1016/j.jenvrad.2016.07.026
- Gauglitz, G. and Moore D., 2014. *Handbook of Spectroscopy* (4 vol. set). WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, ISBN : 978-3-527-65472-7
- Geant4 Collaboration, 2015. Geant4 Installation Guide. http://geant4-userdoc.web.cern.ch/geant4-userdoc/UsersGuides/InstallationGuide/Backup_Versions/V10.2/html/index.htm. (accessed 08 January 2020).
- Geology Science, 2020. Granite website. <http://geologyscience.com/rocks/granite/> (accessed 08 January 2020).
- Gezer, F., Turhan, Ş., Uğur, F.A., Gören, E., Kurt, M.Z., Ufuktepe, Y., 2012. Natural radionuclide content of disposed phosphogypsum as TENORM produced from phosphorus fertilizer industry in Turkey. *Ann. Nucl. Energy.*, 50, 33–37. doi:10.1016/j.anucene.2012.07.018
- Giesche, H., 2006. Mercury Porosimetry: A General (Practical) Overview. *Part. Part. Syst. Charact.* 23, 9–19. doi:10.1002/ppsc.200601009
- Gijbels, K., Iacobescu, R.I., Pontikes, Y., Vandevenne, N., Schreurs, S., Schroeyers, W., 2018. Radon immobilization potential of alkali-activated materials containing ground granulated blast furnace slag and phosphogypsum. *Constr. Build. Mater.* 184, 68–75. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.06.162>
- Gijbels, K., Krivenko, P., Kovalchuk O., Pasko A., Schreurs S, Pontikes Y., Schroeyers, W., 2020. The influence of porosity on radon emanation in alkali-activated mortars containing high volume bauxite residue. *Constr. Build. Mater.*, 230, 116982. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.116982>

- Grey, D.J., Windham, S.T., 1987. EERF Standard Operating Procedures for Radon-222 Measurement Using Charcoal Canisters. EPA 520/5-87-005.
- Guinebretière, R., 2007. X-Ray Diffraction by Polycrystalline Materijals, Wiley-ISTE, London, US. ISBN-13: 978-1-905209-21-7
- Gul, R., Ali, S. and Hussain, M., 2014. Estimation of radioactivity level and associated radiological hazards of limestone and gypsum used as raw building materijals in Rawalpindi/Islamabad region of Pakistan. *Radiat. Prot. Dosim.* 158, 340–349. doi:10.1093/rpd/nct232
- Gupta, M., Chauhan R.P., 2011. Estimating radiation dose from building materijals, Iran. *J. Radiat. Res.*, 9, 187-194.
- Gutierrez-Alvarez, I, Martín , J.E., Adame, J.A., Grossi, C., Vargas, A., Bolívar, J.P., 2020. Applicability of the closed-circuit accumulation chamber technique to measure radon surface exhalation rate under laboratory conditions *Radiat. Meas.*, 133, 106284. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2020.106284>
- Hansman, J., 2014. Design and construction of a shield for the 9”×9” NaI(Tl) well-type detector. *Nuclear Technology & Radiation Protection*, 29(2), 165-169. doi: 10.2298/NTRP1402165H
- Hansman, J., Mrdja, D., Slivka, J., Krmar, M., Bikit, I., 2015. Efficiency study of a big volume well type NaI(Tl) detector by point and voluminous sources and Monte-Carlo simulation. *Appl. Radiat. Isot.*, 99, 150–154. doi:10.1016/j.apradiso.2015.03.003
- Haridasan, P. P., Pillai, P. M. B., Tripathi, R. M., Puranik, V.D., 2009. An evaluation of radiation exposures in a tropical phosphogypsum disposal environment. *Radiat. Prot. Dosim.*, 135(3), 211–215. doi:10.1093/rpd/ncp098
- Hassan, N.M., Mansour, N.A., and Fayez-Hassan, M., 2013. Evaluation of radionuclide concentrations and associated radiological hazard indexes in building materijals used in Egypt. *Radiat. Prot. Dosim.* 157, 214-220. doi:10.1093/rpd/nct129
- Hassan, N.M., Tokonami, S., Fukushi, M., 2011. A simple technique for studying the dependence of radon and thoron exhalation rate from building materijals on absolute humidity. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 287(1), 185–191. doi:10.1007/s10967-010-0665-7
- Hilal, M.A., El Afifi, E.M., Nayl, A.A. 2015. Investigation of some factors affecting on release of radon-222 from phosphogypsum waste associated with phosphate ore processing, *J. Environ. Radioact.*, 145, 40-47. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.03.030>
- IAEA 474, 2013. Measurement and Calculation of Radon Releases from NORM Residues Technical Reports Ser. No. 474., Vienna, Austria. https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/trs474_webfile.pdf

- IAEA TRS 295, 1989. International Atomic Energy Agency, Technical Reports Series No. 295, Measurement of Radionuclides in Food and the Environment, Vienna, Austria.
- IAEA, 2003. (International Atomic Energy Agency) Extent of Environmental Contamination by Naturally Occurring Radioactive Materijal (NORM) and Technological Options for Mitigation, Technical Reports Ser. No. 419., Vienna, Austria.
<https://www.iaea.org/publications/6789/extent-of-environmental-contamination-by-naturally-occurring-radioactive-materijal-norm-and-technological-options-for-mitigation>
- IAEA, 2007. (International Atomic Energy Agency) Radiation Protection and NORM Residue Management in the Zircon and Zirconia Industries. Safety Reports Ser. No. 51., Vienna, Austria.
<https://www.iaea.org/publications/7673/radiation-protection-and-norm-residue-management-in-the-zircon-and-zirconia-industries>
- ICRP, 1990. (International Commission on Radiological Protection), Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 60. Ann. ICRP. Pergamon Press.
- ICRP, 1994. (International Commission on Radiological Protection), Protection against Radon-222 at home and at work (ICRP Publication No. 65). Annals of the ICRP 23(2). Pergamon Press, Oxford.
- ICRP, 2006. (International Commission on Radiological Protection), Assessing Dose of the Representative Person for the Purpose of the Radiation Protection of the Public. (ICRP Publication No 101a) Annals of the ICRP 36(3).
- ICRP, 2017. (International Commission on Radiological Protection), Occupational Intakes of Radionuclides: Part 3. ICRP Publication 137, Ann. ICRP 46(3-4).
- Imme, G., Catalano, R., Mangano, G., Morelli, D., 2014. Radon exhalation measurements for environmental and geophysics study. Radiat. Phys. Chem., 95, 349–351. doi:10.1016/j.radphyschem.2013.02.033
- ISO 10545-3, 2018. Ceramic tiles — Part 3: Determination of water absorption, apparent porosity, apparent relative density and bulk density.
- ISO 11665-7, 2012. Measurement of radioactivity in the environment — Air: radon-222 — Part 7: Accumulation method for estimating surface exhalation rate.
- ISO 15901-1, 2005. Pore size distribution and porosity of solid materijals by mercury porosimetry and gas adsorption — Part 1: Mercury porosimetry.
- Iwaoka, K., Hosoda, M., Suwankot N., Omori, Y., Ishikawa, T., Yonehara, H., Tokonami, S., 2015. Natural radioactivity and radon exhalation rates in man-made tiles used as building materijals in Japan. Radiat. Prot. Dosim., 167, 135–138.

