



УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ  
ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ  
ДЕПАРТМАН ЗА ФИЗИКУ



**Андреј Враничар**

**РАЗВОЈ И УНАПРЕЂЕЊЕ НЕДЕСТРУКТИВНИХ  
МЕТОДА ЗА АНАЛИЗУ РАДИОАКТИВНОГ И  
НУКЛЕАРНОГ МАТЕРИЈАЛА**

**-ДОКТОРСКА ДИСЕРТАЦИЈА-**

Нови Сад, 2023. година



УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ  
ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ  
ДЕПАРТМАН ЗА ФИЗИКУ



**РАЗВОЈ И УНАПРЕЂЕЊЕ НЕДЕСТРУКТИВНИХ  
МЕТОДА ЗА АНАЛИЗУ РАДИОАКТИВНОГ И  
НУКЛЕАРНОГ МАТЕРИЈАЛА**

-ДОКТОРСКА ДИСЕРТАЦИЈА-

Ментор:  
Проф. др Јована Николов

Кандидат:  
Андреј Враничар

Нови Сад, 2023. година

НАВЕСТИ НАЗИВ ФАКУЛТЕТА ИЛИ ЦЕНТРА

КЉУЧНА ДОКУМЕНТАЦИЈСКА ИНФОРМАЦИЈА<sup>1</sup>

Врста рада:	Докторска дисертација
Име и презиме аутора:	Андреј Враничар
Ментор (титула, име, презиме, звање, институција)	др Јована Николов, ванредни професор, Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет, Департман за физику
Наслов рада:	Развој и унапређење неструктивних метода за анализу радиоактивног и нуклеарног материјала
Језик публикације (писмо):	Српски (ћирилица)
Физички опис рада:	Унети број: Страница: 163 Поглавља : 6 Референци :103 Табела : 35 Слика : 106 Графикона : / Прилога : 1
Научна област:	Физика

<sup>1</sup> Аутор докторске дисертације потписао је и приложио следеће Обрасце:

5б – Изјава о ауторству;

5в – Изјава о истовестности штампане и електронске верзије и о личним подацима;

5г – Изјава о коришћењу.

Ове Изјаве се чувају на факултету у штампаном и електронском облику и не кориче се са тезом.

Ужа научна област (научна дисциплина):	Нуклеарна физика
Кључне речи / предметна одредница:	Нуклеарна форензика, гама спектрометрија, HPGe детектор, функција ефикасности детекције, EFFTRAN, Angle, PC FRAM, нуклеарни и други радиоактивни материјал
Резиме на језику рада:	<p>У овој докторској дисертацији обрађена је проблематика везана за анализу радиоактивног и нуклеарног материјала употребом гама спектрометрије као аналитичке технике а такође и технике којом би се потенцијално могли превазићи практични проблеми мерења и анализе поменутих материјала. Теоријски део дисертације обухвата прво друго и треће поглавље. У оквиру првог поглавља дате су основне дефиниције нуклеарне форензике као научно-истраживачке дисциплине и појмова уско везаних за исту. У другом поглављу се дефинише место нуклеарне форензике на међународном нивоу у оквиру међународних регулатива и организација. У трећем поглављу дат је преглед основних карактеристика нуклеарних и других радиоактивних материјала који се могу наћи ван регулаторне контроле. Експериментални део докторске дисертације започиње четвртим поглављем које се бави коришћеним експерименталним техникама и методама мерења и анализе нуклеарних и других радиоактивних материјала. У оквиру овог поглавља дат је приказ гама спектрометрије као методе нуклеарне форензике као и софтверских пакета који су коришћени као математички алат за унапређење и развој недеструктивне методе анализе нуклеарних и других радиоактивних материјала. Специфичности узорака који се могу наћи на терену у погледу геометрије, састава и густине део су петог поглавља заједно са резултатима анализе. Добијени резултати указују да су и Angle и EFFTRAN софтвер за трансфер ефикасности са адекватном дефиницијом узорка било у погледу геометрије или састава и матрице дали задовољавајуће резултате који су у складу са резултатима који се добијају употребом GEANT4 софтверског пакета. Такође је установљено да уколико су у датој инстанци (криминалној истрази) потребни резултати у кратком временском интервалу, EFFTRAN софтвер представља добар алат за 'screening' методу, која даје брзе резултате концентрације активности са задовољавајућим нивоом поверења. Анализе спектра стандардних референтних нуклеарних материјала коришћењем софтверског пакета PC FRAM дате су у шестом поглављу, где су прокоментарисана основна запажања везана за специфичности анализе оваквог материјала. У закључку су прокоментарисане предности и мане употребе различитих математичких калкулација као помоћног алата у анализи спектра нецилиндричних узорака радиоактивних материјала и специфичности анализе нуклеарних материјала. Кроз целокупну докторску дисертацију дат је преглед нуклеарне форензике као научне дисциплине, као и њеног места у оквиру националне и међународне нуклеарне безбедности. Поред тога показано је на који начин се рутинска гама спектрометријска мерења могу искористити за мерење специфичних</p>

	материјала за потребе нуклеарне форензике уз очување састава и облика самог узорка који се мери.
Датум прихватања теме од стране надлежног већа:	26.09.2019.
Датум одбране: (Попуњава одговарајућа служба)	
Чланови комисије: (титула, име, презиме, звање, институција)	Председник: др Миодраг Крмар, редовни професор, Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет, Департман за физику Члан: др Мирослав Весковић, редовни професор, Природно-математички факултет, Департман за физику Члан: др Никола Јованчевић, ванредни професор, Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет, Департман за физику Члан: др Дејан Јоковић, виши научни сарадник, Универзитет у Београду, Институт за физику Члан: др Јована Николов, ванредни професор, Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет, Департман за физику (ментор)
Напомена:	/

**UNIVERSITY OF NOVI SAD**

**FACULTY OR CENTER**

**KEY WORD DOCUMENTATION<sup>2</sup>**

Document type:	Doctoral dissertation
Author:	Andrej Vraničar
Supervisor (title, first name, last name, position, institution)	Ph.D. Jovana Nikolov, associate professor, University of Novi Sad , Faculty of Sciences, Department of Physics
Thesis title:	Development and improvement of non-destructive methods for the analysis of radioactive and nuclear material
Language of text (script):	Serbian language (cyrillic script)
Physical description:	Number of: Pages: 163 Chapters: 6 References: 103 Tables: 35 Illustrations: 106 Graphs: / Appendices: 1
Scientific field:	Physics
Scientific subfield (scientific discipline):	Nuclear physics

---

<sup>2</sup> The author of doctoral dissertation has signed the following Statements:

5a – Statement on the authority,

5b – Statement that the printed and e-version of doctoral dissertation are identical and about personal data,

5r – Statement on copyright licenses.

The paper and e-versions of Statements are held at the faculty and are not included into the printed thesis.

Subject, Key words:	Nuclear forensics, gamma spectrometry, HPGe detector, detection efficiency function, EFFTRAN, Angle, PC FRAM, nuclear and other radioactive material
Abstract in English language:	<p>In this doctoral dissertation, the issues related to the analysis of radioactive and nuclear material using gamma spectrometry as an analytical technique and also a technique that could potentially overcome the practical problems of measuring and analyzing the mentioned materials are discussed. The theoretical part of the dissertation includes the first, second and third chapters. In the first chapter, the basic definitions of nuclear forensics as a scientific-research discipline and concepts related to it are presented. The second chapter defines the place of nuclear forensics at the international level within international regulations and organizations. The third chapter provides an overview of the basic characteristics of nuclear and other radioactive materials that can be found outside of regulatory control. The experimental part of the doctoral dissertation begins with the fourth chapter, which deals with the used experimental techniques and methods of measurement and analysis of radioactive and nuclear material. This chapter presents gamma spectrometry as a method of nuclear forensics, as well as software packages that were used as a mathematical tool for the improvement and development of a non-destructive method of analyzing nuclear and other radioactive materials. The specifics of the samples that can be found in the field in terms of geometry, shape and density are part of the fifth chapter together with the results of the analysis. The obtained results indicate that both Angle and EFFTRAN software for efficiency transfer with adequate sample definition either in terms of geometry or composition and matrix gave satisfactory results which are consistent with the results obtained using the GEANT4 software package. It was also established that if in a given instance (criminal investigation) results are needed in a short time interval, the EFFTRAN software is a good tool for the 'screening' method, which gives quick results of activity concentration with a satisfactory level of confidence. Analyzes of the spectra of standard reference nuclear materials using the PC FRAM software package are given in the sixth chapter, where the basic observations related to the specifics of the analysis of this material are commented. In the conclusion, the advantages and disadvantages of the use of various mathematical calculations as an auxiliary tool in the analysis of the spectra of non-cylindrical samples of radioactive materials and the specifics of the analysis of nuclear materials are commented. Throughout the doctoral dissertation, an overview of nuclear forensics as a scientific discipline, as well as its place within national and international nuclear security, was given. In addition, it was shown how routine gamma spectrometric measurements can be used to measure specific materials for the needs of nuclear forensics while preserving the composition and shape of the sample being measured.</p>
Accepted on Scientific Board on:	26.09.2019.
Defended:	

(Filled by the faculty service)	
<p>Thesis Defend Board: (title, first name, last name, position, institution)</p>	<p>President: Ph.D. Miodrag Krmar, full professor, University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics</p> <p>Member: Ph.D. Miroslav Vesković, full professor, University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics</p> <p>Member: Ph.D. Nikola Jovančević, associate professor, University of Novi Sad, Faculty of Sciences, Department of Physics</p> <p>Member: Ph.D. Dejan Jokovic, senior research associate, University of Belgrade, Institute of Physics</p> <p>Member: Ph.D. Jovana Nikolov, associate professor, Faculty of Sciences, University of Novi Sad (mentor)</p>
Note:	/



---

*Time is an equal opportunity employer. Each human being has exactly the same number of hours and minutes every day. Rich people can't buy more hours. Scientists can't invent new minutes. And you can't save time to spend it on another day. Even so, time is amazingly fair and forgiving. No matter how much time you've wasted in the past, you still have an entire tomorrow.*

*Denis Waitley*

---

---

## ПРЕДГОВОР

---

*У наредних пар редова желео бих да изразим своју захвалност људима који су одиграли значајну улогу у мом професионалном и личном развоју.*

*Желим да се захвалим својој породици на свесрдној подршци коју имам од њих и без које данас не бих био ту где јесам. Своју дисертацију посвећујем вама.*

*Огромну захвалност дугујем свом ментору, проф. др Јовани Николов, која ме је својим ентузијазмом и посвећеношћу увела у свет нуклеарне форензике и омогућила ми да кроз састанке, семинаре и практичне тренинге упознам све чари које ова дисциплина са собом носи. Наравно ту су и бројни сати разговора, анализа, смеха, конструктивних критика па скоро и суза који су били неопходни како би ова дисертација (коначно) била написана. Желим да се захвалим и проф. др Наташи Тодоровић која ми је отворила врата рада на факултету и на подршци током израде и писања дисертације. Захвалност дугујем пријатељу и колеги Милошу Травару на подршци и заједничкој борби кроз процес који се зове израда и писање докторске тезе.*

*Члановима комисије, проф. др Миодрагу Крмару, проф. др Мирославу Весковићу, проф. др Николи Јованчевићу и др Дејану Јоковићу захваљујем се на времену које су посветили овој дисертацији. Поред тога, моја захвалност као колегама иде и свим члановима Катедре за нуклеарну физику.*

*Велику захвалност дугујем Joint Research Centre Karlsruhe за уступљене спектре узорака стандардних референтних нуклеарних материјала као и за донацију PC FRAM софтвера. Захваљујем се Нуклеарним објектима Србије на уступљеним узорцима који су мерени у оквиру заједничког истраживања а резултати делимично искоришћени у овој тези. Поред поменутих, желим да се захвалим и проф. др Слободану Јовановићу и мр Александру Длабачу на уступању Angle 4 софтвера на коришћење и сарадњи у оквиру тестирања beta верзије Angle 5 софтвера .*

*Такође, желим да се захвалим драгим пријатељима и свима који се у овим редовима препознају а који су били уз мене макар на делу пута овог академског усавршавања.*

У Новом Саду, мај 2023.

---

Андреј Враничар

---

## САДРЖАЈ

---

Увод .....	1
<b>1. Нуклеарна форензика као научно-истраживачка дисциплина .....</b>	<b>3</b>
1.1 Настанак нуклеарне форензике .....	3
1.2 Основни појмови и дефиниције .....	3
1.3 Методе нуклеарне форензике .....	4
1.4 Прикупљање доказа са радиолошког места злочина .....	5
1.5 Категоризација и карактеризација узорка .....	6
1.5.1 Категоризација узорка .....	6
1.5.2 Карактеризација узорка .....	8
<b>2. Нуклеарна форензика у међународним оквирима .....</b>	<b>13</b>
2.1 Међународна радна група за нуклеарну форензику ITWG .....	13
2.2 Глобална иницијатива за борбу против нуклеарног тероризма (GICNT) .....	16
2.3 Безбедносне иницијативе за спречавање пролиферације (PSI) .....	19
2.4 Међународни правни оквири за регулацију нуклеарне безбедности .....	21
2.4.1 Национална регулатива .....	23
2.5 Ризици по нуклеарну безбедност .....	24
2.6 IAEA База података о инцидентима и недозвољеном транспорту (ITDB) .....	27
2.7 Библиотека нуклеарне форензике .....	28
2.8 Модел акционог плана .....	29
<b>3. Нуклеарни и други радиоактивни материјали у нуклеарној форензици .....</b>	<b>32</b>
3.1 Форензички отисци .....	32
3.2 Плутонијум .....	34
3.3 Уранијум .....	38
3.4 Радиоактивни извори .....	41
<b>4. Експерименталне методе и технике .....</b>	<b>43</b>
4.1 Полупроводнички детектори .....	43
4.1.1 Производања HPGe детектора .....	45
4.1.2 Планарни тип детектора .....	46
4.1.3 Коаксијални тип детектора .....	49
4.2 Гама спектрометрија као неструктивна метода нуклеарне форензике .....	51
4.2.1 Енергије од интереса при анализи нуклеарног материјала .....	51
4.2.2 Фонско зрачење .....	52
4.2.3 Гама спектрометрија као алат нуклеарне форензике .....	53
4.2.4 Узорци-карактеристике и ограничења .....	59
4.3 Софтверски пакети за анализу .....	61
4.3.1 Genie™ 2000 Basic Spectroscopy Software .....	62
4.3.2 EFFTRAN софтвер .....	63
4.3.3 ANGLE софтвер .....	66
4.3.4 FRAM софтвер .....	70
<b>5. Резултати истраживања – анализа радиоактивних материјала .....</b>	<b>72</b>
5.1 Тестирање могућности Angle и EFFTRAN софтвера у поређењу са GEANT4 симулацијама у гама спектрометрији цилиндричних и нецилиндричних геометрија узорака .....	74

5.2	Утицај матрице узорка на моделовање функције ефикасности у гамаспектрометријском одређивању изотопа уранијума .....	97
<b>6.</b>	<b>Резултати истраживања – анализа нуклеарних материјала .....</b>	<b>118</b>
	<b>Закључак .....</b>	<b>129</b>
	<b>Прилог - Интересантне примене нуклеарнофорензичких закључивања .....</b>	<b>131</b>
	<b>Литература .....</b>	<b>157</b>
	<b>Биографија .....</b>	<b>164</b>

---

## СПИСАК СЛИКА

---

Слика 1.1. След анализа које се спроводе по пријему узорка .....	5
Слика 2.1. Заплене специјалних нуклеарних материјала који се могу употребити за конструкцију оружја [Moody et al.,2015]. .....	26
Слика 2.2. Укупан број пријављених потврђених инцидената у периоду 1993-2021 [ITDB,2021].	27
Слика 2.3. Повезаност и улоге различитих актера у процесу функционисања NNFL [NNFL,2018]. .....	29
Слика 2.4. Приказ Модела акционог плана [IAEA No. 2-G,2015]. .....	30
Слика 3.1. Питања на која се анализа мора одговорити. ....	32
Слика 3.2. Изотопски односи различитих изотопа плутонијума као функција удела $^{239}\text{Pu}$ [AAAS,2007]. .....	36
Слика 3.3. Изотопски односи одређених плутонијумских састава [AAAS,2007; Mayer et al.,2005].	37
Слика 4.1. Равни кристалне решетке германијума приказане помоћу Miller-ових индекса и површински центрирана кубна кристална решетка [Dobson,2005]. .....	44
Слика 4.2. Промена електричне проводљивости у германијуму као функција резидуалне концентрације допаната. Идеално интринсични материјал налази се на нултој тачки на апсциси [Knoll,2010]. .....	46
Слика 4.3. Шематски приказ планарног HPGe детектора. Ако се ради о $\pi$ -типу детектора, $p^+$ контакт је ректифирајући, док је у случају $\nu$ -типа то $p^+$ контакт [Knoll,2010]. .....	47
Слика 4.4. Типови конфигурација планарних детектора. Електроде су приказане са пренаглашеним пуним црним линијама. [Knoll,2010]. .....	48
Слика 4.5. Три различита типа коаксијалне конфигурације (горе) и попречни пресеци кристала $n$ - и $p$ -типа кристала са одговарајућим конфигурацијама електрода [Knoll, 2010]. .....	50
Слика 4.6. Гама спектар уранијума номиналног обогаћења 4.42% $^{235}\text{U}$ [ITWG_GsOv,2016]. .....	55
Слика 4.7. Гама спектар плутонијума номиналног обогаћења 84% $^{239}\text{Pu}$ [ITWG_GsOv,2016]. .....	55
Слика 4.8. Шематски приказ компоненти детекторског система [ITWG_GsOv,2016]. .....	56
Слика 4.9. Спектар LEU који је снимљен Na(Tl)I детектором ниске резолуције (приказан црвеном линијом) и HPGe детектором високе резолуције (црна линија) [ITWG_GsLa,2016]. .....	57
Слика 4.10. Корисничко окружење унутар софтвера <i>Genie<sup>TM</sup> 2000 Basic Spectroscopy Software</i> [Genie,2016; Genie OM,2006]. .....	62
Слика 4.11. Корисничко окружење унутар EFFTRAN софтвера. ....	64
Слика 4.12. Корисничко окружење унутар EFFTRAN софтвера. ....	65
Слика 4.13. Приказ параметризоване произвољне геометрије извор-детектор [Angle 4,2016]. .....	67
Слика 4.14. Шематски приказ поставке извор-детектор ( $r_0 < R_0$ ) [Angle 4,2016]. .....	68
Слика 4.15. Шематски приказ поставке извор-детектор ( $r_0 > R_0$ ) [Angle 4,2016]. .....	69
Слика 4.16. Корисничко окружење Angle 4 софтвера [Angle 4,2016]. .....	69
Слика 4.17. Кориснички интерфејс PC FRAM софтвера. ....	71
Слика 5.1. HPGe коаксијални детектор произвођача CANBERRA и серијске ознаке GX10021. ....	77
Слика 5.2. Дефинисање матрице узорка 1A у EFFTRAN софтверу. ....	78
Слика 5.3. Узорак 1A – пелет $\text{UO}_2$ (лево) и симулирана поставка мерења у оквиру GEANT4 пакета (десно). .....	78
Слика 5.4. Дефинисање матрице узорка 2A у EFFTRAN софтверу. ....	79