- Janik, M., Omori, Y., Yonehara, H., 2015. Influence of humidity on radon and thoron exhalation rates from building materijals, *Appl. Radiat. Isot.* 95, 102-107. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2014.10.007>
- Janković, M., Rajačić, M., Rakić, T., Todorović, D., 2013. Natural radioactivity in imported ceramic tiles used in Serbia. *Process. Appl. Ceram.* 7, 123–127. doi: 10.2298/PAC1303123J
- Joel, E.S., Maxwell, O., Adewoyin, O.O., Ehi-Eromosele, C.O., Embongc, Z., Saeed, M.A., 2018. Assessment of natural radionuclides and its radiological hazards from tiles made in Nigeria. *Radiat. Phys. Chem.* 144, 43–47. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2017.11.003>
- Johari, I., Said, S., Hisham, B., Bakar, A., Ahmad, Z.A., 2010. Effect of the Change of Firing Temperature on Microstructure and Physical Properties of Clay Bricks from Beruas (Malaysia). *Sci. Sinter.*, 42, 245-254. doi: 10.2298/SOS1002245J
- Joshua, E.O., Ademola, J.A., Akpanowo, M.A., Oyebanjo, O.A., Olorode, D.O., 2009. Natural radionuclides and hazards of rock samples collected from Southeastern Nigeria, *Radiat. Meas.*, 44:401–404. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2009.04.002>
- Kardos, R., Sas, Z., Hegedus, M., Shahrokhi, A., Somlai, J., Kovacs., T., 2015. Radionuclide content of NORM by-products originating from the coal-fired power plant in Oroszlany (Hungary). *Radiat. Prot. Dosim.*, 167(1-3), 266-269. doi: 10.1093/rpd/ncv259
- Kayakoku, H., Karatepe, Ş., and Dođru, M., 2016. Measurements of radioactivity and dose assessments in some building materijals in Bitlis, Turkey. *Appl. Radiat. Isot.* 115, 172–179 <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2016.06.020>
- Keller, G., Hoffmann, B., Feigenspan, T., 2001. Radon permeability and radon exhalation of building materijals. *Sci Total Environ.* 14, 272(1-3)85-89.
- Khan, A.R., Rafique, M., Jabbar, A., Rahman, S.U., Shahzad, M.I., Khan, M.E., Yasin M., 2018. Radionuclide concentrations in sand samples from riverbanks of Muzaffarabad, Azad Kashmir. *Nucl. Sci. Tech.* 29, 93. <https://doi.org/10.1007/s41365-018-0442-9>
- Kiš, E., Lomić, G., Marinković-Nedućin, R., Bošković, G., Vulić T. Eksperimentalna kataliza, 2009. Tehnološki fakultet Novi Sad. ISBN 978-86-80995-71-7.
- Kiš, Š., 2001. Tehnologija umetničke keramike. Univerzitet unetnosti, Beograd.
- Kobeissi, M.A., El-Samad, O., Rachidi, I., 2013. Health assessment of natural radioactivity and radon exhalation rate in granites used as building materijals in Lebanon. *Radiat. Prot. Dosim.* 153, 342–351. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncs110>
- Koblinger, L., 1978. Calculation of exposure rates from gamma sources in walls of dwelling rooms. *Health Phys.*, 34, 459–463.

- Krmar, M., 2013. Uvod u nuklearnu fiziku. Prirodno-matematički fakultet, Novi Sad. ISBN 978-86-7031-250-0.
- Krstić, D., Nikezić, D., Stevanović, N., Vučić, D., 2007. Radioactivity of some domestic and imported building materijals from South Eastern Europe. *Radiat. Meas.*, 42, 1731-1736. doi:10.1016/j.radmeas.2007.09.001
- Kumar, A. and Chauhan, R.P., 2014. Active and passive measurements of radon diffusion coefficient from building construction materijals. *Environ. Earth. Sci.*, 72, 251-257. <https://doi.org/10.1007/s12665-013-2951-5>
- Kumar, S., 2002. A perspective study on fly ash–lime–gypsum bricks and hollow blocks for low cost housing development. *Constr. Build. Mater.*, 16(8), 519–525. doi:10.1016/s0950-0618(02)00034-x
- L'Annunziata, M., 2012. Handbook of Radioactivity Analysis, 3rd Edition, Academic Press ISBN: 9780123848741
- Li, Y., Tan, W., Tan, K., Liu, Z., Fang, Q., Lv, J., Duan, X., Liu, Z., Guo, Y., 2018. The effect of laterite density on radon diffusion behavior. *Appl. Radiat. Isot.*, 132, 164–169. doi:10.1016/j.apradiso.2017.12.001
- Liebscher, I. and Willert, F., 1967. Tehnologija keramike. Umetnička akademija u Beogradu.
- Llope, W.J., 2011. Activity concentrations and dose rates from decorative granite countertops. *J. Environ. Radioact.* 102, 620–629. doi:10.1016/j.jenvrad.2011.03.012
- Lopez, F. A., Gázquez, M., Alguacil, F. J., Bolívar, J. P., García-Díaz, I., López-Coto, I., 2011. Microencapsulation of phosphogypsum into a sulfur polymer matrix: Physico-chemical and radiological characterization. *J. Hazard. Mater.*, 192, 234-245. doi:10.1016/j.jhazmat.2011.05.010
- Lopez-Coto, I., Mas, J.L., Bolivar, J.P., Garcia-Tenorio, R., 2009. A short-time method to measure the radon potential of porous materijals. *Appl. Radiat. Isot.*, 67, 133-138. doi:10.1016/j.apradiso.2008.07.015
- Lopez-Coto, I., Mas, J.L., Vargas, A., Bolívar, J.P., 2014. Studying radon exhalation rates variability from phosphogypsum piles in the SW of Spain. *J. Hazard. Mater.*, 280, 464–471. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2014.07.025>
- Lu, X., Chao, S., Yang, F., 2014. Determination of natural radioactivity and associated radiation hazard in building materijals used in Weinan, China. *Radiat. Phys. Chem.* 99, 62–67. <http://dx.doi.org/10.1016/j.radphyschem.2014.02.021>
- Luo, Y., Zheng, S., Ma, S., Liu, C., Wang, X., 2017. Ceramic tiles derived from coal fly ash: Preparation and mechanical characterization. *Ceram. Int.* 43, 11953–11966. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.06.045>