<b>Слика 5.5.</b> Симулирана поставка мерења за узорак 2А у геометрији хоризонталног виала у оквиру GEANT4 пакета. ....	80
<b>Слика 5.6.</b> Симулирана поставка мерења за узорак 2А у стандардној цилиндричној геометрији у оквиру GEANT4 пакета. ....	80
<b>Слика 5.7.</b> Дефинисање матрице узорка 3А у EFFTRAN софтверу. ....	81
<b>Слика 5.8.</b> Узорак 3А – гвоздена плочица (лево) и симулирана поставка мерења у оквиру GEANT4 пакета (десно). ....	81
<b>Слика 5.9.</b> Референтна крива ефикасности за детектор CANBERRA GX20021. ....	83
<b>Слика 5.10.</b> Експерименталне и симулиране (са одговарајућим подешавањима карактеристика детектора) криве ефикасности за сертификовани референтни материјал CBSS-2. ....	85
<b>Слика 5.11.</b> Концентрације активности за узорак 1А на 63.3 keV добијене помоћу различитих метода. ....	89
<b>Слика 5.12.</b> Концентрације активности за узорак 2А на 63.3 keV добијене помоћу различитих метода, у геометрији хоризонталног виала. ....	90
<b>Слика 5.13.</b> Концентрације активности за узорак 2А на 63.3 keV добијене помоћу различитих метода, у цилиндричној геометрији. ....	90
<b>Слика 5.14.</b> Концентрације активности за узорак 3А на 238.6 keV добијене помоћу различитих метода. ....	91
<b>Слика 5.15.</b> Концентрације активности за узорак 3А на 338.3 keV добијене помоћу различитих метода. ....	91
<b>Слика 5.16.</b> Тотална концентрација активности $^{238}\text{U}$ за узорак 1А. ....	93
<b>Слика 5.17.</b> Тотална концентрација активности $^{238}\text{U}$ за узорак 2А у геометрији хоризонталног виала. ....	94
<b>Слика 5.18.</b> Тотална концентрација активности $^{238}\text{U}$ за узорак 2А у цилиндричној геометрији. ....	94
<b>Слика 5.19.</b> Поређење резултата EFFTRAN, Angle и GEANT4 ефикасности и експерименталних резултата добијених за референтни материјал узорак 2А у цилиндричној геометрији. ....	95
<b>Слика 5.20.</b> Карактеристике GMX-20190 детектора од стране произвођача (лево) и шематски приказ истог (десно). ....	98
<b>Слика 5.21.</b> HPGe коаксијални детектор произвођача ORTEC и серијске ознаке GMX-20190. ....	99
<b>Слика 5.22.</b> Узорак 1Б (десно) и узорак 2Б (лево) у њиховим контејнерима. ....	100
<b>Слика 5.23.</b> Узорак подељен у 6 зона, какав је и коришћен у прорачуну. ....	101
<b>Слика 5.24.</b> Референтна крива ефикасности за детектор ORTEC GMX-20190. ....	103
<b>Слика 5.25.</b> Експерименталне и симулиране криве ефикасности добијене помоћи стандардног референтног материјала CBSS 2. ....	111
<b>Слика 5.26.</b> Утицај различитих масених удела уранијума у матрици узорка на функцију ефикасности детекције. ....	112
<b>Слика 5.27.</b> Концентрације активности $^{235}\text{U}$ и $^{238}\text{U}$ за узорак 1Б добијене итеративном и полуемпиријском методом. ....	115
<b>Слика 5.28.</b> Концентрације активности $^{235}\text{U}$ и $^{238}\text{U}$ за узорак 2Б добијене итеративном и полуемпиријском методом. ....	116
<b>Слика 6.1.</b> Шематски приказ изгледа стандардних референтних CBNM материјала плутонијума [TechRep_Pu,2015]. ....	119

<b>Слика 6.2.</b> Шематски приказ изгледа стандардних референтних <i>CBNM</i> материјала уранијума. Висина пуњења односно дебљина материјала извора је 20.8 mm са све узорке сем <i>CBNM</i> 446 за који је висина пуњења 15.8 mm [ <i>TechRep_U,2015</i> ].	120
<b>Слика 6.3.</b> Масени удели $^{239}\text{Pu}$ у материјалу <i>CBNM</i> Pu61 за различите комбинације паравана/атенуатора	121
<b>Слика 6.4.</b> Масени удели $^{239}\text{Pu}$ у материјалу <i>CBNM</i> Pu70 за различите комбинације паравана/атенуатора	121
<b>Слика 6.5.</b> Масени удели $^{239}\text{Pu}$ у материјалу <i>CBNM</i> Pu84 за различите комбинације паравана/атенуатора	122
<b>Слика 6.6.</b> Масени удели $^{239}\text{Pu}$ у материјалу <i>CBNM</i> Pu93 за различите комбинације паравана/атенуатора	122
<b>Слика 6.7.</b> Масени удели $^{235}\text{U}$ у материјалу <i>CBNM</i> 031 за различите дебљине Fe атенуатора, сниманом на фиксној удаљености од 5 cm од детектора	123
<b>Слика 6.8.</b> Масени удели $^{235}\text{U}$ у материјалу <i>CBNM</i> 071 за различите дебљине Fe атенуатора, сниманом на фиксној удаљености од 5 cm од детектора	124
<b>Слика 6.9.</b> Масени удели $^{235}\text{U}$ у материјалу <i>CBNM</i> 194 за различите дебљине Fe атенуатора, сниманом на фиксној удаљености од 5 cm од детектора	124
<b>Слика 6.10.</b> Масени удели $^{235}\text{U}$ у материјалу <i>CBNM</i> 295 за различите дебљине Fe атенуатора, сниманом на фиксној удаљености од 5 cm од детектора	125
<b>Слика 6.11.</b> Масени удели $^{235}\text{U}$ у материјалу <i>CBNM</i> 446 за различите дебљине Fe атенуатора, сниманом на фиксној удаљености од 5 cm од детектора	125
<b>Слика 6.12.</b> Масени удели $^{235}\text{U}$ у материјалу <i>CBNM</i> 031 сниманом на различитим удаљеностима од детектора у одсуству атенуатора	126
<b>Слика 6.13.</b> Масени удели $^{235}\text{U}$ у материјалу <i>CBNM</i> 071 сниманом на различитим удаљеностима од детектора у одсуству атенуатора	126
<b>Слика 6.14.</b> Масени удели $^{235}\text{U}$ у материјалу <i>CBNM</i> 194 сниманом на различитим удаљеностима од детектора у одсуству атенуатора	127
<b>Слика 6.15.</b> Масени удели $^{235}\text{U}$ у материјалу <i>CBNM</i> 295 сниманом на различитим удаљеностима од детектора у одсуству атенуатора	127
<b>Слика 6.16.</b> Масени удели $^{235}\text{U}$ у материјалу <i>CBNM</i> 446 сниманом на различитим удаљеностима од детектора у одсуству атенуатора	128
<b>Слика П.1.</b> Шематски приказ тока једне вежбе.	131
<b>Слика П.2.</b> Фонски спектар за <i>први случај</i> .	132
<b>Слика П.3.</b> Спектар $^{60}\text{Co}$ за додатну проверу калибрације.	133
<b>Слика П.4.</b> Спектар за анализу, од непознатог пацијента.	133
<b>Слика П.5.</b> Поређење <i>in vivo</i> спектра (непознатог) и спектра снимљеног у лабораторијским условима.	134
<b>Слика П.6.</b> Спектар $^{60}\text{Co}$ са обележеним каскадно сумираним фотопиком.	135
<b>Слика П.7.</b> Спектар $^{60}\text{Co}$ са обележеним комбинованим <i>backscatter</i> фотопиком.	135
<b>Слика П.8.</b> Непознати спектар пошиљки са ознаком " $^{99\text{m}}\text{Tc}$ генератори".	136
<b>Слика П.9.</b> Фонски спектар за <i>други случај</i> .	136
<b>Слика П.10.</b> Шематски приказ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ генератора.	137
<b>Слика П.11.</b> Непознати спектар пацијента после дијагностичке процедуре $^{201}\text{Tl}$ (црна боја) и лабораторијски спектар $^{201}\text{Tl}$ (плава боја).	138

Слика П.12. Непознати спектар пакета са ознаком $^{201}\text{Tl}$ ".....	139
Слика П.13. Референтни спектар $^{131}\text{I}$ .....	139
Слика П.14. Непознати спектар (црна боја) и лабораторијски $^{131}\text{I}$ спектар (плава боја). .....	140
Слика П.15. Поставка мерења уранијумских материјала. ....	141
Слика П.16. Фонски спектар коришћен у анализи сва четири уранијумска материјала. ....	141
Слика П.17. Спектар уранијумског узорка А.....	142
Слика П.18. Спектар уранијумског узорка В.....	143
Слика П.19. Спектар уранијумског узорка С.....	143
Слика П.20. Спектар уранијумског узорка Д.....	144
Слика П.21. Процентуални масени удео $^{234}\text{U}$ у функцији масеног удела $^{235}\text{U}$ у узорцима А, В, С и Д. .....	145
Слика П.22. Спектар уранијумског узорка окруженог оловном заштитом дебљине 4 mm. ....	146
Слика П.23. HPGe спектар материјала који садржи плутонијум. ....	147
Слика П.24. HPGe спектар плутонијумског материјала са обележеним гама линијама.....	147
Слика П.25. Шематски приказ ланца $^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ . ....	148
Слика П.26. $^{152}\text{Eu}$ калибрациони спектар за узорак <i>Case A</i> . ....	150
Слика П.27. $^{152}\text{Eu}$ калибрациони спектар за узорак <i>Case B</i> . ....	150
Слика П.28. Фонски спектар за узорак <i>Case A</i> . ....	151
Слика П.29. Фонски спектар за узорак <i>Case B</i> . ....	151
Слика П.30. Фонски спектар за узорак <i>Case C</i> . ....	152
Слика П.31. Фонски спектар за узорак <i>Case D</i> . ....	152
Слика П.32. Спектар за узорак <i>Case A</i> . ....	153
Слика П.33. Спектар за узорак <i>Case B</i> . ....	153
Слика П.34. Спектар за узорак <i>Case C</i> . ....	154
Слика П.35. Спектар за узорак <i>Case D</i> . ....	154
Слика П.36. Изгледи дела спектра плутонијумских материјала са различитим уделом $^{240}\text{Pu}$ . ....	155
Слика П.37. Идентификовани спектри узорака <i>Case A</i> , <i>Case B</i> , <i>Case C</i> , и <i>Case D</i> . ....	156



---

## СПИСАК ТАБЕЛА

---

Табела 1.1. Категоризација нуклеарног материјала [IAEA No.2,2006].....	7
Табела 1.2. Категоризација другог (не-нуклеарног) радиоактивног материјала [IAEA No.2,2006]....	7
Табела 1.3. Групе карактеристика нуклеарних материјала подложних мерењима [Fedchenko,2015]. .....	8
Табела 1.4. Специфичне категорије карактеристика материјала и одговарајуће мерне технике [Fedchenko,2015]. ....	11
Табела 1.5. Мерне технике коришћене у различитим фазама процеса карактеризације материјала у нуклеарној форензици [Fedchenko,2015]. ....	12
Табела 2.1. Састанци Међународне радне групе за нуклеарну форензику (ITWG) [Garrett et al.,2014].....	14
Табела 2.2. Листа земаља чланице Глобалне иницијативе за борбу против нуклеарног тероризма [GICNT,2018]. ....	18
Табела 2.3. Листа земаља чланице (PSI) [PSI,2022].....	20
Табела 2.4. Предложена секвенца лабораторијских анализа и метода [IAEA No.2,2006]. ....	31
Табела 3.1. Карактеристике које су релевантне за детекцију плутонијума [AAAS,2007].....	33
Табела 3.2. Релевантни уранијумски отисци [AAAS,2007]. ....	34
Табела 3.3. Подела плутонијума [Carson et al.,2009; US DOE,1997]. ....	35
Табела 3.4. Изабрани типови реактора за производњу плутонијума [AAAS,2007]. ....	35
Табела 3.5. Атомски удели уранијума из производног реактора на циљаном степену изгарања[AAAS,2007]. ....	39
Табела 3.6 – Атомски удели "weapons-grade" уранијума добијеног од природног и репроцесуираног уранијума [AAAS,2007]. ....	40
Табела 4.1. Физичка својства германијума [NSM,2001]. ....	44
Табела 4.2. Гамаспектрометријски параметри релевантни за нуклеарну форензику [ITWG_GsOv,2016]. ....	59
Табела 5.1. Концентрације активности са узорак 1 добијене полуемпиријским и симулационом методом . ....	86
Табела 5.2. Концентрације активности са узорак 2 у геометрији хоризонталног вијала, добијене полуемпиријским и симулационом методом . ....	87
Табела 5.3. Концентрације активности са узорак 2 у цилиндричној геометрији, добијене полуемпиријским и симулационом методом . ....	88
Табела 5.4. Концентрације активности са узорак 3, добијене полуемпиријским и симулационом методом.....	88
Табела 5.5. Тотална концентрација активности $^{238}\text{U}$ за узорак 1.....	92
Табела 5.6. Тотална концентрација активности $^{238}\text{U}$ за узорак 2, геометрија хоризонталног вијала. .....	92
Табела 5.7. Тотална концентрација активности $^{238}\text{U}$ за узорак 2, цилиндрична геометрија.....	93
Табела 5.8. Концентрација активности узорка 1, у првој итерацији. ....	106
Табела 5.9. Концентрација активности узорка 1, у другој итерацији. ....	107
Табела 5.10. Концентрација активности узорка 2, у првој итерацији. ....	109
Табела 5.11. Концентрација активности узорка 2, у другој итерацији. ....	110

<b>Табела 5.12</b> - Концентрације активности $^{235}\text{U}$ и $^{238}\text{U}$ за узорак 1 ( $0.81 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) у првој апроксимацији .....	112
<b>Табела 5.13.</b> Концентрације активности $^{235}\text{U}$ и $^{238}\text{U}$ за узорак 2 ( $2.25 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) у првој апроксимацији. ....	113
<b>Табела 5.14.</b> Концентрације активности $^{235}\text{U}$ и $^{238}\text{U}$ за узорак 1 ( $0.81 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) у другој апроксимацији. ....	114
<b>Табела 5.15.</b> Концентрације активности $^{235}\text{U}$ и $^{238}\text{U}$ за узорак 2 ( $2.25 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) у другој апроксимацији. ....	115
<b>Табела 6.1.</b> Изотопски састав стандардних референтних <i>CBNM</i> материјала плутонијума датих са мерном несигурношћу од $2\sigma$ на дан 20.06.1986. [ <i>TechRep_Pu,2015</i> ].....	119
<b>Табела 6.2.</b> Изотопски састав стандардних референтних <i>CBNM</i> материјала уранијума датих са мерном несигурношћу од $2\sigma$ [ <i>TechRep_U,2015</i> ]. ....	120
<b>Табела II.1.</b> Енергије карактеристичних X-зрака Cd, Sn и Pb. ....	149

---

## УВОД

---

Мирнодопска употреба нуклеарне енергије, науке и технологије доприноси очувању здравља, безбедности употребе хране и подржава економски развој сваке земље. Регулисање сигурне и безбедне примене ових технологија изузетно је значајно за сваку земљу света. Бројне институције на националном и међународном нивоу баве се изградњом поверења у мирнодопску употребу нуклеарних технологија као и заштитом животне средине од неповољних ефеката јонизујућег зрачења. Епидемиолошке студије су показале колико јонизујуће зрачење може бити штетно за живе организме али у исто време развој технологије нам је показао да је управо контролисана употреба јонизујућег зрачења револуционарна у очувању здравља. Применом ALARA<sup>3</sup> принципа осигуравамо и правилну имплементацију мера нуклеарне сигурности и безбедности како у нуклеарним тако и у нуклеарним земљама.

Нуклеарна сигурност и нуклеарна безбедност изузетно су значајан параметар државне архитектуре у погледу очувања интегритета исте. Нуклеарна сигурност се дефинише као *"постизање одговарајућих услова рада, спречавање или ублажавање последица акцидента, што резултира заштитом радника, јавности и животне средине од непотребних опасности од зрачења"*. Нуклеарна безбедност је дефинисана као *"превенција и детекција као и адекватна и правремена реакција на, крађу, саботажу, неовлашћени приступ, илегални трансфер или друге злонамерне радње које укључују нуклеарне и/или друге радиоактивне материјале као и нуклеарне објекте"*.