- Ma, B., Lu, W., Su, Y., Li, Y., Gao, C., He, X., 2018. Synthesis of α -hemihydrate gypsum from cleaner phosphogypsum. *J. Clean. Prod.* 195, 396-405. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2018.05.228>
- Madruga, M.J., Miró, C., Reis, M., Silva, L., 2018. Radiation exposure from natural radionuclides in building materijals. *Radiat. Prot. Dosim.*, ncy256, 1 – 9. doi:10.1093/rpd/ncy256
- Maduar, M.F., Campos, M.P., Mazzilli, B.P., Villaverde, F.L., 2011. Assessment of external gamma exposure and radon levels in a dwelling constructed with phosphogypsum plates. *J. Hazard. Mater.* 190, 1063–1067. doi:10.1016/j.jhazmat.2011.03.019
- Manić, V., Manić, G., Nikezić, D., Krstić, D., 2012. Calculation of dose rate conversion factors for ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K in concrete structures of various dimensions, with application to Niš, Serbia. *Radiat Prot Dosim* 152, 361-368. doi:10.1093/rpd/ncs058
- Manić, V.M., Manić, G.J., Nikezić, D.R., Krstić, D.Ž., 2015. The dose from radioactivity of covering construction materijals in Serbia. *Nucl. Technol. Radiat.* 30, 287-293. doi: 10.2298/NTRP1504287M.
- Manual AlphaGuard, 2012. AlphaGuard Portable Radon Monitor, User Manual, Saphymo GmbH, Frankfurt/Main, Germany.
- Manual ARTAX, 2011. ARTAX™ Portable μ -XRF spectrometer, User Manual. Bruker Nano GmbH, Berlin.
- Manual RAD7. 2019. RAD7 Electronic Radon Detector, User Manual. DURRIDGE Company, USA. <https://durrige.com/documentation/RAD7%20Manual.pdf>
- Manual, AlphaE, 2018. AlphaE Hand-Held Device for Radon Concentration & Personal Radon Exposure. User Manual, Saphymo GmbH, Frankfurt am Main, Germany.
- Manual, Sarad, 2019. User Manual RTM1688-2, Version 06/2019, SARAD GmbH, Dresden, Germany. https://www.sarad.de/cms/media/docs/handbuch/man-rtm1688_2-en.pdf and Technical data of RTM 1688-2 https://www.sarad.de/cms/media/docs/datenblatt/Datasheet_RT1688_2_EN_17-12-13.pdf
- Marinkov, L. 2010. Osnovi nuklaerne fizike, Prirodno-matematički fakultet, Novi Sad. ISBN 978-86-7031-191-6
- Markkanen, M., 1995. Radiation dose assessments for materijals with elevated natural radioactivity. Finnish Centre for Radiation and Nuclear Safety STUK-B-STO 32, Helsinki.
- Mashifana, T., Ntuli, F., Okontaa, F., 2019. Leaching kinetics on the removal of phosphorus from waste phosphogypsum by application of shrinking core model. *South African Journal of Chemical Engineering* 27, 1–6. <https://doi.org/10.1016/j.sajce.2018.11.001>

- Medhat, M.E. and Wang, Y., 2014. Estimation of background spectrum in a shielded HPGe detector using Monte Carlo simulations. *Appl. Radiat. Isotopes.*, 84, 13–18. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.10.017>.
- Medhat, M.E., 2009. Assessment of radiation hazards due to natural radioactivity in some building materijals used in Egyptian dwellings, *Radiat. Prot. Dosim.* 133, 177-185. doi:10.1093/rpd/ncp032
- Milošević, M., 1998. Domaće nemetalične mineralne sirovine za primenu u privredi. Institut za tehnologiju nuklearnih i drugih mineralnih sirovina, Beograd.
- Moens, L., Donder, J.D., Xi-lei, L., Corte, F.D., Wispelaere, A.D., Simonits, A., Hoste, J., 1981. Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries. *Nucl. Instr. Methods* 187, 451–472 [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(81\)90374-8](https://doi.org/10.1016/0029-554X(81)90374-8)
- Mokobia, C.E., 2011. Determination of the radiological health indexes of using natural kaolin. *Scientia Afr.* 10(1), 1-20.
- Moro F. and Bohni, H., 2002. Ink-Bottle Effect in Mercury Intrusion Porosimetry of Cement-Based Materijals. *J. Colloid. Interf. Sci.*, 246, 135–149. doi:10.1006/jcis.2001.7962.
- Msila, X., Labuschagne, F., Barnard, W., Billing, D.G., 2015. Radioactive nuclides in phosphogypsum from the lowveld region of South Africa. *S. Afr. J. Sci.*, 112(1/2). doi:10.17159/sajs.2016/20150102
- Mustonen, R., 1984. Methods for evaluation of radiation from building materijals. *Radiat. Prot. Dosim.*, 7(1–4), 235–238. Retrieved from <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.rpd.a082999>.
- Musyarofah Novia, D. L., Rizka, N., Nibras, F. M., Triwikantoro, Suminar, P., 2019. Synthesis of high-purity zircon, zirconia, and silica nanopowders from local zircon sand. *Ceram. Int.* 45, 6639–6647. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.12.152>
- Musyarofah, Novia, D.L., Rizka, N., Nibras, F.M., Triwikantoro, Suminar, P., 2019. Synthesis of high-purity zircon, zirconia, and silica nanopowders from local zircon sand. *Ceram. Int.* 45 6639–6647. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.12.152>
- Naik, N.S., Bahadure, B.M., Jejurkar, C.L., 2014. Strength and durability of fly ash, cement and gypsum bricks. *Int. J. Comput. Eng. Res. (IJCER)* 4(5), 1-4.
- Narloch, D.C., Paschuk, S.A., Correa, J.N., Rocha, Z., Mazer, W., Montenegro Peddis Torres, C., A., Del Claro, F., Denyak, V., Reuters Schelin, H., 2019. Characterization of radionuclides present in portland cement, gypsum and phosphogypsum mortars. *Radiat. Phys. Chem.*, 155, 315-318. <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2018.07.011>
- Narula, A.K., Goyal, S.K., Savita Saini, Chauhan, R.P. Chakarvarti, S. K., 2009. Calculation of radon diffusion coefficient and diffusion length for different building construction materijals. *Indian J. Phys.* 83 (8) 1171-1175. DOI: 10.1007/s12648-009-0097-9

- Narula, K.A., Chauhan R.P, Chakarvarti S.K, 2010. Testing permeability of building materijals for radon diffusion. *Indian. J. Pure. Ap. Phy.*, 48, 505-507.
- NEA-OECD, 1979. Nuclear Energy Agency. Exposure to Radiation from Natural Radioactivity in Building Materijals. Reported by NEA Group of Experts, OECD, Paris.
- Ngachin, M., Garavaglia, M., Giovani, C., Kwato Njock, M.G., Nourreddine, A., 2007. Assessment of natural radioactivity and associated radiation hazards in some Cameroonian building materijals. *Radiat. Meas.*, 42(1), 61–67. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2006.07.007>.
- Nisti, M. B., de Campos, M. P., Mazzilli, B. P., 2014. Natural radionuclides content and radon exhalation rate from Brazilian phosphogypsum piles. *J. Radioanal. Nucl. Ch.*, 299(1), 261–264. doi:10.1007/s10967-013-2752-z
- Nizevičienė, D., Vaičiukynienė, D., Michalik, B., Bonczyk, M., Vaitkevičius, V., Jusas, V., 2018. The treatment of phosphogypsum with zeolite to use it in binding materijal. *Constr. Build. Mater.*, 180, 134–142. doi:10.1016/j.conbuildmat.2018.05.208
- Noverques, A., Verdú, G., Juste, B., Sancho, M., 2019. Experimental Radon Exhalation Measurements: Comparison of different techniques. *Radiat. Phys. Chem.*, 155, 319–<https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2018.08.002>
- Nuccetelli, C., Pontikes, Y., Leonardi, F., Trevisi, R., 2015. New perspectives and issues arising from the introduction of (NORM) residues in building materijals: A critical assessment on the radiological behavior. *Constr. Build. Mater.*, 82, 323–331. <http://dx.doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2015.01.069>
- Olszewski, G., Boryło, A., Skwarzec, B., 2016. The radiological impact of phosphogypsum stockpile in Wislinka (northern Poland) on the Martwa Wisła river water. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 307, 653–660. DOI 10.1007/s10967-015-4191-5.
- Pacheco-Torgal, F., Jalali, S., and Fucic, A., 2012. Toxicity of building materijals 1st edition, Woodhead Publishing Limited, Cambridge. ISBN: 9780857096357
- Pantelić, G., Čeliković, I., Živanović, M., Vukanac, I., Nikolić, J. K., Cinelli, G., Gruber, V. 2019. Qualitative overview of indoor radon surveys in Europe. *J. Environ. Radioactiv.*, 204, 163–174. doi:10.1016/j.jenvrad.2019.04.010
- Pantelić, G., Eremić Savković, M., Živanović, M., Nikolić, J., Rajačić, M., Todorović, D., 2014. Uncertainty evaluation in radon concentration measurement using charcoal canister, *Appl. Radiat. Isot.* 87, 422-455. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.11.012>
- Pantelic, G.K, Todorovic, D.J, Nikolic, J.D., Rajacic, M.M., Jankovic, M.M, Sarap, N.B., 2014a. Measurement of radioactivity in building materijals in Serbia. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 303, 2517–2522. doi: 10.1007/s10967-014-3745-2