Нуклеарна форензика, као део нуклеарне безбедности, по дефиницији Међународне агенције за атомску енергију представља *"испитивање нуклеарног или другог радиоактивног материјала, или доказа који су контаминирани радионуклидима, у контексту правног поступка који се налази под окриљем међународног или националног права а који се односи на угрожавање нуклеарне безбедности"*.

- **Нуклеарни материјал** - садржи уранијум и/или плутонијум, користи се за сврхе производње енергије, истражвачке сврхе или производњу нуклеарног наоружања или других експлозивних уређаја.
- **Радиоактивни материјал** – било који материјал који је дефинисан у оквиру закона или од стране регулаторног тела једне државе да подлеже редовној контроли услед своје радиоактивности, а налази примену у индустрији, медицини или производњи радиолошког дисперзивног или експозиционог уређаја.

Сваки нуклеарни материјал је уједно и радиоактивни материјал, али сви радиоактивни материјали нису нужно нуклеарни. Ова дистинкција се прави услед чињенице да се нуклеарни и радиоактивни материјал третирају потпуно другачије са погледа нуклеарне безбедности.

Гама спектрометрија као недеструктивна метода нуклеарне форензике корисна је због чињенице да представља одличан алат у случајевима када је потребно очувати заплењени материјал у изворном стању. Као таква, она служи за карактеризацију нуклеарног и другог радиоактивног материјала са

---

<sup>3</sup> ALARA – As Low As Reasonably Achievable (што је могуће мање излагање)

циљем одређивања елементарног састава и/или категоризације изотопског састава узорка. Поред поменуте сврхе, гама спектрометрија може да послужи и за решавање мало захтевнијих задатака, као што су питање репроцесуирања нуклеарног материјала (поновна употреба истрошеног нуклеарног горива) као и његова старост, што углавном може указати и на његово порекло.

Циљ експерименталног истраживања ове докторске дисертације је да се прикажу могућности примене гама спектрометрије за анализу нуклеарног и другог радиоактивног материјала са свим предностима и недостацима, као и потенцијалне технике превазилажења практичних проблема мерења и анализе података. У теоријском делу, у првом поглављу, приказане су основне дефиниције нуклеарне форензике као научне дисциплине. Друго поглавље описује њено место у међународним организацијама и регулативама. Треће поглавље приказује основне карактеристике нуклеарних и других радиоактивних материјала који се могу наћи изван регулаторне контроле. Експериментални део докторске дисертације почиње четвртим поглављем које се бави коришћеним експерименталним техникама и методама мерења и анализе нуклеарних и других радиоактивних материјала. У оквиру овог поглавља дат је приказ гама спектрометрије као методе нуклеарне форензике као и софтверских пакета који су коришћени као математички алат за унапређење и развој недеструктивне методе анализе нуклеарних и других радиоактивних материјала. Специфичности узорака који се могу наћи на терену у погледу геометрије, састава и густине део су петог поглавља заједно са резултатима анализе. Анализе спектра стандардних референтних нуклеарних материјала коришћењем софтверског пакета PC FRAM дате су у шестом поглављу. У закључку су прокоментарисане предности и мане употребе различитих математичких калкулација као помоћног алата у анализи спектра нецилиндричних узорака радиоактивних материјала и специфичности анализе нуклеарних материјала.

Неке интересантне анализе спектра, снимљених различитим мерним инструментима, медицинских радиозотопа као и материјала који садрже уранијум или плутонијум (нуклеарних материјала) приказане су као илустрација у прилогу.

Обзиром да гама спектрометрија спада у елементарне алате за нуклеарно-форензичка испитивања, а која је кључна за спровођење истраге материјала нађеног ван регулаторне контроле, битно је да се методе анализе прилагоде постојећим капацитетима гамаспектрометријских лабораторија. Та прилагођавања укључују све специфичности анализе узорака који су део криминалне истраге и као такви морају остати неоштећени (у изворном стању), уз посебну пажњу посвећену очувању било којих потенцијално релевантних доказа значајних за традиционалну форензику.

---

# 1. НУКЛЕАРНА ФОРЕНЗИКА КАО НАУЧНО-ИСТРАЖИВАЧКА ДИСЦИПЛИНА

---

## 1.1 Настанак нуклеарне форензике

---

Бројне примене нуклеарне енергије довеле су до повећања количине опасних и радиоактивних материјала, нуклеарних инсталација, нуклеарне опреме као и броја земаља које их поседују. Током Хладног рата, Сједињене Америчке Државе заједно са Совјетским Савезом под својим окриљем имали су огроман арсенал нуклеарног наоружања. Упоредо са распадом Совјетског Савеза који се догодио 1991. године, рађа се и појам "нуклеарног кријумчарења" (*nuclear smuggling*), будући да је велики број установа које поседују нуклеарни и/или радиоактивни материјал затворен или уништен. Раније су многе истраживачке институције као и фабрике нуклеарног материјала имале веома лоше дефинисане заштитне мере како би спечиле крађу [Moody et al.,2015]. Услед тога, ризик недозвољеног поседовања и илегалног употребљавања нуклеарних материјала и радиоактивних извора за криминалне или терористичке акте се повећао. Ово је као последицу дало и прве случајеве заплене нуклеарног материјала који су се догодили у Италији и Швајцарској 1991. године. У годинама које следе, ови случајеви су се појавили и у Немачкој, Мађарској, Чешкој и осталим земљама централне Европе [Mayer et al.,2007]. Будући да су ово били догађаји од међународног и националног значаја, представници држава су као један од примарних циљева поставиле одређивање састава, намене и могуће руте нелегалне трговине заплених нуклеарних материјала. У циљу предупредивања новонастале ситуације јавила се и потреба за стварањем аналитичког апарата који би могао дати одговоре на дата питања. Тако је настала нова научна дисциплина – **нуклеарна форензика**. Као таква, нуклеарна форензика представља начин употребе знања и вештина из домена нуклеарне физике/радиоаналитичке хемије и њихову примену у виду помоћи истражним органима у криминалистичким истрагама. Као што је то случај и код традиционалне форензике, нуклеарна форензика се користи чињеницом да одређени мерљиви параметри у узорку представљају карактеристику датог материјала [Mayer et al.,2007]. Битан фактор који утиче на коначан исход анализе је управо одабир одговарајућих параметара, будући да на основу тога можемо добити исправне информације о врсти нуклеарног/радиоактивног материјала, његовој употреби и могућем пореклу.

## 1.2 Основни појмови и дефиниције

---

У периоду 2006-2015. године Међународна агенција за атомску енергију (*International Atomic Energy Agency* - ИАЕА) је дефинисала нуклеарну форензику као "анализу заплених илегалног нуклеарног или другог радиоактивног материјала и свих повезаних материјала ради пружања доказа за нуклеарне аспекте криминалне истраге", при чему се ова атрибуција односи на "процес идентификације извора нуклеарног или радиоактивног материјала коришћеног у сврхе илегалне активности, да би се одредило место порекла и транзитне руте оваквог материјала, и на крају допринело процесу кривичног гоњења одговорних" [Fedchenko,2015]. 2015. године дефиниција нуклеарне форензике је попримила садашњи облик: "Испитивање нуклеарног или другог

радиоактивног материјала, или доказа који су контаминирани радионуклидима, у контексту правног поступка који се налази под окриљем међународног или националног права а који се односи на нуклеарну безбедност "[IAEA No. 2-G,2015]. Она може да помогне истражним органима власти да разоткрију детаље о одређеном инциденту, на тај начин што ће одговорити на питања шта, где, када, како и зашто се недозвољена активност одиграла као и могућност идентификације учесника инцидента.

Приликом реаговања на могући нуклеарни инцидент, користи се "степенован приступ" (*graded approach*). Ово подразумева јасно дефинисан след операција и анализа на заплењеном узорку нуклеарног/радиоактивног материјала у циљу постизања исправних и тачних резултата. Поменути приступ се састоји од: категоризације, карактеризације, нуклеарно-форензичке интерпретације и реконструкције [Fedchenko,2015; IAEA No.2,2006].

- Категоризација има за циљ да идентификује ризик за безбедност одговорних (ватрогасци, полицајци и медицински радници), припадника органа реда и јавности као и утврђивање постојања претње за националну безбедност или криминалне активности [IAEA No.2,2006]. У овом кораку се заплењени материјал категорише у предефинисану групу (групе су различите у зависности од државе у којој се инцидент десио), што одређује даљи начин руковања и врсту анализа над материјалом [Fedchenko,2015].
- Карактеризацијом се одређује природа радиоактивних и других придружених доказа. Овај процес подразумева потпуну елементарну анализу радиоактивног материјала (укључујући већинске, мањинске и конституенте у траговима). Ово често значи и изотопску анализу ових конституената, за потребе чега се као деструктивна аналитичка техника користи масена спектрометрија у свим облицима, док је за недеструктивну анализу материјала преферентна метода гамаспектрометрије. У карактеризацију такође спада и физичка карактеризација материјала која у случају чврстих материјала подразумева мерење основних димензија, док у случају прашкастих ово значи одређивање дистрибуције и величине честица користећи се у већини случајева скенирајућим електронским микроскопом [Fedchenko,2015].
- Нуклеарно-форензичка интерпретација подразумева довођење у везу измерених карактеристика материјала са познатим чињеницама о руковању, употреби и начинима производње материјала. Ово за циљ има могуће утврђивање времена и места производње нуклеарног/радиоактивног материјала користећи се преваходно интернационалним базама података о којима ће бити речи касније. Овај корак је финални исход лабораторија које се баве нуклеарном форензиком [Fedchenko,2015].
- Реконструкција- Овај корак подразумева повезивање информација које су дале лабораторије које се баве нуклеарном форензиком са истим које су добијене другим каналима (првенствено информацијама од сакупљених додатних доказа добијених традиционалном форензичком анализом или било којим другим изворима информација). У ужим круговима процеса истраживања нуклеарно-терористичких догађаја и нелегалне трговине нуклеарним материјалом, реконструкција се поистовећује са процесом **атрибуције** [Fedchenko,2015].

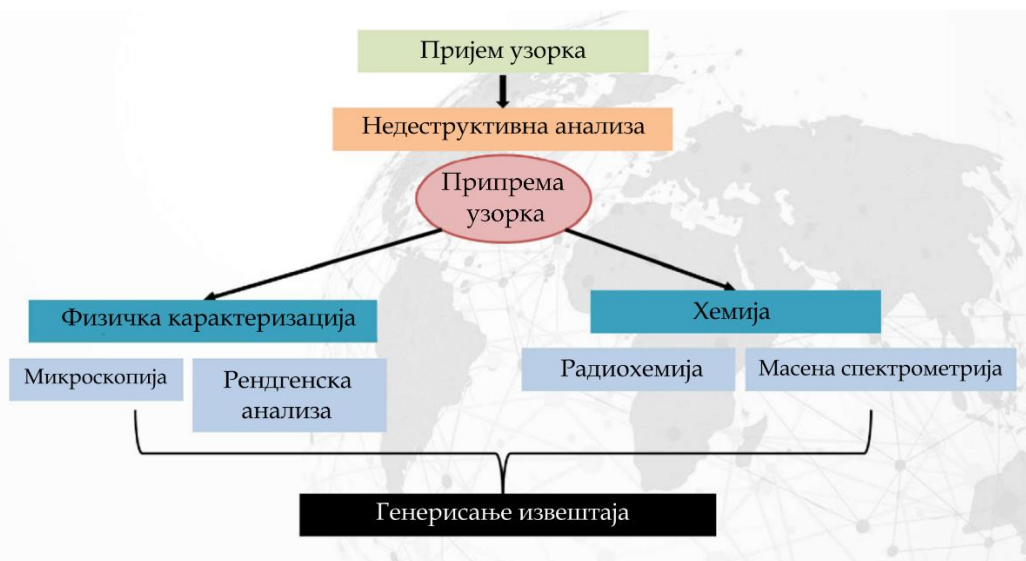
### 1.3 Методе нуклеарне форензике

---

Нуклеарна форензика као научна дисциплина се ослања на добро утемељене и опробане аналитичке технике. Основна подела поменутих техника је на:

- *Деструктивне технике* – Као што им и само име сугерише, предмет анализе, односно узорак, мора проћи кроз неки вид хемијске или физичке промене, да би у крајњем исходу био у одређеној мери или потпуно уништен. Неке деструктивне аналитичке технике које се често користе у нуклеарнофорензичкој анализи су: масена спектрометрија у свим њеним облицима, алфа спектрометрија и рендгенска дифракциона анализа (XRD).
- *Недеструктивне технике* – Једини услов који је овде неопходно задовољити је да узорак мора остати нетакнут, односно у изворном стању, што подразумева одсуство физичких или хемијских промена било које врсте. Једна од најпримењенијих недеструктивних техника у нуклеарној форензици јесте гама спектрометрија. Поред ње, у честој употреби су и оптичка микроскопија, скенирајућа и трансмисиона електронска микроскопија и рендгенска флуоресцентна анализа (XRF).

Свака од поменутих типова техника има својих предности и мана. Деструктивне технике генерално пружају резултате веће тачности и прецизности у односу на недеструктивне, али на рачун неочекујућа интегритета узорка, што је у процесу кривичне истраге један од императива. Из овог разлога, постоји секвенца аналитичких техника које се спроводе по пријему узорка, што је приказано на слици 1.1. Узорак првенствено бива подвргнут недеструктивним аналитичким техникама, а тек потом деструктивним, када су извучене све информације које се могу добити сетом недеструктивних метода. По завршетку свих анализа, све добијене информације се сумирају и извештај, који се користи у процесу кривичне истраге.



Слика 1.1. След анализа које се спроводе по пријему узорка.

#### 1.4 Прикупљање доказа са радиолошког места злочина

У случају радиолошког или нуклеарног инцидента, први корак је узимање узорака са места дешавања (злочина). Са једне стране, узорковање може деловати као тривијална ствар, али у пракси то свакако није. Наиме, узимање узорака за потребе нуклеарне форензике представља својеврстан изазов, будући да они (узорци) могу да се јаве у разним облицима и агрегатним стањима, а такође

могу бити и повезани са другим предметима. Поред тога, процес нуклеарнофорензичког узорковања је подложен ограничењима, како практичним тако и легалним.

Легална или правна ограничења подразумевају да се узорковањем мора обезбедити узорак који је у правним оквирима подобан за даљу анализу. То подразумева да се од момента узимања узорка мора обезбедити ланац одговорности (*chain of custody*) над узорком како би исти био валидан као доказ при кривичном процесуирању на суду. Практична ограничења се огледају у чињеници да заплењен материјал не мора нужно да буде репрезентативан за неку већу количину од које је он потекао као и да се све информације везане за истрагу добијају само на основу материјала који је доступан у узорку. На ове процесе се у већини случајева не може утицати. Примера ради, у моменту узимања узорка, неке информације које узорак носи са собом могу бити измењене или у потпуности нестати као последица физичких и хемијских процеса у самом узорку, што за последицу може имати погрешно тумачење резултата као и њихово повезивање са стварним догађајима. Стога, на ове чињенице се обраћа посебна пажња у комбинацији са научном и практичном експертизом у даљем процесу нуклеарно форензичке анализе [Fedchenko,2015].

## 1.5 Категоризација и карактеризација узорка

---

### 1.5.1 Категоризација узорка

Процес који прати узимање узорка је његова категоризација. Она представља брзу, обавезно недеструктивну, анализу материјала на лицу места како би се знали даљи кораци, у виду руковања узорком и потребних анализа. Ово је веома битно у ситуацијама где се ради о нелегалној трговини нуклеарним или другим радиоактивним материјалима изван регулаторне контроле или нуклеарно-терористичком инциденту. Као што је већ напоменуто, категоризација има два циља- 1. идентификација ризика за безбедност одговорних (ватрогасци, полицајци и медицински радници), припадника органа реда и јавности као и 2. утврђивање постојања претње за националну безбедност или криминалне активности. Први циљ подразумева утврђивање могућег ризика од радиоактивног зрачења уколико се на месту злочина налази радиоактивни или нуклеарни материјал. Утврђивање ризика се спроводи помоћу метода и техника радиолошке анализе- мерења тоталне активности и брзине доза које потичу од неутронског, алфа, бета или гама зрачења. Утврђивање степена претње и постојање криминалне активности се спроводи искључиво недеструктивним мерним техникама, једна од њих је игама спектрометрија. Тиме се оријентационо могу одредити састав и количина заплењеног узорка, чиме се исти може сврстати у одређену категорију. То даље помаже у одређивању степена претње коју је одређени инцидент изазвао, а она може варирати од контаминације животне средине до нуклеарне пролиферације. Ово је веома важно будући да свака врста претње захтева другачију реакцију. Даљи ток анализа је диктиран категоризацијом узорка на месту злочина [Fedchenko,2015; IAEA No.2,2006].

Заплењени материјали се категорису на основу предлога који је дала Међународна Агенција за Атомску Енергију (IAEA) Ове категорије су приказане у Табели 1.1 и Табели 1.2 [IAEA No.2,2006; Fedchenko,2015]. Подела је направљена одвојено за нуклеарне и друге радиоактивне материјале. У случају нуклеарних материјала градација је направљена узимајући у обзир време потребно да се материјал ручно преради у нуклеарну експлозивну направу, док се у случају радиоактивних материјала подела извршила по категоријама од 1-5, где је категорија 1 најопаснија а категорија 5 најмање опасна категорија по људско здравље [Fedchenko,2015].



Табела 1.1. Категоризација нуклеарног материјала [IAEA No.2,2006].