- Papastefanou, C., Stoulos, S., Ioannidou, A., Manolopoulou, M., 2006. The application of phosphogypsum in agriculture and the radiological impact. *J. Environ. Radioactiv.*, 89, 188–198. doi:10.1016/j.jenvrad.2006.05.005
- Papastefanou, C., Stoulos, S., Manolopoulou, M., 2005. The radioactivity of building materijals. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 266(3), 367–372. doi:10.1007/s10967-005-0918-z
- Pilakouta, M., Kallithrakas-Kontos, N., Nikolaou, G., 2017. Determining the ^{40}K radioactivity in rocks using x-ray spectrometry. *Eur. J. Phys.*, 38(5). <https://doi.org/10.1088/1361-6404/aa78ba>
- Poncela, L.S.Q., Fernández, P.L., Gómez Arozamena, J., Sainz, C., Fernández, J.A., Mahou, E.S., Matarranz, M., Cascón, M.C., 2004., Natural gamma radiation map (MARNA) and indoor radon levels in Spain. *Enviro. Int.* 29, 1091–1096. doi:10.1016/S0160-4120(03)00102-8
- Porstendörfer, J., 1994. Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. *J. Aerosol Sci.* 25(2), 219-263. [https://doi.org/10.1016/0021-8502\(94\)90077-9](https://doi.org/10.1016/0021-8502(94)90077-9)
- Potiriadis, C., Koukoulidou, V., Seferlis, S., and Kehagia, K., 2011. Assessment of the occupational exposure at a fertiliser industry in the northern part of Greece. *Radiat. Prot. Dosim.* 144, 668–671. doi:10.1093/rpd/ncq309
- Qureshi, A.A., Jadoon, I.A.K., Wajid, A.A., Attique, A., Masood, A., Anees, M., Manzoor, S., Waheed, A., Tubassam, A., 2013. Study of natural radioactivity in mansehra granite, Pakistan: environmental concerns. *Radiat. Prot. Dosim.*, 158, 466–478. <https://doi.org/10.1093/rpd/nct271>
- Rafique, M. and Rathore, M.H., 2013. Determination of radon exhalation from granite, dolerite and marbles decorative stones of the Azad Kashmir area, Pakistan. *Int. J. Environ. Sci. Technol.* 10, 1083–1090. doi:10.1007/s13762-013-0288-y
- Raghu, Y., Ravisankar, R., Chandrasekaran, A., Vijayagopal, P., Venkatraman, B. 2017. Assessment of natural radioactivity and radiological hazards in building materijals used in the Tiruvannamalai District, Tamilnadu, India, using a statistical approach. *J. Taibah Univ. Sci.*, 11(4), 523–533. doi:10.1016/j.jtusci.2015.08.004
- Rahman, S., Matiullah, Mujahid, S.A., Hussain, S., 2008. Assessment of radiological hazards due to the presence of natural radionuclides in samples of building materijals collected from the northwestern areas of Pakistan. *J. Radiol. Prot.* 28(2), 205-12. doi: 10.1088/0952-4746/28/2/004
- Rajamannan, B., Viruthagiri, G. Suresh Jawahar, K., 2013. Natural radionuclides in ceramic building materijals available in cuddalore district, tamil nadu, India. *Radiat. Prot. Dosim.* 156, 531–534.
- Rakić, S., Lazar, D., Cvejić, Ž., Kapor, A., 2013. Osnove rendgenostrukturne analize monokristala i polikristalnih prahova. Prirodno-matematički fakultet, Novi Sad.
- Ranogajec, J., 2005. Metode karakterizacije materijala, Tehnološki fakultet Novi Sad.

- Rashad, A. M., 2017. Phosphogypsum as a construction materijal. *J. Clean. Prod.*, 166, 732–743. doi:10.1016/j.jclepro.2017.08.049
- Ravikumar, P. and Somashekar, R.K., 2013. Estimates of the dose of radon and its progeny inhaled inside buildings, *Eur. J. Environ. Sci.* 3, 88-95. doi: 10.14712/23361964.2015.10
- Renken, K.J., Rosenberg, T., 1995. Laboratory measurement of the transport of radon gas through concrete samples, *Health Phys.* 68(6), 800–808. <https://doi.org/10.1097/00004032-199506000-00006>
- Righi, S., Andretta, M., Bruzzi, L., 2005. Assessment of the radiological impacts of a zircon sand processing plant. *J. Environ. Radioact.* 82, 237-250. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2005.01.010>
- Righi, S. and Bruzzi, L., 2006. Natural radioactivity and radon exhalation in building materijals used in Italian dwellings. *J. Environ. Radioac.* 88,158-170. doi:10.1016/j.jenvrad.2006.01.009
- Risica, S., Bolzan, C., Nuccetelli, C., 2001. Radioactivity in building materijals: room model analysis and experimental methods. *Sci. Total Environ.*, 272(1–3), 119–126. [https://doi.org/10.1016/S0048-9697\(01\)00675-1](https://doi.org/10.1016/S0048-9697(01)00675-1).
- Rogers, V.C. and Nielson, K.K., 1991. Multiphase Radon Generation and Transport in Porous Materijals. *Health Phys.*, 60(6), 807–815. doi:10.1097/00004032-199106000-00006
- Rogers, V.C., Nielson, K.K., 1991a. Correlations for predicting air permeabilities and ^{222}Rn diffusion coefficients of soil, *Health. Phys.* 61(2), 225–230.
- Rogers, V.C., Nielson, K.N., Holt, R.B, Snoddy, R., 1994. Radon diffusion coefficients for residential concretes. *Health Phys.* 67, 261–265. DOI: 10.1097/00004032-199409000-00006
- Rutherford, P.M. Dudas, M.J., Arocena, J.M., 1996. Heterogeneous distribution of radionuclides, barium and strontium in phosphogypsum by-product. *Sci. Total. Environ.* 180, 201-209. doi: 10.1016/0048-9697(95)04939-8
- Saad, A. F., Al-Awami, H. H., Hussein, N. A., 2014. Radon exhalation from building materijals used in Libya. *Radiat. Phys. Chem.*, 101, 15–19. doi:10.1016/j.radphyschem.2014.03.030
- Sahu, S.K., Ajmal, P. Y., Bhangare, R.C., Tiwari, M., Pandit, G.G. 2014. Natural radioactivity assessment of a phosphate fertilizer plant area. *J. Radiat. Res.Appl. Sc.*, 7(1), 123–128. doi:10.1016/j.jrras.2014.01.001
- Samuelsson, C., The Closed-Can Exhalation Metod for Measuring Radon, 1990. *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* 95(2), 167–169.
- Schroeyers, W., 2017. Naturally Occurring Radioactive Materijals in Construction - Integrating Radiation Protection in Reuse (COST Action Tu1301 NORM4BUILDING), Woodhead Publishing. <https://doi.org/10.1016/C2016-0-00665-4>

- Seo, J., Nirwono, M. M., Park, S.J., Lee, S. H., 2018. Standard Measurement Procedure for Soil Radon Exhalation Rate and Its Uncertainty. *J. Radiat. Prot. Res.*, 43(1), 29-38 <https://doi.org/10.14407/jrpr.2018.43.1.29>
- Sharaf J.M. and Hamideen M.S., 2013. Measurement of natural radioactivity in Jordanian building materijals and their contribution to the public indoor gamma dose rate. *Appl. Radiat. Isot.* 80, 61–66 <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.06.016>
- Shoeib, M.Y. and Thabayneh, K.M., 2014. Assessment of natural radiation exposure and radon exhalation rate in various samples of Egyptian building materijals. *J. Radiat. Res. Appl. Sc.*, 7(2), 174–181. doi:10.1016/j.jrras.2014.01.004
- Silva, A.C., Carolina, S.D., Sousa, D.N., Silva, E.M.S., 2019. Feldspar production from dimension stone tailings for application in the ceramic industry. *J. Mater. Res. Technol.*, 8, 1–7. <https://doi.org/10.1016/j.jmrt.2018.02.011>
- Sl. Glasnik RS 86/2011 i 50/2018, 2018. Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima. http://www.srbatom.gov.rs/srbatom/wp-content/uploads/2019/11/Pravilnik-o-granicama-izlaganja_50_2018.pdf
- Sl. Glasnik RS 36/18, 2018. Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet. <http://www.srbatom.gov.rs/srbatom/wp-content/uploads/2019/11/Pravilnik-o-granicama-sadrzaja-r.pdf>
- Sl. Glasnik RS 86/19, 2019. Pravilniku o kontroli radioaktivnosti robe prilikom uvoza, izvoza i tranzita. <http://www.srbatom.gov.rs/srbatom/wp-content/uploads/2019/12/Pravilnik-o-kontroli-radioaktivnosti-robe-pri-uvozu-izvozu-i-tranzitu.pdf>
- Sl. Glasnik RS 97/11, 2011. Pravilnik o monitoringu radioaktivnosti. <http://www.srbatom.gov.rs/srbatom/wp-content/uploads/2019/11/PRAVILNIK-O-MONITORINGU-RADIOAKTIVNOSTI-Sl.-glasnik-RS-br.-97-2011-LAT.pdf>
- Slivka J., Bikit., I., Vesković, M., Čonkić, Lj., 2000. Gama spektrometrija-specijalne metode i primene. Univerzitet u Novom Sadu. ISBN 86-499-0074-7
- Smetsers, R.C.G. M., Tomas, J. M., 2019. A practical approach to limit the radiation dose from building materijals applied in dwellings, in compliance with the Euratom Basic Safety Standards. *J. Environ. Radioactiv.* 196 40–49. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.10.007>.
- Sola, P., Srinuttrakul, W., Laoharojanaphand, S., Suwankot, N., 2014. Estimation of indoor radon and the annual effective dose from building materijals by ionization chamber measurement. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 302, 1531–1535. doi: 10.1007/s10967-014-3716-7

- Soniya, S.R., Abraham, S., Khandaker, M.U., Jojo, P.J., 2020. Investigation of diffusive transport of radon through bricks, *Radiat. Phys. Chem.*, 108955, <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2020.108955>.
- SRPS EN 771-1, 2016. Specifikacija elemenata za zidanje — Deo 1: Elementi za zidanje od gline.
- Stabin, M.G., 2007. *Radiation Protection and Dosimetry An Introduction to Health Physics*. Springer-Verlag New York. e-ISBN 978-0-387-49983-3
- Stoulos, S., Mamolopoulou, M., Papastefanou, C., 2003. Assessment of natural radiation exposure and radon exhalation from building materials in Greece. *J. Environ. Radioact.* 69, 225-240. doi:10.1016/S0265-931X(03)00081-X
- Szajerski, P., Celinska, J., Bem, H., Gasiorowski, A., Anyszka, R., Dziugan, P., 2019. Radium content and radon exhalation rate from sulfur polymer composites (SPC) based on mineral fillers. *Constr. Build. Mater.*, 198, 390–398. doi:10.1016/j.conbuildmat.2018.11.262
- Tan, Y. and Xiao, D., 2013. Measurement of the radon exhalation rate from the medium surface by tracing the radon concentration *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295(3), 2295–2299. doi:10.1007/s10967-012-2294-9
- Tchorz-Trzeciakiewicz, D.E., Solecki, A.T., 2018. Variations of radon concentration in the atmosphere. *Gamma dose rate. Atmos, Environ.*, 174, 54–65. doi:10.1016/j.atmosenv.2017.11.033
- Tecilazić Stenanović, M., 1973. *Osnovi tehnologije keramike*. Tehnoološko-metalurški fakultet, Beograd.
- Telesca, A., Marroccoli, M., Calabrese, D., Valenti, G. L., Montagnaro, F., 2013. Flue gas desulfurization gypsum and coal fly ash as basic components of prefabricated building materials. *Waste Manage.*, 33(3), 628-633. <http://dx.doi.org/10.1016/j.wasman.2012.10.022>
- Terzić, A., Izvonar, D. B., Pavlović, Lj., 2007. Ispitivanje nemetalnih mineralnih komponenti za primenu u konstrukcionim materijalima. Institut za tehnologiju nuklearnih i drugih mineralnih sirovina, Beograd.
- Thabayneh, K.M, 2013. Measurement of natural radioactivity and radon exhalation rate in granite samples used in Palestinian buildings. *Arab. J. Sci. Eng.* 38, 201–207. <https://doi.org/10.1007/s13369-012-0391-2>
- Todorovic N., Mrdja D., Hansman J., Todorovic S., Nikolov J., Krmar, M., 2017. Radiological impacts assessment for workers in ceramic industry in Serbia. *Radiat. Prot. Dosim.* 176, 411–417. doi:10.1093/rpd/ncx025.
- Todorović, N., Bikit, I., Krmar, M., Mrđa, D., Hansman, J., Nikolov, J., Todorović, S., Forkapić, S., Jovančević, N., Bikit, K., Janković Mandić, L., 2016. Assessment of Radiological Significance of Building Materials and Residues. *Rom. J. Phys.* 62 (9-10), 817.