Категорија	Тип материјала	Радиоактивне компоненте
Неозрачен нуклеарни материјал за директну употребу	Високо обогаћен уранијум Плутонијум $^{233}\text{U}$	$> 20\%$ $^{235}\text{U}$ $< 80\%$ $^{238}\text{Pu}$ Изолован изотоп
Озрачен материјал за директну употребу	Горепоменути материјали у озраченом нуклеарном гориву	Материјал у озраченим горивним елементима или решењима за репроцесуирање потрошеног горива
Алтернативни нуклеарни материјал	Америцијум ( $^{241}\text{Am}$ ) Нептунијум ( $^{237}\text{Np}$ )	Изолован елемент или присутан у озраченом нуклеарном материјалу, у изолованом плутонијуму или изотопској мешавини
Нуклеарни материјал за индиректну употребу	Осиромашен уранијум Природни уранијум Ниско обогаћен уранијум  Плутонијум ( $^{238}\text{Pu}$ ) Торијум	$< 0.7\%$ $^{235}\text{U}$ $\sim 0.7\%$ $^{235}\text{U}$ Више од $\sim 0.7\%$ $^{235}\text{U}$ а мање од $20\%$ $^{235}\text{U}$ $> 80\%$ $^{238}\text{Pu}$ $^{232}\text{Th}$

Табела 1.2. Категоризација другог (не-нуклеарног) радиоактивног материјала [IAEA No.2,2006].

Категорија	Тип уређаја	Радиоактивне компоненте
Категорија 1	Радиотермоелектрични генератори Стерилизатори/ирадијатори Телетерапијски извори	$^{238}\text{Pu}$ , $^{244}\text{Cm}$ , $^{90}\text{Sr}$ $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$
Категорија 2	Индустријски гама извори за радиографију Брахитерапијски извори велике и средње брзине дозе (HDR, MDR) Калибрациони извори	$^{60}\text{Co}$ , $^{192}\text{Ir}$ , $^{75}\text{Se}$ , $^{169}\text{Yb}$ , $^{170}\text{Tm}$ $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{192}\text{Ir}$ $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$
Категорија 3	Стационарни индустријски бројачи "well logging" извори Пејсмејкери	$^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{252}\text{Cf}$ , $^{241}\text{Am}$ $^{241}\text{Am/Be}$ , $^{137}\text{Cs}$ $^{238}\text{Pu}$
Категорија 4	Брахитерапијски извори ниске брзине дозе (LDR) Мерачи дебљине Мерачи нивоа течности Преносни мерачи Дензитометри костију Елиминатори статичког електрицитета	$^{137}\text{Cs}$ , $^{226}\text{Ra}$ , $^{125}\text{I}$ , $^{192}\text{Ir}$ , $^{198}\text{Au}$ , $^{252}\text{Cf}$ $^{85}\text{Kr}$ , $^{90}\text{Sr}$ , $^{241}\text{Am}$ , $^{147}\text{Pm}$ $^{241}\text{Am}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{60}\text{Co}$ $^{241}\text{Am/Be}$ , $^{137}\text{Cs}$ $^{109}\text{Cd}$ , $^{153}\text{Gd}$ , $^{125}\text{I}$ , $^{241}\text{Am}$ $^{241}\text{Am}$ , $^{210}\text{Po}$
Категорија 5	Генератори флуоресцентног рентгенског зрачења Громобрани Mössbauer-ови спектрометри Извори за медицинску дијагностику  Јављачи пожара	$^{55}\text{Fe}$ , $^{109}\text{Cd}$ , $^{57}\text{Co}$ $^{241}\text{Am}$ , $^{226}\text{Ra}$ , $^3\text{H}$ $^{57}\text{Co}$ Краткоживећи радиоизотопи нпр. $^{131}\text{I}$ $^{241}\text{Am}$ , $^{238}\text{Pu}$

### 1.5.2 Карактеризација узорка

После категоризације заплешеног материјала у једну од група приказаних у Табелама 1.1 и 1.2, следећи процес кроз који узорак пролази је његова **карактеризација**. Карактеризација се обично одвија у (националним) лабораторијама предодређеним за нуклеарну форензику, мада може се одвијати у било којој лабораторији која поседује потребну инфраструктуру и у могућности је да спроведе неопходан сет анализа над узорком. Сврха овог корака је анализа нуклеарног/радиоактивног материјала у узорку и састављање што детаљнијег описа истог ради потреба даље истраге [Fedchenko,2015].

**Карактеристике материјала** - Обим карактеристика материјала које ће бити испитиване, а уједно и мерне технике које се користе нису исте за све материјале и нису увек унапред познате [Fedchenko,2015]. У неким случајевима ће посебан сет анализа бити неопходан, док некад и најосновнији сет анализа задовољава потребе истраге. У оквиру нуклеарне форензике се веома често срећу материјали који потичу из циклуса нуклеарног горива, и они као такви поседују много карактеристика, али оне се углавном могу недвосмислено груписати у листу категорија. *IAEA* је усвојила једну овакву листу за потребе имплементације у области нуклеарне безбедности, која је приказана у Табели 1.3 [Fedchenko,2015].

**Табела 1.3.** Групе карактеристика нуклеарних материјала подложних мерењима [Fedchenko,2015].

Група карактеристика	Карактеристике
<b>Физичке</b>	Велине, облици и текстуре чврстих објеката Карактеристике прашкастих материјала: дистрибуција величина честица, морфологија Карактеристике течних материјала
<b>Хемијске (молекуларне)</b>	Хемијски облик нуклеарног или радиоактивног материјала Нерадиоактивне хемикалије које се користе у циклусу нуклеарног горива
<b>Елементарне</b>	Већински конститутивни елементи у узорку (уколико није претходно јасно из одређивања хемијског састава) Мањински елементи <sup>1</sup> Елементи у траговима <sup>2</sup>
<b>Изотопске</b>	Изотопски састав нуклеарних материјала Изотопски састав нуклеарних материјала

<sup>1</sup>Мање заступљени елементи су обично они који су са намером додати у материјал ради побољшавања или промене његових физичких или хемијских карактеристика.

<sup>2</sup>Елементи у траговима се превасходно ненамерно додају током производње материјала или његове израде. На пример, машинска обрада елемената од уранијума са челичним инструментима оставиће трагове челика и хрома у материјалу.

**Мерне технике и опрема.** У нуклеарнофорензичкој анализи на располагању нам је пуно опреме и повезаних мерних техника у циљу добијања карактеристика материјала, приказаних у Табели 1.4. Такође, у складу са [Fedchenko,2015; IAEA No.2,2006], користе се три групе аналитичких алата: запреминска (*bulk*) анализа, имицинг (осликавање) и микроанализа, приказано у Табели 1.5. У односу на начин како процесуирају и анализирају узорак, мерне технике се деле на деструктивне и недеструктивне (у даљим поглављима ове тезе, пажња ће већински бити посвећена недеструктивним мерним техникама, односно гамаспектрометрији). Резултат ових анализа је елементарни или изотопски састав материјала у узорку. У случају деструктивних техника, узорак пролази кроз физичку и хемијску промену, где у крајњем исходу део узорака или цео узорак буде уништен. У већини случајева пре саме анализе узорак мора бити припремљен у адекватној форми за даљу анализу. Насупрот овој, приликом недеструктивне анализе, као што и само име каже, узорак после мерења остаје у великој мери или потпуно физички и хемијски непромењен. Сама анализа може бити пасивна или активна. Типичан пример пасивне недеструктивне анализе у нуклеарној форензици је гамаспектрометрија, где се мере гама зраци који спонтано напуштају узорак и њихова енергија. Овим путем се успешно може извршити идентификација радионуклида присутних у анализираном материјалу, на основу јасно дефинисане везе између датог изотопа и одређене емитоване енергије гама зрака. Код активне недеструктивне анализе, емисија зрачења мора бити индукована на неки начин, на пример помоћу снопа неутрона (када се користи техника неутронске активационе анализе) [Fedchenko,2015].

**Запреминска анализа** - Овај тип анализе се имплементира у циљу карактеризације материјала као целине, и као такав даје информације о усредњеном саставу узорака, што је неопходно за идентификацију елемената у траговима. Уколико имамо хомоген узорак по целој запремини, ова анализа нам је довољна за карактеризацију самог материјала. Запреминска анализа може бити, такође, недеструктивна или деструктивна [Fedchenko,2015].

**Осликавање (имицинг)** - У процесу осликавања, користе се алати који производе слике високе резолуције и увећања које имају две повезане сврхе.

1. **Утврђивање хомогености узорака.** Уколико је узорак хетероген (у његов састав улазе и честице друге природе), сама запреминска анализа није у могућности да пружи довољно информација за позитивну идентификацију материјала, већ се морамо послужити микроанализом појединачних честица. Занимљив пример је заплена прашкастог материјала на Минхенском аеродрому 1994. године, где је помоћу скенирајућег електронског микроскопа (СЕМ) нађено да узорак садржи три веома различите врсте честица – триуранијум-октоксид ( $U_3O_8$ ) и два типа плутонијум-оксида ( $PuO_2$ ), од којих свака изискује индивидуалну микроанализу [Fedchenko,2015].
2. **Састав узорака.** Овом техником се могу извући информације о градивним елементима самог материјала (величине честица, плочица, зрнаца). Ови подаци могу помоћи у добијању историје<sup>4</sup> материјала у узорку као и начина производње. Примера ради, фабрике за обогаћивање уранијума користе уранијум у гасовитом једињењу, уранијум-хексафлуорид ( $UF_6$ ). Уколико се  $UF_6$  испарења наталоже на унутрашњим зидовима опреме производних постројења, формираће глатке сферне честице пречника 1-2  $\mu m$ . Ове честице имају тенденцију да се, како време пролази, споје и формирају танак глатки

---

<sup>4</sup> Под историјом материјала се подразумевају процеси и/или реакције физичке и хемијске природе којима је исти био подвргнут од момента настанка до тренутка мерења.

филм, који се потом може поломити и формирати грубе плочасте честице. Облик тих честица може бити добар индикатор при одређивању историје материјала [Fedchenko,2015].

**Микроанализа** – Генерално гледано, микроанализа подразумева одређивање релативних и апсолутних изотопских заступљености ниских концентрација хемијских једињења или изотопа. Углавном се изражава као концентрација. Као што је дефинисано у [McNaught, Wilkinson, 1997], *in situ* микроанализа је дефинисана као: директно аналитичко истраживање микроструктурних домена чврстих тела уз употребу фокусираних снопова честица или зрачења. Уколико се после осликавања утврди да се ради о хетерогеном материјалу у узорку, притупа се микроанализи. У случају поменутих заплена праха на Минхенском аеродрому, појединачне групе честица су биле микроанализиране путем масене спектрометрије, што је отворило могућност да се одреди за сваки материјал појединачно његова: старост, тип реактора где је настао као и изотопски састав [Fedchenko,2015].

Свака процедура и анализа у нуклеарној форензици мора да се уклопи у шири правни оквир. Као што је то био случај и код категоризације узорака, и при карактеризацији се суочавамо са одређеним ограничењима прописаним у одговарајућим правним документима. Одређене карактеристике материјала добијене горе поменутих анализа могу бити осетљивог садржаја и стога строго поверљиве. Пример имплементације ових ограничења су она постављена за радионуклидну компоненту Интернационалног Мониторинг Система (*International Monitoring System - IMS*) који је саставни део Организације за свеобухватну забрану нуклеарних проба (*Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization – СТВТО*). Наиме ИМС из ваздушних филтера сакупља радиоактивне честице и племените гасове. По завршетку сакупљања истих, протокол у *IMS*-у је да се изврши претрага на радионуклиде коју си индикативни за нуклеарну експлозију: четири изотопа ксенона ( $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$ ,  $^{135}\text{Xe}$ ), док се честице анализирају на присуство 84 радионуклида (42 продукта активације и 42 фисиона продукта) који су приписани као значајни. За мерење племенитих гасова се користи гамаспектрометрија високе резолуције (*high-resolution gamma spectrometry-HRGS*) и бета-гама коинцидентна спектрометрија (*beta-gamma coincidence spectrometry-BGCS*) док се за анализу радиоактивних честица користи само HRGS. Употреба прецизнијих техника као што је масена спектрометрија је забрањена. Ова чињеница омогућава *IMS*-у да буде у стању да детектује нуклеарне експлозије без ризика за откривање поверљивих информација које се тичу дизајна нуклеарног оружја. У Табели 1.4 приказане су категорије карактеристика материјала као и мерне технике којима се исте могу измерити. У Табели 1.5 приказане су деструктивне и недеструктивне мернетехнике које се користе у различитим фазама процеса карактеризације материјала у нуклеарној форензици [Fedchenko,2015].

**Табела 1.4.** Специфичне категорије карактеристика материјала и одговарајуће мерне технике [Fedchenko,2015].

Оквир	Карактеристике од значаја	Мерне технике
<b>Развој и контрола нуклеарног наоружања и складишта, разоружање</b>		
<b>Национални програми развоја наоружања<sup>1</sup></b>	Све	HGRS, MS
<b>Уговор о делимичној забрани нуклеарних проба<sup>1</sup></b>	Изотопске	HGRS, MS
<b>Уговор о свеобухватној забрани нуклеарних проба<sup>2</sup>:</b>		
<b>Компонента ИМС за радионуклиде</b>	Изотопске	
<b>Инспекција на лицу места</b>	Изотопске	HGRS, BGCS HGRS, BGCS
<b>Уговор о укидању фисибилног материјала<sup>1,3</sup></b>	Изотопске	MS, HGRS
<b>Непролиферација и нуклеарна безбедност</b>		
<b>Уговор о непролиферацији (узорковање из животне средине у оквиру IAEA мера заштите [IAEA_Gloss,2002])<sup>1</sup></b>	Елементарне, Изотопске	HGRS, XRF, SEM, MS
<b>Атрибуција за случајеве кријумчарења<sup>1</sup></b>	Све	HGRS, SEM,
<b>Атрибуција за случајеве нуклеарног тероризма<sup>1</sup></b>	Све	MS HGRS, MS
<b>Информације о нуклеарним материјалима</b>		
<b>Мониторинг експлозија у иностранству</b>	Све	-
<b>Мониторинг иностраних институција и материјала</b>	Све	-

BGCS- бета-гама коинцидентна спектрометрија, HGRS- гамаспектрометрија високе резолуције, SEM – скенирајућа електронска микроскопија, XRF- рентгенска флуоресцентна анализа, IAEA- Међународна Агенција за Атомску Енергију, ИМС- Интернационални Мониторинг Систем.

<sup>1</sup>У склопу овог оквира се не примењују ограничења на карактеристике које ће се испитивати као и на употребљене мерне технике.

<sup>2</sup>У склопу овог оквира примењују се ограничења како на карактеристике које ће се испитивати као и на употребљене мерне технике.

<sup>3</sup>Мерне технике које ће бити дозвољене у оквиру Уговора о укидању фисибилног материјала као и интересне сфере у домену карактеристика материјала ће бити одређене ако и кад такав уговор буде потписан и зависеће од специфичних детаља верификације уговора. Карактеристике које ће бити мерене могу дати информације о укупној количини плутонијума произведеног у реактору, чињеници да ли је производња материјала у току или обустављена и о старости нуклеарног материјала.

**Табела 1.5.** Мерне технике коришћене у различитим фазама процеса карактеризације материјала у нуклеарној форензици [*Fedchenko,2015*].

<b>Врста анализе</b>	<b>Деструктивни алат</b>	<b>Недеструктивни алат</b>
<b>Запреминска анализа</b>	Термално јонизујућа масена спектрометрија (TIMS), индуктивно спрегнута масена спектрометрија (ICP-MS) Радиохемијска сепарација	Гама спектрометрија високе резолуције(HGRS), бета-гама коинцидентна спектрометрија(BGCS) , бета-гама тригерована спектрометрија (BGGS), рентгенска флуоресцентна анализа (XRF), алфа-честична спектроскопија (APS)
<b>Имиџинг</b>	-	Директна визуелна инспекција, фотографија, оптичка микроскопија Скенирајућа електронска микроскопија (SEM), трансмисиона електронска микроскопија (TEM)
<b>Микроанализа</b>	TIMS фисионих трагова (FT-TIMS), ICP-MS Резонантно јонизујућа масена спектрометрија (RIMS), акцелераторска масена спектрометрија (AMS)	Површински јонизујућа масена спектрометрија (SIMS) Скенирајућа електронска микроанализа SEM са сензором за дисперзију енергије (SEM/EDS), SEM са сензором за дисперзију таласних дужина (SEM/WDS)

---

## 2. НУКЛЕАРНА ФОРЕНЗИКА У МЕЂУНАРОДНИМ ОКВИРИМА

---

У циљу ширења знања и искустава а уједно и успостављања сарадње из области нуклеарне форензице, на међународном нивоу основане су бројне организације и партнерства. Најупечатљивији примери оваквих организација су: Међународна радна група за нуклеарну форензику (*Nuclear Forensics International Technical Working Group- ITWG*), Глобална Иницијатива за Борбу Против Нуклеарног Тероризма (*Global Initiative to Combat Nuclear Terrorism-GICNT*), Безбедоносна Иницијатива за Спречавање Пролиферације (*Proliferation Security Initiative-PSI*). [*Apostol,2016*].