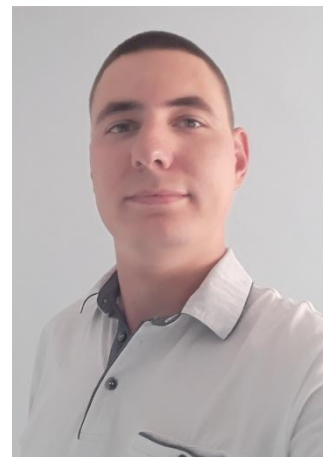
- Todorović, N., Bikit, I., Krmar, M., Mrdja, D., Hansman, J., Nikolov, J., Forkapić, S., Vesković, M., Bikit, K., Jakonić, I., 2014. Natural radioactivity in raw materijals used in building industry in Serbia. *Int. J. Environ. Sci. Technol.* 12, 705-716. doi:10.1007/s13762-013-0470-2
- Todorović, N., Bikit, I., Vesković, M., Krmar, M., Mrđa, D., Forkapić, S., Hansman, J., Nikolov, J., Bikit, K., 2014a. Radioactivity in the indoor building environment in Serbia. *Radiat. Prot. Dosim.* 158, 208 – 215. doi:10.1093/rpd/nct210
- Todorovic, N., Forkapic, S, Bikit, I, Mrdja, D., Veskovic, M., and Todorovic, S., 2011. Monitoring for exposures to TENORM sources in Vojvodina region. *Radiat. Prot. Dosim.* 144, 655–658. doi:10.1093/rpd/ncq414
- Todorovic, N., Hansman, J., Mrđa., D, Nikolov, J, and Krmar, M., 2017a. Concentrations of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in industrial kaolinized granite. *J. Environ. Radioact.* 168, 10-14 <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2016.07.032>
- Trindade, M., Dias, M., Coroado, J., Rocha, F., 2009. Mineralogical transformations of calcareous rich clays with firing: A comparative study between calcite and dolomite rich clays from Algarve, Portugal. *Applied Clay Science*, 42(3-4), 345–355. doi:10.1016/j.clay.2008.02.008
- Tsapalov, A. and Kovler, K., 2016. Revisiting the concept for evaluation of radon protective properties of building insulation materijals. *Build. Environ.*, 95, 182–188. doi:10.1016/j.buildenv.2015.09.020
- Tuccimei, P., Moroni, M., Norcia, D., 2006. Simultaneous determination of ^{222}Rn and ^{220}Rn exhalation rates from building materijals used in Central Italy with accumulation chambers and a continuous solid state alpha detector: Influence of particle size, humidity and precursors concentration. *Appl. Radiat. Isot.*, 64(2), 254–263. doi:10.1016/j.apradiso.2005.07.016
- Tufail, M., Ahmad, N., Mirza, S., Mirza, N., Khan, H., 1992. Natural radioactivity from the building materijals used in Islamabad and Rawalpindi, Pakistan. *Sci. Total. Environ.*, 121, 283–291. doi:10.1016/0048-9697(92)90321-i
- Turhan, S, 2009. Radiological impacts of the usability of clay and kaolin as raw materijal in manufacturing of structural building materijals in Turkey. *J. Radiol. Prot.* 29, 75–83. doi:10.1088/0952-4746/29/1/005
- Turhan, S. and Varinlioglu, A., 2012. Radioactivity measurement of primordial radionuclides in and dose evaluation from marble and glazed tiles used as covering building materijals in Turkey. *Radiat. Prot. Dosim.* 151, 546–555.
- Turhan, S., 2010. Radioactivity levels of limestone and gypsum used as building raw materijals in turkey and estimation of exposure doses. *Radiat. Prot. Dosim.* 140, 402–407. doi:10.1093/rpd/ncq132

- Turhan, S., Arıkan, I.H., Demirel, H., Gungor, N., 2011. Radiometric analysis of raw materijals and end products in the Turkish ceramics industry. *Radiat. Phys. Chem.*, 80, 620–625. doi:10.1016/j.radphyschem.2011.01.007
- Turhan, S., Baykan, U.N., Sen, K., 2008. Measurement of the natural radioactivity in building materijals used in Ankara and assessment of external doses. *J. Radiol. Prot.* 28(1), 83-91. doi: 10.1088/0952-4746/28/1/005
- Turhan, S., Demir, K., Karataslı, M., 2018. Radiological evaluation of the use of clay brick and pumice brick as a structural building materijal. *Appl. Radiat. Isot.* 141, 95-100. DOI: 10.1016/j.apradiso.2018.08.022
- Turkel, S. and Aksin, E., 2012. A comparative study on the use of fly ash and phosphogypsum in the brick production. *Sadhana, Indian Academy of Sciences*, 37(5), 595–607.
- Tykva, R., and Dieter B., 2004. *Man-Made and Natural Radioactivity in Environmental Pollution and Radiochronology*. Springer-Science+Business Media, B.V.
- Ujić, P., Čeliković, I., Kandić, A., Žunić, Z. 2008. Standardization and difficulties of the thoron exhalation rate measurements using an accumulation chamber. *Radiat. Meas.*, 43(8), 1396–1401. doi:10.1016/j.radmeas.2008.03.003
- UNSCEAR, 1993. *Sources, Effects and risks of ionizing radiation (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations New York.*
- UNSCEAR, 2000. *Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation. Exposures from Natural Radiation Sources, Annex B. United Nations Publication, New York, USA.*
- UNSCEAR, 2006. *Effects of Ionizing Radiation. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, Volume I. United Nations Publication, New York, USA 2008* https://www.unscear.org/docs/publications/2006/UNSCEAR_2006_Report_Vol.I.pdf
- UNSCEAR, 2008. *Sources and effects of ionizing radiation, Report to the General Assembly with Scientific Annexes, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Annex A and B, United Nations, New York, USA.*
- Uosif, M.A., 2013. Quantitative measurement of natural radioactivity in some roofing tile materijals used in upper Egypt. *Radiat. Prot. Dosim.* 156, 231–238.
- USEPA, 1990. *United States Environmental Protection Agency (U.S. EPA), Report to Congress on Special Wastes from Mineral Processing: Summary and Findings, Washington,* <https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-05/documents/10001aze.pdf>
- USEPA, 2002. *United States Environmental Protection Agency (U.S. EPA), National emission standards for hazardous air pollutants subpart R.*