### 2.1 Међународна радна група за нуклеарну форензику ITWG

---

Међународна Радна Група за Нуклеарну Форензику (ITWG) је "мултинационална, незванична асоцијација састављена од људи који се баве нуклеарном форензиком у разним оквирима – научници, припадници регулаторног тела као и припадници органа реда и мира (Министарства унутрашњих послова)". Сви они имају једну задатак који им је заједнички - а то је одговор на догађаје везане за нуклеарну безбедност који укључују нуклеарне или друге радиоактивне материјале ван регулаторне контроле. ITWG је основана у периоду између 1995-1996. године као последица иницијативе на G-8 самиту (самит у Отави 1995. као и самит у Москви 1996. године). Највеће заслуге за овај подухват имали су научници из Обједињеног истраживачког центра - Института за Трансуранијумске Елементе (*Joint Research Centre-Institute for Transuranium Elements (ITU)*) у Карлсруеу који представљајући Европску Комисију и Националне лабораторије под окриљем Министарства за Енергетику Сједињених Америчких Држава, наравно уз подршку високих званичника. Владајуће је мишљење да је оснивање ITWG утемељило саму нуклеарну форензику као нову научну дисциплину. Учешће у ITWG је отворено за све земље које искажу интерес да се баве нуклеарном форензиком и припаднике националних организација које учествују у одговору на догађаје везане за нуклеарну безбедност а који имају потребне компетенције и квалификације [*Garrett et al.,2014; NF\_ITWG,2022*]. Наша земља је узела чланство у овој организацији 2017. године када је наш представник први пут учествовао на годишњем састанку, те године у *Joint Research Centre-Institute for Transuranium Elements (ITU)*, у Карлсруеу у Немачкој.

ITWG представља платформу која повезује људе различитих занимања а који су укључени у ланац операција који прати одређен догађај везан за нуклеарну безбедност (детекција, превенција, одговор и митигација оваквог догађаја) и омогућује им да поделе своја искуства и стекну нова сазнања из области нуклеарне безбедности која су стекли кроз стварне догађаје и усавршавања. ITWG на тај начин помаже решавању још једног великог проблема у нуклеарној форензици, а то је проналажење заједничког језика и терминологије између научника и инжињера (техничких експерата) са једне стране и законодавне власти, тужилаца и припадника органа реда и мира (нетехничких експерата) са друге. [*Apostol,2016*] Установљена је пракса да се једном на нивоу године организују састанци где се велики део размене знања и искустава и одиграва. Изузетак су биле 2001. година, 2014. година, 2020. година када састанак услед пандемије вируса COVID-19 није одржан, и 2021. година када је овај састанак био виртуелне природе. У Табели 2.1 [*Garrett et al.,2014*], приказана је листа локација и организатора састанака од 1995. године до данас. Током својих 25 година постојања, ITWG је окупила преко 300 експерата из скоро 60 земаља.

**Табела 2.1.** Састанци Међународне радне групе за нуклеарну форензику (ITWG)  
[Garrett et al.,2014].

<b>Година</b>	<b>Организатор</b>	<b>Локација</b>
<b>1995</b>	Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL)	Ливермор, Калифорнија , САД
<b>1996</b>	Joint Research Centre-Institute for Transuranium Elements (ITU)	Карлсруе, Немачка
<b>1996</b>	Russian Ministry of Atomic Industry (MINATOM)	Обнинск, Русија
<b>1997</b>	Landau Network-Centro Volta	Комо, Италија
<b>1998</b>	Metropolitan Police	Лондон, Велика Британија
<b>1999</b>	Säteilyturvakeskus (STUK)	Хелсинки, Финска
<b>2000</b>	International Atomic Energy Agency (IAEA)	Беч, Аустрија
<b>2002</b>	Euratom	Луксембург, Луксембург
<b>2003</b>	Hungarian Atomic Energy Agency (HAEA)	Будимпешта, Мађарска
<b>2004</b>	The French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA)	Кадараш, Француска
<b>2005</b>	Nuclear Research Institute Řež	Праг, Чешка
<b>2006</b>	Joint Research Centre-Institute for Transuranium Elements (ITU)	Карлсруе, Немачка
<b>2007</b>	Totalförsvarets forskningsinstitut (FOI)	Умеа, Шведска
<b>2008</b>	Institute for Nuclear Research and Nuclear Energy (INRNE)	Софија, Бугарска
<b>2009</b>	International Atomic Energy Agency (IAEA)	Беч, Аустрија
<b>2010</b>	Atomic Weapons Establishment – (AWE)	Оксфорд, Велика Британија
<b>2011</b>	Kiev Institute for Nuclear Research (KINR)	Кијев, Украјина
<b>2012</b>	Netherlands Forensics Institute (NFI)	Хаг, Холандија
<b>2013</b>	Rosatom	Санкт Петербург, Русија
<b>2015</b>	Centre for Energy Research – МТА ЕК	Будимпешта, Мађарска
<b>2016</b>	The French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA)	Лион, Француска
<b>2017</b>	Joint Research Centre-Institute for Transuranium Elements (ITU)	Карлсруе, Немачка
<b>2018</b>	Spiez Laboratory	Шварценбург, Швајцарска
<b>2019</b>	Horia Hulubei National Institute for R&D in Physics and Nuclear Engineering- IFIN-HH	Букурешт, Румунија
<b>2021</b>	Virtual Meeting	-
<b>2022</b>	Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL)	Сан Франциско, САД



ITWG своје деловање у великој мери спроводи преко 'Task Group'-а, од којих је свака везана за један аспект или активност који су оцењени као нужни за напредовање модерне нуклеарне форензике. Резултат рада ових група су смернице у облику документа ("*guidelines*") и које су доступне на [NF\_ITWG,2022]. Тренутно, постоји пет група [Garrett et al.,2014]:

1. Радна група која се бави доказима (*Evidence Task Group*) – Ова група је првенствено посвећена прављењу процедура које су везане за управљање местом злочина, а односе се на идентификацију, сакупљање, паковање, чување и транспорт доказа који садрже нуклеарни или други радиоактивни материјал. Ове процедуре су добро познате припадницима органа реда, али само кад је реч о конвенционалним доказима, стога *Evidence Task Group* игра важну улогу у њиховом упознавању са датом материјом.
2. Радна група која се бави комуникацијом, промоцијом и тренингом (*Communications, outreach, and training Task Group*) - главни задатак ове групе огледа се у пружању помоћи учесницима ITWG да на што ефикаснији начин изврше размену информација везаних за рад у оквирима нуклеарне форензике на националном и интернационалном нивоу као и са другим групама и организацијама чија је интересна сфера нуклеарна форензика. Поред тога, ова група је усредсређена и на организацију, развој и имплементацију едукативних и практичних тренинг курсева који се тичу тема нуклеарне безбедности и нуклеарне форензике, као што су управљање радиолошким местом злочина, методе нуклеарне форензике, и увод у нуклеарну форензику.
3. Радна група која се бави упутствима и процедурама за мерење (*Guidelines Task Group*) – У циљу успостављања што чвршћег научног темеља унутар нуклеарне форензике као нове научноистраживачке дисциплине, на редовној бази се издају смернице у облику документа (*guidelines*), које олакшавају, подспешују и унапређују рад сваког појединца па и организације унутар поменуте области. Смернице се тичу свих аспеката нуклеарне форензике, од колекције узорака, преко потребних анализа до тумачења резултата. У зависности од интересовања и потреба унутар ITWG, додатне смернице могу бити развијене и публиковане.
4. Радна група која се бави међулабораторијским вежбама (*Exercise Task Group*) – ITWG такође представља платформу посредством које се одржавају вежбе међупоређења на тему нуклеарне форензике које се називају СМХ вежбе (*Collaborative Material Exercise*). *Exercise Task Group* је тело унутар ITWG које је задужено за имплементацију и координацију ових вежби. Право учешћа на овим вежбама имају све лабораторије које поседују потребну инфраструктуру (како техничку тако и људске ресурсе). Све лабораторије учесници СМХ вежби добијају идентичан узорак нуклеарног или радиоактивног материјала, и од њих се тражи да пруже своја нуклеарно форензичка открића на тај начин што ће испоставити сваки од три типа извештаја који су препоручени од стране ITWG (24-часовни извештај, извештај након 1 недеље и извештај након 2 месеца). После предавања двомесечног извештаја, одржава се састанак на ком се прегледају и разматрају поднети извештаји (*Data Review Meeting*), на коме учесници дискутују и размењују искуства о најбољим праксама при руковању и истрагама на датом типу узорка. Често, у овим приликама праксе које се примењују у нуклеарној форензици могу наћи своје место и у традиционално форензичким истрагама.
5. Радна група која се бави која се бави Националном базом података нуклеарне форензике (*National Nuclear Forensics Libraries Task Group*) – Анализом резултата СМХ вежби,

утврдила се потреба за стварањем базе података нуклеарних материјала која би омогућила поређења између различитих материјала и процеса познатог порекла и узорка (доказа) из догађаја везаног за нуклеарну безбедност како би се добило позитивно поклапање и, последично, идентификација материјала. Са тим циљем 2009. године, унутар *ITWG*, основана је *National Nuclear Forensics Libraries Task Group*. Национална база података нуклеарне форензике (*national nuclear forensic library - NNFL*) представља скуп информација које су релевантне за нуклеарнофорензичку истрагу, а тичу се нуклеарних и радиоактивних материјала који се или налазе или су произведени у одређеној земљи [*ITWG,2011*]. *NNFL* ове информације може садржати инутар једне или више база података, или у облику физичке архиве узорака. У бази података се налазе информације од одређених карактеристикама, које помажу у дистинкцији једног нуклеарног или радиоактивног материјала од другог.

Ова група такође организује и онлајн (виртуелне) вежбе (*virtual tabletop exercise-TTX*) које су добиле назив "*Galaxy Serpent*" на тему *NNFL*. *Galaxy Serpent* вежбе имају за циљ стварање прототипа националних нуклеарнофорензичких библиотека користећи податке снабдевене од стране организатора вежбе. Секундарни циљ је и развијање аналитичког алата код учесника вежбе, који се остварује путем провере да ли је неки хипотетички заплешен материјал конзистентан или не са подацима које су они унели у прототип библиотеке.

## 2.2 Глобална иницијатива за борбу против нуклеарног тероризма (*GICNT*)

Глобална иницијатива за борбу против нуклеарног тероризма (*Global Initiative to Combat Nuclear Terrorism – GICNT*) је основана 2006. године под контекстом 'добровољног партнерства 88 земаља и пет интернационалних организација који су заједничким снагама посвећени јачању глобалних могућности за превенцију, детекцију и одговор на акт нуклеарног тероризма'. Све земље чланице су се добровољно посветиле имплементацији „Исказа о начелима“, који у ствари представља скуп ширих начела везаних за нуклеарну безбедност и који обухвата дијапазон повезаних циљева. Циљ иницијативе је да се пренесу искуство и експертиза стечени из области непролиферације, борбе против пролиферације и нуклеарног тероризма, да се у оквиру добровољног и невезујућег оквира пружи могућност чланицама ове иницијативе да поделе своје знање и експертизу као и да се удруже колективне способности и ресурси како би се изградила и учврстила глобална мрежа за борбу против нуклеарног тероризма. *GICNT* ове циљеве спроводи у дело путем практичних и теоретских ангажовања кроз разне активности попут семинара, регионалних и мултилатералних вежби, састанака техничких експерата, теренских и 'tabletop'<sup>5</sup> вежби као и радних састанака [*GICNT,2018*].

Партнерске нације у оквиру Глобалне иницијативе за борбу против нуклеарног тероризма нужне су да следе "Исказ о начелима" како би, у ствари, били у могућности да развију колаборацијске способности за борбу против нуклеарног тероризма, а које су у складу са бројним међународним правним оквирима, пре свега *Convention on the Physical Protection of Nuclear Material, United Nations Security Council Resolutions 1373 ,1540* и *Convention for the Suppression of Acts of Nuclear Terrorism*. "Исказ о начелима" се састоји од следећих принципа [*GICNT,2018*]:

1. Уколико је неопходно развити и побољшати системе за урачунавање, контролу и физичку заштиту нуклеарних и других радиоактивних супстанци и материјала.

<sup>5</sup> Вежба која за циљ има реализацију унапред задатог сценарија кроз активности учесника

2. Повећати сигурносне мере на цивилним нуклеарним установама.
3. Унапредити способности за детекцију нуклеарног и другог радиоактивног материјала и супстанци како би се спречила незаконита трговина овим материјалима, укључујући сарадњу у истраживању и развоју капицитета за детекцију на националном нивоу који би били отворени за ширу употребу.
4. Унапредити капацитете учесника у виду потраге, заплене и успостављања сигурне контроле над нуклеарним и другим радиоактивним материјалима и супстанцама (у направама које их користе) коју су у незаконитом поседу.
5. Превенција давању сигурног уточишта, финансијских и економских ресурса терористима који желе да прибаве нуклеарни и други радиоактивни материјал.
6. Обезбеђивање одговарајућих националних и регулаторних правних оквира који би обезбедили имплементацију припадајућих одговорности за терористе или цивиле који подспешују акте нуклеарног тероризма.
7. Побољшање способности учесника за одговор, митигацију и истрагу у случајевима терористичких напада који укључују употребу нуклеарног и другог радиоактивног материјала, укључујући и развој способности за идентификацију ових материјала који јесу или могу бити укључени у дати инцидент.
8. Поспешивање протока информација које претходе супресији аката нуклеарног тероризма и његовог подспешивања, предузимање одговарајућих мера које су конзистентне са националним правним оквирима и међународним обавезама у циљу заштите поверљивости информација које су размењене у поверењу.

GICNT свој рад реализује преко радних група, слично као што је случај и код Међународне Радне Групе за Нуклеарну Форензику. У овој инстанци, то су три радне групе:

- Радна група за нуклеарну форензику (Nuclear Forensics Working Group - NFWG)
- Радна група одговор и митигацију (Response and Mitigation Working Group - RMWG)
- Радна група за нуклеарну детекцију (Nuclear Detection Working Group - NDWG)

Укупну активност и сарадњу између три радне групе надгледа председавајући Групе за имплементацију и процену (Implementation and Assessment Group (IAG)) [Apostol, 2016]. Радна група за нуклеарну форензику има за циљ унапређење способности у области нуклеарне форензике као научне дисциплине на глобалном нивоу, што као директну последицу има побољшање способности једне државе да процени и успостави везе између конкретног нуклеарног или радиоактивног материјала и оних који покушају да тај материјал нелегално поседују, користе или транспортују. Како би се дати циљ остварио, NFWG поклања посебну пажњу следећим акцијама [GICNT, 2018]:

- Развој смерница и спровођење активности подршке
- Поспешивање размене најбољих пракси у области нуклеарне форензике
- Подизање свести о нуклеарној форензици као научној дисциплини међу представницима власти – лидерима земаља чланица
- Помагање партнерским нацијама при успостављању и одржавању капацитета у области нуклеарне форензике као и подстицање унутрашње и међународне сарадње.

У Табели 2.2 приказане су партнерске земље унутар Глобалне иницијативе за борбу против нуклеарног тероризма [GICNT,2018].

**Табела 2.2.** Листа земаља чланице Глобалне иницијативе за борбу против нуклеарног тероризма [GICNT,2018].

<b>Авганистан</b>	<b>Казахстан</b>	<b>Румунија</b>
<b>Азербејџан</b>	Камбоџа	Русија
<b>Албанија</b>	Канада	Саудијска Арабија
<b>Алжир</b>	Кина	Сејшели
<b>Аргентина</b>	Кипар	Сингапур
<b>Аустралија</b>	Киргистан	Сједињене Америчке Државе
<b>Аустрија</b>	Летонија	Словачка
<b>Бахреин</b>	Либија	Словенија
<b>Белгија</b>	Литванија	Србија
<b>Белорусија</b>	Луксембург	Тајланд
<b>Босна и Херцеговина</b>	Мадагаскар	Таџикистан
<b>Бугарска</b>	Мађарска	Туркменистан
<b>Вијетнам</b>	Македонија	Турска
<b>Грузија</b>	Малезија	Узбекистан
<b>Грчка</b>	Малта	Уједињени Арапски Емирати
<b>Данска</b>	Мароко	Уједињено Краљевство
<b>Естонија</b>	Маурицијус	Украјина
<b>Замбија</b>	Мексико	Филипини
<b>Зеленортска Острва</b>	Немачка	Финска
<b>Израел</b>	Непал	Француска
<b>Индија</b>	Нигерија	Холандија
<b>Ирак</b>	Нови Зеланд	Хрватска
<b>Ирска</b>	Норвешка	Црна Гора
<b>Исланд</b>	Обала Слоноваче	Чешка
<b>Италија</b>	Палау	Чиле
<b>Јапан</b>	Панама	Швајцарска
<b>Јерменија</b>	Парагвај	Шведска
<b>Јордан</b>	Пољска	Шпанија
<b>Јужна Кореја</b>	Португал	Шри Ланка

\*Поред наведених земаља, у GICNT су укључене и међународне организације: Европска Унија, Међународна Агенција за Атомску Енергију (IAEA), INTERPOL, *United Nations Interregional Crime and Justice Institute* (UNICRI), *United Nations Office on Drugs and Crime* (UNODC).

## 2.3 Безбедносне иницијативе за спречавање пролиферације (PSI)

---

Безбедоносна иницијатива за спречавање пролиферације (Proliferation Security Initiative – PSI) представља глобални подухват, који за циљ има спречавање нелегалне трговине оружјем масовног уништења, њиховим системима испоруке као и повезаним материјалима који се налазе у трговинским каналима чији су учесници владине и невладине организације а имају везе са пролиферацијом [PSI,2022]. Као таква, PSI је основана 31. маја 2003. године. Безбедоносна иницијатива за спречавање пролиферације је између осталог основана и као одговор на недостатке у законима који су откривени у процесу непотпуног пресретања брода "So San" који је био под заставом Северне Кореје а преносио је SCUD ракете (једна од врста балистичких ракета кратког домета) до Јемена. Овај догађај се одиграо у децембру 2002. године [PSI,2003; PSI,2018].

Закључно са данашњим датумом, PSI је прихваћена од стране 107 земаља, и оне су наведене у Табели 2.3 [PSI,2022]. Све земље чланице безбедносне иницијативе имају обавезу да као такве прихвате и Изјаву о принципима пресретања (*PSI Statement of Interdiction Principles*), која апелује а уједно и обавезује земље учеснице да успоставе платформу помоћу које ће на што координисанији и ефикаснији начин зауставити нелегалну трговину оружјем масовног уништења, као и њихове системе испоруке и повезане ставке [PSI,2022]. Чланице PSI у начелу треба да буду посвећене следећим циљевима [PSI,2022; PSI,2018]:

- Формално посвећивање и јавно пружање подршке Изјави о принципима пресретања (уколико је могуће)
- Пресретање трансфера који су у вези са пролиферацијом до и од држава и невладиних организација, у складу са сопственим капацитетима и могућностима
- Учвршћивање националног правног оквира у циљу организовања пресретања
- Учествовање у подршци поступцима пресретања
- Развој процедура у циљу боље размене информација са другим земљама
- Идентификација националних инструмената који могу допринети циљевима иницијативе
- Пружање контакт особа којима се упућују захтеви за пресретања

PSI не поседује секретаријат на међународном нивоу и нема јасно дефинисан и одређен програм финансирања. Чланице међу собом на редовном нивоу одржавају састанке високих представника као и практичне вежбе како би тестирали и унапредили своје способности за акцију. Неформална структура за координисање наравно постоји и она је развијена унутар тела под називом Оперативна експертска група (*Operational Experts Group (OEG)*), које разматра тренутне забринутости у вези са пролиферацијом и планира будуће састанке. OEG се састоји од представника војске, обавештајне агенције, полиције, експерата из области права и дипломатије из 21 земље чланице PSI. У овом моменту треба нагласити да PSI представља активност а не институцију, као и да је иста необавезујући договор политичке природе и да су све акције унутар ове иницијативе ограничене на оно што су земље чланице вољне и способне да ураде [PSI,2018; PSI,2022].

**Табела 2.3.** Листа земаља чланице (PSI) [PSI,2022].

<b>Авганистан</b>	<b>Израел</b>	<b>Мароко</b>	<b>Србија</b>
<b>Азербејџан</b>	Ирак	Маршалска Острва	Тајланд
<b>Албанија</b>	Ирска	Микронезија	Таџикистан
<b>Ангола</b>	Исланд	Молдавија	Тринидад и Тобаго
<b>Андора</b>	Италија	Монголија	Тунис
<b>Антигва и Барбуда</b>	Јапан	Немачка	Туркменистан
<b>Аргентина</b>	Јемен	Нови Зеланд	Турска
<b>Аустралија</b>	Јерменија	Норвешка	Узбекистан
<b>Аустрија</b>	Јордан	Оман	Уједињени Арапски Емирати
<b>Бахами</b>	Јужна Кореја	Палау	Уједињено Краљевство
<b>Бахреин</b>	Казахстан	Панама	Украјина
<b>Белгија</b>	Камбоџа	Папуа Нова Гвинеја	Филипини
<b>Белизе</b>	Канада	Парагвај	Финска
<b>Белорусија</b>	Катар	Пољска	Фиџи
<b>Босна и Херцеговина</b>	Кипар	Португал	Француска
<b>Брунеи</b>	Киргистан	Румунија	Холандија
<b>Бугарска</b>	Колумбија	Русија	Хондурас
<b>Вануату</b>	Кувајт	Само	Хрватска
<b>Ватикан</b>	Летонија	Сан Марино	Црна Гора
<b>Вијетнам</b>	Либериа	Саудијска Арабија	Чешка
<b>Грузија</b>	Либија	Света Луџија	Чиле
<b>Грчка</b>	Литванија	Свети Винцент и Гренадини	Џибути
<b>Данска</b>	Лихтенштајн	Северна Македонија	Швајцарска
<b>Доминика</b>	Луксембург	Сингапур	Шведска
<b>Доминиканска</b>	Мађарска	Сједињене	Шпанија
<b>Ел Салвадор</b>	Малезија	Словачка	Шри Ланка
<b>Естонија</b>	Малта	Словенија	

## 2.4 Међународни правни оквири за регулацију нуклеарне безбедности

На интернационалном нивоу постоје бројни правни оквири у виду споразума и уговора чија је сврха регулисање и контрола свих радњи које су у вези са руковањем, поседовањем и употребом пре свега нуклеарних, али и других радиоактивних материјала. Најзначајнији примери ових правних аката су следећи:

- **Уговор о непролиферацији нуклеарног оружја** (*Treaty on the Nonproliferation of Nuclear Weapons* - NPT). NPT је ступио на снагу 1970. године, и до данас се овом споразуму прикључило укупно 191 земаља. Главни циљ NPT је превенција ширења нуклеарног наоружања и повезаних технологија, промоција сарадње ради мирнодопске употребе нуклеарне енергије и да учврсти виши циљ у виду делимичног или потпуног нуклеарног разоружања. Ово је уједно и једини интернационални обавезујући документ са циљем нуклеарног разоружања држава које поседују нуклеарно наоружање. NPT је уједно и темељ међународне нуклеарне сигурности, и као такав пружа најбољу основу за очување мира на светском нивоу, док у исто време промовише развој мирнодопских примена нуклеарних технологија (превасходно у енергетском сектору) [Apostol,2016; NPT,2022].
- **Споразум о свеобухватној забрани нуклеарног тестирања** (*Comprehensive Test Ban Treaty* - СТВТ). Овај документ је постао отворен за потписивање 1996. и до данас га је потписало укупно 186 земаља док је ратификован од стране њих 174. Србија је 2001. године потписала споразум а 2004. године га је ратификовала. СТВТ је мултилатерални уговор који има за циљ забрану експлозија нуклеарног оружја, како за војне тако и у мирнодопске сврхе. Забрана експлозија има хоризонтални и вертикални карактер, односно диктира забрану свих подземних, надземних и подводних експлозија. Да би овај споразум ступио на снагу као интернационални закон, он мора бити ратификован од стране свих 44 земаља које поседују нуклеарну технологију (од којих 8 још увек није ратификовало: Кина, Египат, Индија, Израел, Северна Кореја, Иран, Пакистан и Сједињене Америчке Државе) [Moody et al.,2015; СТВТО,2022].
- **Конвенција о физичкој заштити нуклеарног материјала** (*The Convention on the Physical Protection of Nuclear Material* - CPPNM) и њен 2005 Амандман. CPPNM је ступио на снагу 1987. године и (закључно са 2018. годином) ратификована је од стране 157 земаља. Амандман 2005 је ступио на снагу у мају 2016. године када је Никарагва (у том моменту 102. од 153 држава чланица) прихватила овај Амандман, чиме је задовољена двотрећинска већина земаља чланица [Apostol,2016; CPPNM,2022].
- **Конвенција о нуклеарном тероризму** (*Nuclear Terrorism Convention* - NTC). Претходно позната под именом - Интернационална конвенција о супресији аката нуклеарног тероризма (*The International Convention on the Suppression of Acts of Nuclear Terrorism* - ICSTANT). NTC је ступила на снагу 2007. године и представља споразум који потиче од Уједињених Нациа. Створена је са циљем да се криминализују акти нуклеарног тероризма и да се промовише сарадња између законодавне и извршне власти како би се поменути терористички акти спречили, истражили и санкционисали. Тренутно, конвенција има 115 земаља потписница и 118 партија [Apostol,2016; NTC,2022].
- **Споразум о забрани постављања нуклеарног и другог оружја масовног уништења на морско или океанско дно као и њихово подтло** (*Treaty on the Prohibition of the Emplacement*

*of Nuclear Weapons and Other Weapons of Mass Destruction on the Seabed and the Ocean Floor and in the Subsoil Thereof*) Споразум је ступио на снагу 1972. године и налаже превенцију постављања нуклеарних, хемијских и биолошких оружја на морско и океанско дно, како би се елиминисала могућност подводне трке у наоружању и залагало се за мирнодопско истраживање вода. До данашњег датума, ратификован је од стране 169 земаља [Apostol,2016; NTI,2008].

- **Уговор о принципима управљања активностима држава у истраживању и употреби свемира, укључујући Месец и друга небеска тела** (*Treaty on Principles Governing the Activities of States in the Exploration and Use of Outer Space, including the Moon and Other Celestial Bodies*). Уговор је ступио на снагу 1967. године и формира основу за интернационални закон о свемиру. До данас, има 112 партија и 89 земаља које су га ратификовале [Apostol,2016; OST,2021].
- **Резолуције 1373 и 1540 Безбедносног Савета Уједињених нација.** Ступиле су на снагу 2001. и 2004. године респективно. Налажу следеће – Позивају на националну, регионалну и интернационалну сарадњу, како би се учврстила могућност одговора на претње нуклеарног тероризма на глобалном нивоу. У складу са резолуцијом 1540 све земље партнери имају обавезу да поднесу националне извештаје о корацима које су поднеле или планирају да поднесу у циљу примењивања те резолуције [Apostol,2016; Res1540,2004].

Поред поменутих уговора и споразума, постоји још један важан алат који има значајну улогу у одржавању мреже интернационалне нуклеарне сигурности и безбедности а то су *Самити о нуклеарној безбедности*. Уопште, иницијатива о овим самитима је први пут покренута говором тадашњег председника Сједињених Америчких Држава, Барака Обама, у Прагу 2009. године. У том говору, наглашена је потреба да се осигура целокупни "рањив" нуклеарни материјал широм света у року од четири године. Главни циљ идеје Самита је да се реши проблем нуклеарног тероризма на тај начин што ће се ставити под законски надзор нуклеарни материјали који су у цивилном поседу а могу се употребити у сврхе израде оружја, побољшати међународна сарадња у циљу превенције незаконите аквизиције нуклеарног материјала од стране невладиних организација као што су кријумчари или терористичке групе и предузимање корака како би се ојачао нуклеарни безбедносни систем на глобалном нивоу [NSS,2018].

Фокус самита о нуклеарној безбедности је превасходно нуклеарни материјал који се налазу у цивилној сфери деловања, дакле не тиче се безбедности нуклеарног материјала у поседу војске. До данас, одржана су четири оваква самита: 2010. године у Вашингтону, САД, 2012. године у Сеулу, Јужна Кореја, 2014. године у Хагу, Холандија и 2016. године опет у Вашингтону, САД. На првом Самиту о нуклеарној безбедности 2010. радни план који се тиче области нуклеарне форензике налаже следеће : "Земље чланице ће пронаћи начин како да раде у колаборацији у циљу развијања националних капацитета за нуклеарну форензику, као што су стварање националних библиотека нуклеарних материјала као и успостављање интернационалних дирекција у којима би седеле контакт особе, а све то ради подспешивања и охрабрења међудржавне сарадње у борби против незаконите трговине нуклеарним материјалом, укључујући и активности Међународне агенције за атомску енергију у овој сфери деловања". Сваки од ова четири самита је као резултат изнедрио "*consensus communiqué*", који је реafirмисао главне циљеве самита и осмелио државе чланице да предузму неке акције, као што су ратификација кључних споразума или минимизација складишта нуклеарног материјала који се може употребити за оружје [Apostol,2016; ASS,2018].



### 2.4.1 Национална регулатива

Поред поменутих међународних споразума, уговора и иницијатива, на територији Републике Србије на снази су и одређени национални правни акти:

- **Кривични законик** са својим допунама, објављен у Службеном гласнику Републике Србије број 85/2005, 88/2005 - исправка, 107/2005 - исправка, 72/2009, 111/2009, 121/2012, 104/2013, 108/2014, 94/2016 и 35/2019. У оквиру поменутог законика препознаје се појам претње нуклеарним тероризмом - уколико особа 'производи, поседује, набавља, превози, снабдева или употребљава нуклеарно, биолошко, хемијско или друго оружје, експлозив, нуклеарни или радиоактивни материјал или уређај, укључујући и истраживање и развој нуклеарног, биолошког или хемијског оружја, противно прописима одобри или приступи изградњи нуклеарне електране, постројења за производњу нуклеарног горива или постројења за прераду исслуженог нуклеарног отпада биће осуђена казном затвора од шест месеци до петнаест година', зависно од почињеног кривичног дела. Ови поступци су регулисани у оквиру Чланова 267., 287., 372., 391. и Члана 431 [*KrivZak,2019*].
- **Закон о радијационој и нуклеарној сигурности и безбедности** –објављен у Службеном гласнику Републике Србије број 95/2018 и 10/2019. "Овим законом се уређују мере радијационе и нуклеарне сигурности и безбедности, услови за обављање делатности са изворима зрачења, поступање у ситуацији планираног, постојећег и ванредног излагања јонизујућем зрачењу у циљу обезбеђивања заштите појединаца, становништва и животне средине од штетног утицаја јонизујућег зрачења, сада и убудуће". "Овај закон се примењује на све делатности које укључују мирнодопску примену нуклеарне енергије и јонизујућег зрачења на територији или под надлежношћу или контролом Републике Србије". У склопу овог закона, основан је Директорат за радијациону и нуклеарну сигурност и безбедност Србије који обавља функцију регулаторне контроле делатности које су обухваћене овим законом [*ZRNSB,2019*].

Директорат за радијациону и нуклеарну сигурност и безбедност Србије самостално и функционално независно регулаторно тело које врши регулаторне, стручне и са њим повезане извршне послове у области радијационе и нуклеарне сигурности и безбедности [*ZRNSB,2019*]. Примарна функција Директората је регулација одређивања Програма о нуклеарној сигурности и безбедности, регулација успостављања безбедносних мера нуклеарних објеката и нуклеарних материјала, израда бројних Правилника из области нуклеарне сигурности и безбедности, израда Националног акционог плана, припрема предлога Плана деловања у случају нуклеарне или радиолошке ванредне ситуације, прописује мере за заштиту појединаца, становништва и животне средине од штетног утицаја јонизујућег зрачења, припрема нацрте стратегија и акционе планове за њихово спровођење из чл. 6. и 8. Закон о радијационој и нуклеарној сигурности и безбедности и многе друге [*SRBATOM,2019*].

## 2.5 Ризици по нуклеарну безбедност

У последњих 30 година, јавио се повећан број инцидента који су укључивали нуклеарне и друге радиоактивне материјале. Ти инциденти по својој природи представљају огромну претњу по нуклеарну сигурност и безбедност како земаља које поседују нуклеарне материјале и нуклеарни програм, тако и на глобалном нивоу. У складу са дефиницијом коју је дала Међународна агенција за атомску енергију (ИАЕА), **догађај нуклеарне безбедности** је "догађај који има потенцијалне или стварне импликације по питању нуклеарне безбедности и који се мора санирати", док је **претња по нуклеарну безбедност** дефинисана као "особа или група људи са мотивацијом, намером и способношћу да почине кривична или намерна неовлашћена дела која укључују или су усмерена на нуклеарни материјал, други радиоактивни материјал, придружене објекте или активности за које држава утврди да имају неповољан утицај на нуклеарну безбедност". Такође, **нуклеарнобезбедносне мере** су дефинисане као "мере које имају за циљ да спрече претњу по нуклеарну безбедност да испуни кривично или намерно неовлашћено дело које се тиче нуклеарног материјала, другог радиоактивног материјала, придружених објеката и активности или да детектује или одговори на догађај нуклеарне безбедности" [IAEA No.20,2013]. У наставку ће у виду примера бити изложени неки од значајнијих криминалних инцидената који су пријављени Међународној Агенцији за Атомску Енергију, а укључују нуклеарни и други радиоактивни материјал [Apostol,2016]:

- Запослени у фабрици за репроцесуирање *La Hague* у Француској, покушао је да почини убиство, тиме што је поставио металне радиоактивне дискове испод ауто седишта свог шефа. Овај инцидент се одиграо 1978. године.
- Унутар бетонског зида у стану у месту Краматорск, Украјина, нађена је мала капсула која је садржала високу активност  $^{137}\text{Cs}$ . Сматра се да је капсула у ствари била део мерног уређаја који је изгубљен током касних 1970-тих година, и да је завршила помешана са шљунком који је коришћен при изградњи зграде 1980. До момента када је капсула откривена, 6 станара овог стана је добило леукемију и још њих 17 је примило високу дозу зрачења. Овај инцидент се одиграо 1989. године [NucIncidents,2022].
- Телевизијски репортер је добио дојаву да се на локалитету парка Исмаилово у источној Москви, Русија, налази сакривено радиоактивно оружје. Потом је уследила детаљна истрага, након чега је пронађен суд који је садржао цезијум  $^{137}\text{Cs}$ , повезан са штапинима динамита. Овај инцидент се одиграо 1995. године [NucIncidents,2022].
- Запослени у фабрици за репроцесуирање малих размера WAK (Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe), у месту Карлсруе, Немачка, украо је плутонијум са радног места, и сумња се да је покушао да отрује своју бившу жену. Радинк није украо велику количину плутонијума, само пар крпа које су служиле за брисање одређених површина и малу количину течног отпада. Поред починитеља, још најмање двоје људи је било контаминирано плутонијумом. Два цела стана у граду Ландау у области Rhineland-Palatinate су били контаминирани, и морала се извршити потпуна деконтаминација у вредности од два милиона еура. Човек је на крају осуђен и послат у затвор. Овај инцидент се одиграо 2001. године [NucIncidents,2022].
- Тровање Александра Литвиенка полонијумом  $^{210}\text{Po}$ , који је (сем гама линије слабог интензитета на 803 keV) изразит алфа емитер. Александар Литвиенко је бивши официр руског ФСБ (Руски Федерални Безбедносни Сервис), који је избегао просекуцију у Русији,

и добио политички азил у Великој Британији. Отрован је ингестијом зеленог чаја који је садржао  $^{210}\text{Po}$ . *Post-mortum* гамаспектрометријском анализом биодистрибуције  $^{210}\text{Po}$  у телу, утврђено је да је укупна активност која је ингестирана приближно 4.4 GBq, што је преко 400 пута више од средње леталне дозе за случај ингестије. Литвиенко је на крају преминуо услед застоја срца 22. новембра 2006. године на Универзитетској болници у Лондону, Велика Британија у коју је примљен 3. новембра 2006. године [Litvienko,2022].