- USEPA, 2016. US Environmental Protection Agency – A citizen's guide to radon, The Guide to Protecting Yourself and Your Family from Radon, EPA402/K-12/002, USA https://www.epa.gov/sites/production/files/2016-12/documents/2016_a_citizens_guide_to_radon.pdf
- Verità, S., Righi, S., Guerra, R., Jeyapandian, M., 2009. Radon exhalation rates from zircon sands and ceramic tiles in Italy. *Radioprotection*, 44(5), 445–451. doi:10.1051/radiopro/20095083
- Viruthagiri, G., Rajamannan, B., Suresh Jawahar, K., 2013. Radioactivity and associated radiation hazards in ceramic raw materijals and end products. *Radiat. Prot. Dosim.*, 157, 383–391. doi:10.1093/rpd/nct149
- Walley El-Dine, N., El-Shershaby, A., Afifi, S., Sroor, A., Samir, E., 2011. Natural radioactivity and Rare Earth elements in feldspar samples, Central Eastern desert, Egypt. *Appl. Radiat. Isot.*, 69:803–807. doi:10.1016/j.apradiso.2011.01.023
- Walley El-Dine, N., Sroor, A., El-Shershaby, A., El-Bahi, S.M., Ahmed, F., 2004. Radioactivity in local and imported kaolin types used in Egypt, *Appl Radiat Isot.* 60:105–109. doi:10.1016/j.apradiso.2003.09.006
- Waseda, Y., Matsubara, E., Shinoda, K., 2011. X-Ray Diffraction Crystallography Introduction, Examples and Solved Problems. Springer Heidelberg Dordrecht London New York. e-ISBN 978-3-642-16635-8. DOI 10.1007/978-3-642-16635-8.
- WHO, 2009. Zeeb, H., and Shannoun, F., Handbook on Indoor Radon: A Public Health Perspective. World Health Organization, Eds. WHO Library Cataloguing-in-Publication Data.
- Yacine, A., Ratiba, M.K., Abderrahmane, G., 2016. Ceramic waste influence on dune sand mortar performance. *Constr. Build. Mater.*, 125, 703–713. <http://dx.doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2016.08.083>
- Yan, Z., Wang, Z., Liu, H., Tu, Y., Yang, W., Zeng, H., Qiu, J., 2015. Decomposition and solid reactions of calcium sulfate doped with SiO₂, Fe₂O₃ and Al₂O₃. *J. Anal. Appl. Pyrol.*, 113, 491–498. doi:10.1016/j.jaap.2015.03.019
- Yanchao, S., Junlin, W., Bing, S., Hongxing, C., Yunyun W., 2020. Study on a new charcoal closed chamber method for measuring radon exhalation rate of building materijals. *Radiat. Meas.*, 106308. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2020.106308>
- Ye, Y., Wu, W., Feng S., Huang, C., Li, S., 2018. Simultaneous determination of the radon diffusion coefficient and the free radon production rate from compact porous emanation media. *Build. Environ.*, 144, 66–71. <https://doi.org/10.1016/j.buildenv.2018.08.015>

16 Biografija autora

Rođen je 30.07.1993. godine u Šapcu (Republika Srbija). Završio je osnovnu školu u Šapcu 2008. godine kao odličan učenik. Po završetku osnovne škole upisuje *Šabačku gimnaziju*, prirodno-matematički smer koji završava 2012. godine. Iste godine upisuje osnovne studije na *Prirodno-matematičkom fakultetu Univerziteta u Novom Sadu na Departmanu za fiziku*, smer Diplomirani profesor fizike. Novembra meseca 2014. godine postaje član Srpskog privrednog društva Fondacije „Privrednik“ - *stipendista, pitomac dvadeset prve generacije (2014/15.)*. Dobitnik je stipendije Ministarstva prosvete Republike Srbije četiri godine zaredom. Marta 2015. dobija i stipendiju za nadarene studente, koje se odriče u korist prethodne dve. Februara 2016. biva nagrađen godišnjom stipendijom za najbolje studente Grada Šapca, na šta je naročito ponosan. Istu nagradu dobija i u 2017. godini. Avgusta 2016. završava osnovne studije, mesec dana pre zvaničnog roka kao treći po redu u generaciji, sa ostvarenih 270 ESPB od planiranih 240 ESPB. Položio je 7 dodatnih predmeta i time stekao 30 ESPB više. Po završenim osnovnim upisuje master studije Nuklearne fizike (školske 2016/2017.) koje završava juna 2017. kao prvi u generaciji odbranivši master tezu pod naslovom „*Poređenje metoda za ispitivanje ²²⁶Ra u vodi*“ pod mentorstvom prof. dr Nataše Todorović. Oktobra 2017. upisuje doktorske akademske studije Nuklearne fizike na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu kao student čije se školovanje finansira iz budžeta Republike Srbije.



Učesnik je naučno-stručnih konferencija i seminara. Učesnik je 13. međunarodnog programa „*Masterclasses - Hands on Particle Physics*“ održanog u Novom Sadu marta 2017, zatim međunarodnog skupa Connect 2017 (*Connecting scientists in the western Balkans region Symposium „Science and Society*“) održanog u Neumu – Bosna i Hercegovina avgusta 2017. pod pokroviteljstvom DAAD fondacije iz Frankfurta (Nemačka).

Zaposlen je u izbornom zvanju asistenta na *Akademiji strukovnih studija u Šapcu* od oktobra 2017. Angažovan je na realizaciji računskih i eksperimentalnih vežbi iz sledećih predmeta: Fizika, Elektrotehnika, Osnovi biofizike i radiologije, Fizičke štetnosti i Osnovi inženjerstva, na studijskim programima, Informacione tehnologije, Zaštita životne sredine, Zdravstvena nega i Inženjerski menadžment.

Juna 2018. izabran je u zvanje **istraživača pripravnika** na užu naučnu oblast *Nuklearna fizika*, a januara 2020. u zvanje **istraživač saradnik** za užu naučnu oblast *Fizika visokih energija* na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta u Novom Sadu. Autor i koautor je 8 naučno-stručnih radova u međunarodnim časopisima kategorizacije M21 i M22 kao i preko 15 radova u zbornicima sa domaćih i međunarodnih skupova, kategorizacije M33, M34 i M63. Autor je jednog poglavlja u monografiji kategorizacije M14, sa samocitatima.

Novi Sad, 4.6. 2020.

MSc Predrag Kuzmanović, dipl. prof.

**UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET****KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA***Redni broj:***RBR***Identifikacioni broj:***IBR***Tip dokumentacije:***TD**

Monografska dokumentacija

*Tip zapisa:***TZ**

Tekstualni štampani materijal

*Vrsta rada:***VR**

Doktorsta disertacija

*Autor:***AU**

Predrag Kuzmanović

*Mentor:***MN**

prof. dr Nataša Todorović/dr Bojan Miljević

*Naslov rada:***NR**

Korelacija radioloških i strukturnih karakteristika građevinskih materijala

*Jezik publikacije:***JP**

Srpski (latinica)

*Jezik izvoda:***JI**

Srpski/Engleski

*Zemlja publikovanja:***ZP**

Republika Srbija

*Uže geografsko područje:***UGP**

AP Vojvodina

*Godina:***GO**

2020.

*Izdavač:***IZ**

Autorski reprint

*Mesto i adresa:***MA**

Prirodno-matematički fakultet, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

Fizički opis rada:

16 poglavlja/271 strana/128 slika, grafikona/94 tabele/ 271 referenca

FO

Naučna oblast: Fizika

NO

Naučna disciplina:

ND Nuklearna fizika, eksperimentalna fizika kondenzovane materije.

Predmetna odrednica/ ključne reči: Građevinski materijali, NORM, fosfogips, opeka, radijacioni rizik, godišnja efektivna doza, radon, gamma spektrometrija, RAD7, RTM 1688-2, AlphaGuard, AlphaE, XRD, XRF, poroznost, korelacije.