Тадашњи генерални директор *IAEA* Mohamed ElBaradei је током свог говора на Интернационалној конференцији на тему Нуклеарне безбедности 2005. године дефинисао четири потенцијална ризика по нуклеарну безбедност [Apostol, 2016; *IAEA NT*,2019]:

1. Прибављање нуклеарних материјала ради конструкције нуклеарних експлозивних направа;
2. Крађа нуклеарног оружја;
3. Радиолошки хазарди (опасности) настали услед саботаже или напада на нуклеарну установу или транспортно возило;
4. Малициозна употреба радиоактивних извора, укључујући и *dirty bombs* (прљаве бомбе).

Као што се може видети из говора генералног директора *IAEA*, један од ризика је и конструкција прљаве бомбе од стране терориста. Поменуте направе се превасходно могу наћи у три различита облика а то су: Radiological Exposure Device (RED), Radiological Dispersal Device (RDD), Improvised Nuclear Device (IND):

*Radiological Exposure Device* (RED), **Радиолошки експозициони уређај** представља радиоактивни материјал или предмет који садржи радиоактивни материјал (делимично или потпуно незаштићен), а чија је сврха излагање јавности јонизујућем зрачењу без њиховог знања. Поменуто излагање као последицу има одређене детерминистичке и/или стохастичке биолошке ефекте. Степен опасности, а самим тим и скале радиобиолошких ефеката зависиће од врсте и количине радиоактивног материјала, удаљености од направе и наравно времена проведеног у непосредној близини исте. RED се може поставити на велики дијапазон јавних места – испод седишта у јавном транспорту, у прометним јавним пролазима, унутар послужавника хране, итд. Догађај који укључује RED може имати потенцијално веома опасне последице, како по жртве излагања тако и по целокупни систем јавног реда и мира – претерано, непотребно излагање јавности јонизујућем зрачењу, немир и панику јавности, неповерење у владу, привремени губитак инфраструктуре [Apostol,2016; *REMM*,2022; *REDinfo*,2022].

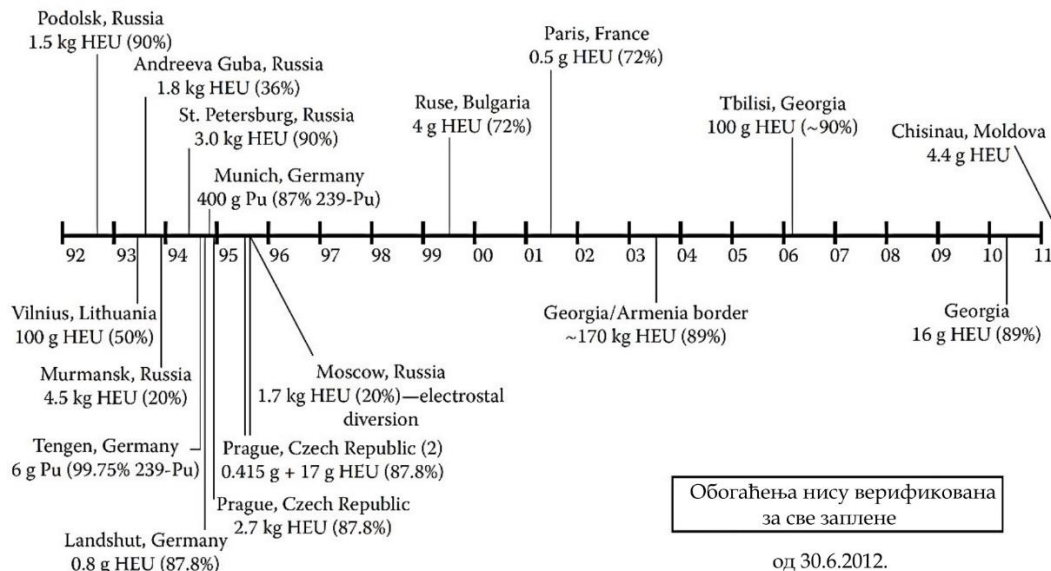
*Radiological Dispersal Device* (RDD), **Радиолошки дисперзивни уређај**, састоји се од високорадиоактивног материјала повезаног са стандардним експлозивом (експлозивном направом). Постоји и варијација RDD код које се уместо експлозива користе друга средства дисиминације попут вентилације. Сврха ове направе је распршивање радионуклида високе активности по ближој околини, али без изазивања саме нуклеарне реакције током експлозије. Напад који укључује употребу RDD до данашњег дана није успешно изведен. Последице хипотетичке експлозије RDD су многобројне, почев од људских – тренутних жртава у виду особа које су биле у блиском окружењу иницијалне експлозије као и накнадних жртава услед последица прекомерног излагања јонизујућем зрачењу, до економских у виду контаминације животне средине, панике и страха међу јавности, трошкова деконтаминације и ремедијације животне средине. RDD представља велику претњу, узимајући у обзир да за конструкцију такве направе уопште није потребан висок ниво знања и

технолошке софистицираности, уколико погодан високоактивни радиоактивни извор постане доступан терористима [Moody et al.,2015; Apostol,2016].

*Improvised Nuclear Device (IND)*, **Импровизовани нуклеарни уређај** је теоријска (хипотетичка) бомба, која је дизајнирана или конструисана ван надлежности званичне владине организације (нуклеарно оружје украдено из постојећег арсенала или складишта одређене земље се такође сматра за импровизовану нуклеарну нараву). IND се састоји од специјалног нуклеарног материјала ("weapons-grade" плутонијум или HEU) и сврха јој је изазивање нуклеарне експлозије. Последице IND су, пре свега, тренутна штета и људске жртве у широком опсегу настале од саме експлозије и значајна радиоактивна контаминација од "fallout"-а (распршивања радионуклида), а потом и немир и паника јавности и остале већ набројане економске последице [Moody et al.,2015; Apostol,2016].

За конструкцију IND потребно пре свега значајно знање из области нуклеарне физике и инжењерства, прецизност израде и технолошка усавршеност на високом нивоу, бројне сигурносне мере земаља које поседују нуклеарни материјал, као и поседовање изузетно скувих и за производњу технолошки захтевних специјалних нуклеарних материјала<sup>6</sup> (приближно 17 kg <sup>235</sup>U или 6 kg <sup>239</sup>Pu ( $\alpha$ -фазе) за конструкцију IND). Имајући наведене чињенице у виду, вероватноћа дешавања терористичког IND напада је веома мала. Наравно, уколико би се извео успешан напад, последице би биле енормне. У случају RDD напада имамо другачију ситуацију, где је вероватноћа за такав напад значајно већа, у поређењу са IND нападом, услед веома распрострањене употребе високоактивних комерцијалних радиоактивних материјала [Moody et al.,2015; Apostol, 2016].

На слици 2.1 је приказан годишњи тренд заплена илегалног нуклеарног материјала у периоду од 1992-2011. године. Штавише, приказани су искључиво специјални нуклеарни материјали који се могу употребити за конструкцију оружја. Број и опис инцидената је у складу са информацијама доступним у IAEA [Moody et al.,2015].



**Слика 2.1.** Заплене специјалних нуклеарних материјала који се могу употребити за конструкцију оружја [Moody et al.,2015].

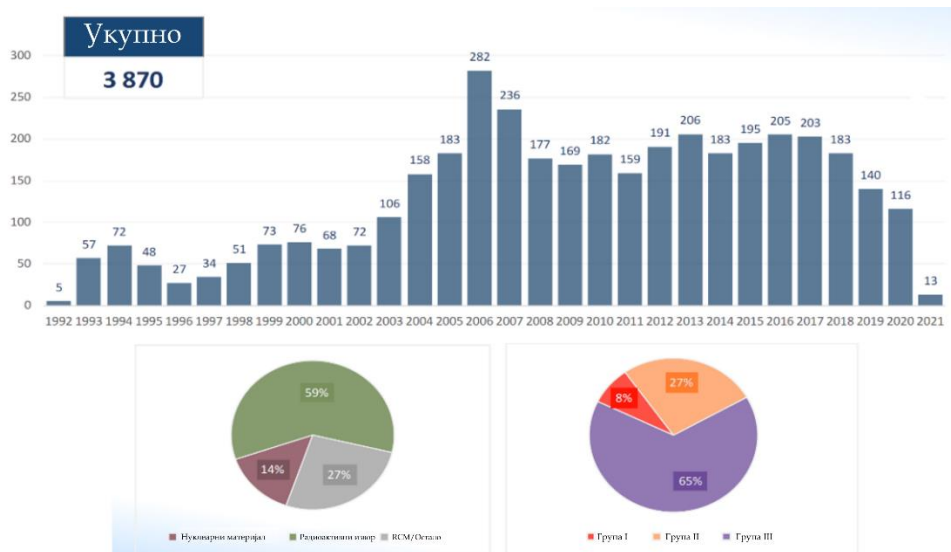
<sup>6</sup> Материјали који су обogaћени изотопима уранијума <sup>233</sup>U, <sup>235</sup>U или садрже било који од изотопа плутонијума <sup>238-242</sup>Pu [Moody et al.,2015].

## 2.6 IAEA База података о инцидентима и недозвољеном транспорту (ITDB)

IAEA База података о инцидентима и трговини (*The IAEA Incident and Trafficking Database (ITDB)*) је део информационог система IAEA који је задужен за складиштење и проток информација о незаконитој трговини, инцидентима и другим облицима недозвољених активности или догађаја који се тичу нуклеарног и другог радиоактивног материјала ван регулаторне контроле. ITDB садржи информације ауторитативног типа, које су пријављене од стране земаља чланица, преко номинованих контакт особа, на добровољној бази. Даље, ове информације се дистрибуирају свим земљама чланицама и другим организацијама од интереса. Закључно са 2021. годином било је 142 земље чланице ове базе података, укључујући и Србију. ITDB је основан 1995. године од стране саме IAEA и земаља чланица. База података о инцидентима и недозвољеном транспорту обухвата све типове нуклеарног материјала, природних и вештачких радиоизотопа или материјала контаминираних истим, као што је, на пример, отпадни метал. Од 2016. године прихваћено је увођење класификације инцидената који су пријављени у три групе: [IAEA ITDB,2022; ITDBfact,2020; ITDBfact,2022]

- Група 1 – Инциденти који јесу, или је велика вероватноћа да јесу повезани са нелегалном трговином и злонамерном употребом.
- Група 2 - Инциденти чија намера није јасно одређена.
- Група 3 - Инциденти који нису, или је мала вероватноћа да јесу повезани са нелегалном трговином и злонамерном употребом.

До 31. децембра 2021. године ITDB је имао укупно **3928** потврђених инцидената, почев од 1993. године. Од тих 3928 потврђених случајева, њих 320 је било у оквиру Групе 1 (која је и најризичнија и превасходно област деловања нуклеарне форензике), 1034 инцидената у оквиру Групе 2 и 2574 инцидената у оквиру Групе 3. У току 2021. године, ITDB-у је пријављено 120 инцидената [ITDBfact,2022]. Са Сlike 2.2 [ITDB,2021] може се приметити опадајући тренд пријављених инцидената у периоду од 2017. године до данас.



Слика 2.2. Укупан број пријављених потврђених инцидената у периоду 1993-2021 [ITDB,2021].

ITDB нам неће пружити нуклеарнофорензичке информације као што су порекло или место губитка нуклеарног или другог радиоактивног материјала (тренутак од ког више није под регулаторном контролом), али може дати информације од значаја за повезивање два случаја и генерално за заступљеност оваквих догађаја.

## 2.7 Библиотека нуклеарне форензике

---

Национална библиотека нуклеарне форензике (*National Nuclear Forensics Library* (NNFL)) представља базу података која служи за идентификацију нуклеарног и другог радиоактивног материјала који се нађу ван регулаторне контроле. У складу са препоруком IAEA, земље чланице треба да развију библиотеке (NNFL) у циљу стварања националног инвентара постојећег нуклеарног и осталог радиоактивног материјала као и стварања базе, путем које се може успоставити међудржавна сарадња и размена осетљивих информација у области нуклеарне безбедности. NNFL се може дефинисати и као 'подршка истрагама у виду информација', која представља организован скуп информација о нуклеарним и радиоактивним материјалима који су произведени, употребљивани или складиштени у оквиру једне земље. Библиотека не представља само базу референтних информација о нуклеарном и другом радиоактивном материјалу већ је подацима придружено и експертско тумачење ових информација и података. Ово знање је од круцијалног значаја, будући да у великом броју случајева само употреба информација које се налазе у базама података (NNFL) није довољна за позитиван исход истраге односно успешну и тачну идентификацију заплењеног материјала, већ је за то потребно и знање експерата који имају претходног искуства у раду са нуклеарним и другим радиоактивним материјалима, како би ове податке препознали или повезали на одговарајући начин, и уз помоћ нуклеарнофорензичких анализа донели исправан закључак. Мишљење експерата из области нуклеарне форензике је стога есенцијално за формулацију нуклеарнофорензичких закључака са високим нивоом поверења [Apostol, 2016; NNFL, 2018].

Иако сам процес и смер развоја NNFL зависи од конкретне државе (постојања било ког вида нуклеарног програма или постројења за производњу изотопа), постоји генерализован приступ за развој исте [Apostol, 2016]:

- Препознати потребу да се развије оваква библиотека и створити услове за њен развој, као што је то Меморандум о разумевању између две институције или владе.
- Идентификовати материјале који постоје у земљи и постојеће податке за инклузију у библиотеку.
- Усагласити које су то релевантне информације које ће ући у NNFL, у договору са експертима из области, регулаторним властима, органима реда и мира, итд.
- Идентификовати и попунити празнине у сетовима података, за шта је неопходна нуклеарнофорензичка експертиза.
- Проценити релевантне нуклеарнофорензичке отиске који су неопходни за компаративну анализу. Овај корак се може реализовати кориштењем искуства од претходних захтева истражних органа власти, будући да се битне карактеристике обично откривају у току процеса истраге.

- Развити алате за компаративну анализу.
- Развити или модификовати базе података уколико за то има потребе.

Од момента када је NNFL успостављена и развијена, морају се разматрати финансијски, бирократски и легални алати за одрживост исте. Ови механизми се могу јавити у различитим облицима, али у сваком случају могу имати користи од укључивања у процес свих компетентних власти и других организација од интереса у области нуклеарнофорензичке анализе. Успешно имплементиран NNFL систем може значајно допринети државним интересима у циљу превенције и одговора на илегалне активности које укључују нуклеарне и остале радиоактивне материјале [Apostol, 2016; NNFL, 2018].

Развој и одржање функционалног система NNFL захтева усаглашено деловање актера из различитих сфера организације владе, индустрије, медицине и наравно академије у виду истраживача и експерата из области нуклеарних дисциплина, што је илустративно приказано на Слици 2.3 [NNFL, 2018].



Слика 2.3. Повезаност и улоге различитих актера у процесу функционисања NNFL [NNFL, 2018].

## 2.8 Модел акционог плана

У случају дешавања инцидента који укључује нуклеарни или други радиоактивни материјал, радње и операције које се требају применити могу бити различите. У циљу оптимизације и стандардизације процедуре која подразумева след операција над заплењеним нуклеарним или радиоактивним материјалом, створен је концепт Модела Акционог плана. На састанку Међународне радне групе за нуклеарну форензику (ITWG) у ИАЕА-и у Бечу, 2000. године усвојен је референтни Модел Акционог плана, који подразумева употребу нуклеарне форензике као алата у својству одговора на незакониту трговину нуклеарним и другим радиоактивним материјалом [IAEA No.2, 2006].

Поред операција као што су одговор на инцидент, нуклеарнофорензичко узорковање и транспорт узорка, нуклеарнофорензичка анализа, традиционалнофорензичка анализа и на крају нуклеарнофорензичка интерпретација и решавање истраге, у моделу акционог плана је такође назначено које функције и на којим положајима у надлежним институцијама и организацијама треба да буду ангажоване у датом тренутку ланца наведених операција [Kristo et al.,2004]. Дакле, Модел акционог плана представља уопштене смернице о начину спровођења нуклеарнофорензичког испитивања и повезаних активности које требају бити реализоване у контексту истраге догађаја нуклеарне безбедности. План покрива активности надлежних власти, које потражују нуклеарнофорензичка испитивања као и лабораторије од којих се може тражити да ураде анализу и дају интерпретацију. Шематски приказ Модела акционог плана, приказан је на слици 2.4. Треба приметити да промена боје позадине представља прелазак са управљања радиолошким местом злочина на нуклеарну форензику [IAEA No. 2-G,2015]. Важно је истаћи да свака држава треба да има свој начелни Национални акциони план, али се свакако од ситуације до ситуације овај план ревидира и прилагођава потребама саме истраге.



Слика 2.4. Приказ Модела акционог плана [IAEA No. 2-G,2015].

У складу са Моделом акционог плана и ITWG, први резултати анализа се очекују у временском оквиру од 24 часа од почетка истраге (заплена и пријема узорка). Резултати овог извештаја би требало да поткрепе запажања са терена као и да дају основу у виду неопходних информација за креирање плана даљих аналитичких активности. 24-часовни извештај садржи информације о физичкој карактеризацији испитиваног материјала у виду величине и облика узорка, боје, физичког облика, топографије површине, обележја (уколико постоје), као и податке о изотопском саставу. Временски оквири за наредне извештаје су недељу дана и 2 месеца [Apostol,2016]. У Табели 2.4 је приказана предложена секвенца лабораторијских анализа за извештаје различитих временских оквира [IAEA No.2,2006; IAEA No. 2-G,2015].



Табела 2.4. Предложена секвенца лабораторијских анализа и метода [IAEA No.2,2006].