UDK

Čuva se:

Biblioteka Departmana za fiziku, PMF-a u Novom Sadu.

ČU

Važna napomena:

Nema

VN

Izvod:

IZ

U ovoj doktorskoj disertaciji predstavljena je radiološka i strukturna karakterizacija građevinskih materijala koji se mogu naći u upotrebi u Srbiji. Izvršena je radiološka karakterizacija ukupno 348 uzoraka: granita, fosfogipsa, sirovina u keramičkoj industriji, keramičkih pločica, betona, opeke, maltera, siporeksa, crepa i drugih građevinskih materijala opšte upotrebe. Radiološka karakterizacija je sprovedena merenjem koncentracija aktivnosti ^{226}Ra , ^{232}Th i ^{40}K metodom gama spektrometrije, kao i ekshalacije radona iz selektovanih građevinskih materijala korišćenjem aktivnih uređaja RAD7, RTM 1688-2, AlphaGUard i AlphaE. Korišćenjem Monte Karlo simulacija izvršena je procena jačina apsorbovanih doza gama zračenja, uočena su odstupanja od teorijski procenjenih vrednosti i dati predlozi za korekciju. Izvršena je procena radijacionog rizika od korišćenja analiziranih građevinskih materijala u enterijeru, kao i za profesionalna lica pri radu sa sirovinskim materijalima. Ispitivane su mogućnosti upotrebe fosfogipsa kao NORM materijala u proizvodnji gips-karton ploča i opeke uz procenu radijacionog rizika od upotrebe. Napravljeno je 8 uzoraka opeke sa različitim udelog fosfogipsa i izvršena je radiološka i strukturna karakterizacija dobijenih materijala. Ispitivane su varijacije koeficijenata emanacije radona iz građevinskih materijala tokom vremena, kao i uticaj efekata curenja i povratne difuzije koji dovode do tih varijacija. Ispitivan je takođe i uticaj strukture materijala u smislu mineraloškog i hemijskog sastava i poroznosti na vrednosti koeficijenta emanacije radona. Mineraloška karakterizacija uzoraka izvršena je metodom rendgenske strukturne analize (XRD), a hemijska metodom rendgenske fluorescentne analize (XRF). Merenje ukupne efektivne poroznosti izvršeno je metodom absorpcije vode i metodom živine porozimetrije. Na osnovu dobijenih rezultata uspostavljene su značajne korelacije između pojedinih radioloških i strukturnih parametara za analizirane uzorke građevinskih materijala.

Datum prihvatanja teme od NN 26.9.2019.

veća:

DP

Datum odbrane:

DO

Članovi komisije:

KO

Predsednik:

dr Sofija Forkapić, naučni saradnik na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu.

Član/mentor:

dr Nataša Todorović, redovni profesor na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu.

Član/mentor:

dr Bojan Miljević, naučni saradnik na Departmanu za inženjerstvo materijala Tehnološkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu.

Član:

dr Igor Čeliković, naučni saradnik u Institutu za nuklearne nauke "Vinča".

Član:

dr Jovana Nikolov, vanredni profesor na Departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu.

Član:

dr Vanja Radolić, vanredni profesor na Odjelu za fiziku Sveučilišta Josipa Jurja Strossmayera u Osijeku, Hrvatska.

**UNIVERSITY OF NOVI SAD
FACULTY OF SCIENCE AND MATHEMATICS****KEY WORDS DOCUMENTATION***Accession number:***ANO***Identification number:***INO***Document type:***DT**

Monograph publication

*Type of record:***TR**

Textual printed materijal

*Content code:***CC**

PhD dissertation

*Author:***AU**

Predrag Kuzmanović

*Mentor/comentor:***MN**

Nataša Todorović, PhD/Bojan Miljević, PhD

*Title:***TI**

Correlation of radiological and structural characteristics of building materijals

*Language of text:***LT**

Serbian (Latin)

*Language of abstract:***LA**

Serbian/English

*Country of publication:***CP**

Serbia

*Locality of publication:***LP**

Vojvodina

*Publication year:***PY**

2020.

*Publisher:***PU**

Author's reprint

*Publication place:***PP**

Faculty of Science, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

Physical description:

16 shapters/271 pages/128 figures, graphs/94 tables/271 references

PD

Scientific field:
SF Physics

Scientific discipline:
SD Nuclear physics, Experimental Condensed Matter Physics

Subject/ Key words:
SKW Building materijals, NORM, phosphogypsum, brick, radiation risk, annual effective dose, radon, gamma spectrometry, RAD7, RTM 1688-2, AlphaGuard, AlphaE, XRD, XRF, porosity, correlations.

UDC

Holding data:
HD Library of Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

Note:
N None

Abstract:
AB *In this doctoral dissertation, the results of the radiological and structural characterization of building materials used in Serbia were presented. Radiological characterization of a total of 348 samples was performed, including granite, phosphogypsum, raw materials in the ceramic industry, ceramic tiles, concrete, brick, mortar, siporex, tiles, and other materials frequently used as building materials. Radiological characterization was performed by measuring activity concentrations of ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K by gamma spectrometry method, as well as radon exhalation from selected building materials using active devices RAD7, RTM 1688-2, AlphaGuard and AlphaE. Using Monte Carlo simulations, the absorbed gamma dose rates were estimated. Furthermore, the deviations from the theoretically estimated absorbed dose rates were observed, and suggestions for correction were given. An assessment of the radiation risk from the use of analyzed building materials in the interior, as well as for occupational workers working with raw materials was conducted. The possibilities of using phosphogypsum as a NORM material in the production of gypsum plasterboard and bricks were investigated, with an assessment of the radiation risk due to use of phosphogypsum as a component in the building materials. 8 samples of bricks with different proportions of phosphogypsum were made and radiological and structural characterization of the obtained materials was performed. Variations of radon emanation coefficients from building materials over time, as well as the influence of leakage and back diffusion effects leading to these variations, were investigated. The influence of the structure of the material in terms of mineral and chemical composition and porosity on the values of the radon emanation coefficient was also investigated. The mineralogical characterization of the samples was performed by the method of X-ray structural analysis (XRD), and the chemical characterization by the method of X-ray fluorescence analysis (XRF). The measurement of total effective porosity was performed by water absorption methods and mercury porosimetry method. Based on the obtained results, significant correlations were established*

between individual radiological and structural parameters for the analyzed samples of construction materials.

Accepted by the Scientific Board: September 26, 2019
ASB

Defended on:
DE

Thesis defend board:
DB

President: PhD Sofija Forkapić, Research Associate at the Department of Physics, Faculty of Science, University of Novi Sad.

Member/menthor: PhD Nataša Todorović, full professor at the Department of Physics, Faculty of Science, University of Novi Sad, Serbia.

Member/menthor: PhD Bojan Miljević, Research Associate at the Department of Materijals Engineering, Faculty of Technology, University of Novi Sad, Serbia.

Member: PhD Igor Čeliković, Research Associate, Vinča Institute of Nuclear Sciences.

Member: PhD Jovana Nikolov, Associate Professor at the Department of Physics, Faculty of Science, University of Novi Sad, Serbia.

Member: PhD Vanja Radolić, Associate Professor at the Department of Physics, University of Osijek, Croatia.