Технике/методе	24 часа	1 недеља	2 месеца
<b>Радилошке</b>	Процена укупне активности Брзина дозе ( $\alpha, \beta, \gamma, n$ ) Површинска контаминација Визуелна инспекција Радиографија Фотографија		
<b>Физичке</b>	Мерење масе Мерење димензија Оптичка микроскопија Густина	SEM/EDS  XRD	TEM (EDX)
<b>Традиционално форензичке</b>	Отисци, влакна		
<b>Изотопска анализа</b>	$\gamma$ спектрометрија $\alpha$ спектрометрија	Масена спектрометрија (SIMS, TIMS, ICP-MS)	Радиохемијска сепарација
<b>Елементарне/хемијске</b>		ICP-MS, XRF, IDMS, титрација	GC-MS

IDMS – изотоп-дилутациона масена спектрометрија, GC-MS – гасно хроматографска масена спектрометрија

---

### 3. НУКЛЕАРНИ И ДРУГИ РАДИОАКТИВНИ МАТЕРИЈАЛИ У НУКЛЕАРНОЈ ФОРЕНЗИЦИ

---

Типови материјала који се могу наћи изван регулаторне контроле се најчешће деле у три групе:

1. Нуклеарни материјали (уранијум, плутонијум и други актиниди)
2. Радиоактивни извори (најчешће они који се користе у индустрији, медицини или за научна истраживања)
3. Други радиоактивни материјали (отпадни радиоактивни метал, громобрани...)

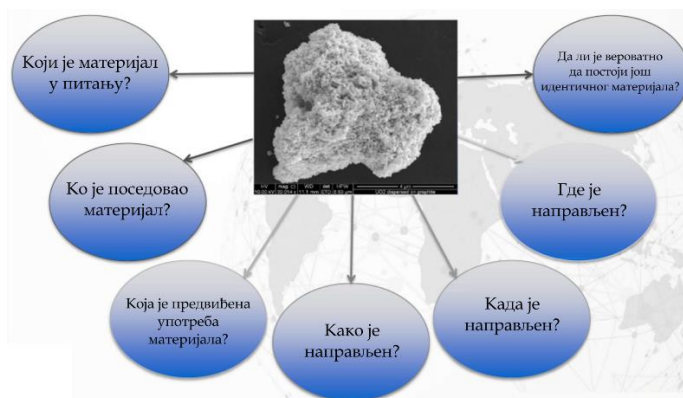
#### 3.1 Форензички отисци

---

Све анализе и процеси који су описани у оквиру карактеризације материјала имају једну сврху, а то је да пруже довољно специфичних карактеристика за испитивани материјал да би се он на недвосмислен начин могао издвојити из групе и идентификовати. Ово је кључно за даље тумачење и доношење закључака. Информације добијене карактеризацијом морају бити довољно прецизне и тачне како би се остварио задати циљ анализа, а то је позитивна идентификација датог материјала. Карактеристика, или вероватније скуп карактеристика које омогућавају идентификацију материјала, називају се нуклеарно-форензички "отисак" (*signature*) [Fedchenko,2015]. У одређеним инстанцама један отисак није довољан како би се успешно могло одговорити питања које поставља истражни тужилац. Нека од најчешћих питања су [IAEA No. 2-G,2015; Apostol, 2016]:

- Да ли је заплењени материјал радиоактиван, ако јесте о каквом типу материјала се ради?
- Које је могуће порекло и старост материјала?
- Који су вероватни начини производње?
- Да ли је приложен доказ (заплењен материјал) војног, индустријског, медицинског, истраживачког или неког другог порекла?
- Да ли се приложени доказ може употребити за производњу "прљаве бомбе"?
- Да ли је приложен доказ део неке веће направе или припада некој већој количини?
- Да ли приложени докази представљају претњу по људско здравље и живот?

Питања постављена од стране истражног тужиоца диктирају обим и сет анализа које ће бити спроведене над заплењеним материјалом односно предметом истраге (слика 3.1).



Слика 3.1. Питања на која се анализа мора одговорити.

Из представљеног сета питања се лако може закључити да један отисак ретко када може бити довољан да пружи одговор на сва или макар већину питања, већ такав отисак може пружити корисне информације о делу историје материјала, и тек у комбинацији са осталим отисцима може пружити јасну слику о испитиваном материјалу и стога дати потпун одговор на горепоменута питања. Примера ради, мерење облика и величине горивног елемента може пружити информације о произвођачу али једино ако се горивни елементи тих димензија производе у само једној установи. Већ ако се жели знати датум производње потребни су нам додатни резултати (отисци). Са друге стране, заплешени материјал може имати и више различитих отисака који упућују на исти део историје материјала или његове карактеристике [Fedchenko,2015].

Нуклеарно-форензичке отиске делимо да две групе: предиктивне и емпиријске (компаративне). Предиктивне отиске добијамо имплементацијом алата за моделовање (базираних на хемијским и физичким карактеристикама), коришћеним у изради нуклеарног оружја и горивног циклуса. Примера ради, уколико су одређене информације о реактору унапред познате, као што су његов мод операције и тип, време озрачивања горива и почетни састав горива, тада се симулационим техникама може добити предвиђен изотопски састав и преостала количина плутонијума у гориву (говори се о реакторима који као горивне елементе користе уранијум). Нуклеарна форензика као научна дисциплина даје првенство емпиријским доказима, док се они предиктивни, односно њихови резултати, углавном користе као "водич" за планирање и извршење анализа и мерења. Ако се деси ситуација да се измерене карактеристике плутонијума поклапају са теоријским предвиђањима добијеним симулационим техникама, тада ово значајно скраћује пут за одређивање порекла материјала. У Табелама 3.1 и 3.2 дати су карактеристични отисци за плутонијум и уранијум респективно [AAAS,2007]. Из Табела 3.1 и 3.2 може се закључити да у случају плутонијума можемо извући више информација из његових отисака, него што је то случај код уранијума.

**Табела 3.1.** Карактеристике које су релевантне за детекцију плутонијума [AAAS,2007].

<b>Врста отиска</b>	<b>Откривене информације</b>
<b>Пораст концентрације изотопа потомака (<math>^{241}\text{Am}</math>, <math>^{235}\text{U}</math>)</b>	Старост материјала (време од последње хемијске сепарације)
<b>Изотопски односи плутонијума</b>	Тип реактора за производњу плутонијума: Обогаћење U у производном реактору Неутронски спектар у производном реактору
<b>Резидуални изотопи</b>	Технике хемијског процесуирања
<b>Концентрације краткоживећих потомака фисионих продуката</b>	Индикатори хемијског приноса
<b>Изотопске заступљености Kг и Хе</b>	Време изливања

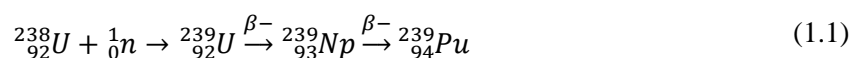
Табела 3.2. Релевантни уранијумски отисци [AAAS,2007].

Врста отиска	Откривене информације
Однос природно заступљених изотопа ( $^{234}\text{U}$ , $^{235}\text{U}$ , $^{238}\text{U}$ )	Сужавање избора локалитета уранијумске руде
Присуство изотопа произведених озрачивањем ( $^{232}\text{U}$ , $^{236}\text{U}$ )	Индикатор репроцесуирања уранијума и може указати на тип коришћеног реактора
Пораст концентracије изотопа потомака ( $^{230}\text{Th}$ , $^{231}\text{Pa}$ )	Датум последње хемијске сепарације
Изотопске заступљености Кг и Хе	Време изливања

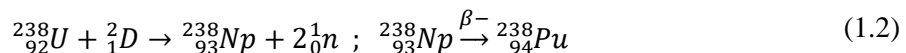
Стабилни изотопи одређених елемената као што су то стронцијум, олово и кисеоник такође могу послужити као извор информација о месту репроцесуирања или производње нуклеарних материјала. Поменути изотопи су познати и као "геолокацијски" индикатори, помоћу којих се може стећи боља слика о томе где је направљен материјал или одакле је ископавана руда/сировина за дати материјал [AAAS,2007].

### 3.2 Плутонијум

Изотопски састав реакторски насталог плутонијума је дефинисан степеном изгарања и типом уранијумског горива од ког је настао, као и историјом управљања и типом реактора. Примера ради, чак и ако два узорка имају исти процентуални удео  $^{239}\text{Pu}$ , њихово порекло и даље може бити различито, на основу измерених вредности других изотопских односа унутар узорка. Плутонијумски изотопски састав је подложен променама које настају услед старости материјала, превасходно као последица распада  $^{241}\text{Pu}$ , који има период полураспада од 14.4 година. Резултујуће нагомилавање  $^{241}\text{Am}$  предстаља веома поуздан индикатор времена протеклог од последње хемијске сепарације [AAAS,2007]. Као што је познато, плутонијум је превасходно синтетички радионуклид (сем трагова у малим количинама који се могу наћи унутар Земљине коре) и као такав настаје у нуклеарним реакторима. Процес настанка најзначајнијег изотопа плутонијума ( $^{239}\text{Pu}$ ) креће када  $^{238}\text{U}$  апсорбује један неутрон и настане  $^{239}\text{U}$ , који се потом распада на  $^{239}\text{Np}$ , где још једним бета распадом  $^{239}\text{Np}$  настаје  $^{239}\text{Pu}$ . Поменути процес је приказан у релацији 1.1 [Kennedy et al.,1946].



На сличан начин настаје и други најзначајнији изотоп плутонијума ( $^{238}\text{Pu}$ ). У овом случају  $^{238}\text{U}$  се бомбардује пројектилима у виду деутеријума, услед чега настају два неутрона и  $^{238}\text{Np}$  који се потом спонтано распада каналима бета распада на  $^{238}\text{Pu}$ . Настанак  $^{238}\text{Pu}$  је приказан у релацији 1.2. Алтернативни начин настанка  $^{238}\text{Pu}$  је путем озрачивања нептунијума ( $^{237}\text{Np}$ ) неутронима [Seaborg et al.,1946].



Остали изотопи плутонијума се превасходно добијају излагањем  $^{239}\text{Pu}$  снопу неутрона. Када је изотопска заступљеност  $^{239}\text{Pu}$  у материјалу  $\sim 93\%$ , тада се он категорише као плутонијум за употребу у оружју ("*weapons-grade*") [US DOE,1997]. Било који тип реактора се може користити за производњу "*weapons-grade*" плутонијума, на тај начин што ће се ограничити изгарање уранијумског горива. Тип реактора који је предодређен наменски за производњу плутонијума назива се "*breeder*"<sup>7</sup> реактор, који је дизајниран на тај начин да производи више фисибилног материјала него што га троши [Moody et al.,2015]. У Табели 3.3 приказане су поделе плутонијума по питању различитих намена на основу процентуалног масеног удела  $^{239}\text{Pu}$  у материјалу [US DOE,1997; Carson et al.,2009]. У Табели 3.4 су приказани главни типови реактора (по земљама), који се користе или су били коришћени са посебном наменом - производња плутонијума [AAAS,2007].

Табела 3.3. Подела плутонијума [Carson et al.,2009; US DOE,1997].

Тип плутонијума	Масени удео $^{239}\text{Pu}$ у материјалу [%]
" <i>Super grade</i> "	98
" <i>Weapons-grade</i> "	93-98
" <i>Fuel-grade</i> "	80-93
" <i>Reactor-grade</i> "	< 80

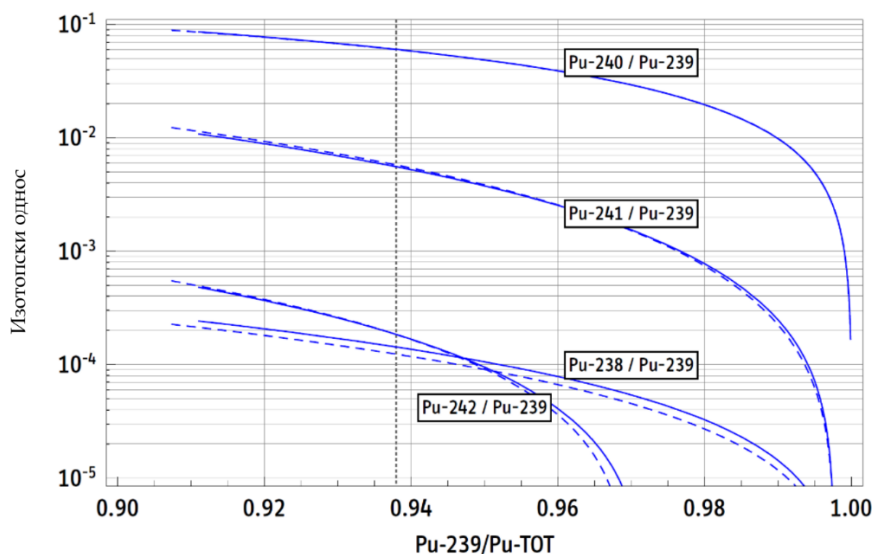
Табела 3.4. Изабрани типови реактора за производњу плутонијума [AAAS,2007].

Модератор Хлађење	Графит		Тешка вода		Погонско гориво са спољашњим DEU метама
	H <sub>2</sub> O	CO <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O	D <sub>2</sub> O	
Главни примери	<i>Hanford</i>	<i>Calder Hall</i>	<i>Cirus (NRX)</i>	<i>Dimona</i>	<i>Savannah River</i>
Сједињене Америчке Државе	X				X
Русија	X				
Велика Британија		X			
Француска		X			X
Кина	X				
Израел				X	
Индија			X	X	
Пакистан			X		
Северна Кореја		X			

<sup>7</sup> Тип нуклеарног реактора који производи више фисибилног материјала него што потроши [Waltar, Reynolds,1981].

Производња плутонијума је највећа у реакторима који користе природни уранијум као гориво. Овај тип реактора није у могућности да користи обичну воду као модератор неутрона (услед паразитске апсорпције неутрона од стране језгара водоника), већ се у те сврхе користи или угњеник или тешка вода. Као што видимо из Табеле 3.4, графитно модерирани реактори се користе у земљама потписницама Уговора о непролиферацији. Реактори који користе лаку воду за хлађење на локалитетима у Русији и Кини, су по дизајну идентични оним који су изграђени на територији САД на локалитету *Hanford*, који су представници старог дизајна графитно модерираних реактора са воденим хлађењем. Француска и САД су конструисали такође и реакторе који користе тешку воду као расхладни медијум, а као гориво користе обогаћени уранијум са метама од осиромашеног уранијума (*depleted uranium*- DEU). Реактори модерирани тешком водом су направљени у Индији, Пакистану и Израелу. NRX тип реактора је првенствено био развијен у Канади али се та технологија потом имплементирала у циљу производње плутонијума за војне сврхе у Пакистану и Индији. NRX реактори за гориво користе природни уранијум, модератор у њима је тешка вода, а језгро реактора се хлади лаком (обичном) водом. "*Calder-Hall*" тип реактора је такође графитно модериран али се у овој инстанци као расхладно средство користи гас, превасходно угљен-диоксид (CO<sub>2</sub>). Ова технологија је нашла своју примену на реакторима изграђеним у Великој Британији и, скорије, Северној Кореји [AAAS,2007].

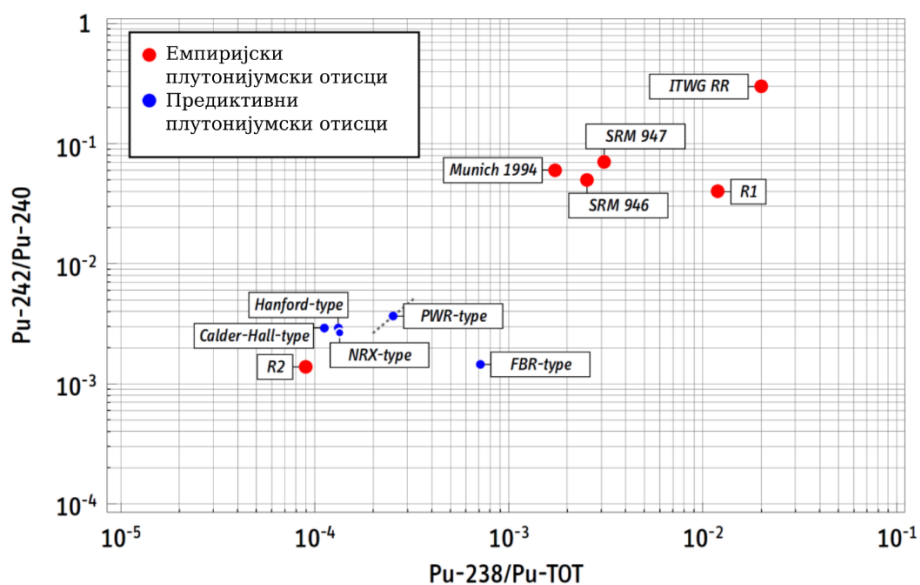
Једна од глобално најважнијих анализа у нуклеарној форензици је процес одређивања различитих односа плутонијумских изотопа из *breeder* реактора. Одрађена је анализа промене односа плутонијумских изотопа са степеном изгарања горива, уз имплементацију софтверских кодова ORIGEN2, MCNP и MCODE. На Слици 3.2 су приказани резултати поменутих анализа који показују велик степен поклапања и сличности изотопског састава међу узорцима из различитих реакторских типова и степена изгарања (што је веће изгарање, мањи је удео <sup>239</sup>Pu у материјалу).



**Слика 3.2.** Изотопски односи различитих изотопа плутонијума као функција удела <sup>239</sup>Pu [AAAS,2007].

Са пуном линијом је представљен плутонијум из "*Hanford*" типа реактора док је са испрекиданом линијом обележен плутонијум из "*Calder Hall*" типа реактора. Оно што се може закључити са слике 3.2 је да су изотопски односи чак и на већим степенима изгарања веома блиски, односно да се на

основу овог типа анализе не може донети јасан закључак о пореклу материјала. Како би то било изводљиво, постоји могућност да се уради другачији тип анализе, приказан на Слици 3.3 [AAAS,2007; Mayer et al.,2005].



Слика 3.3. Изотопски односи одређених плутонијумских састава [AAAS,2007; Mayer et al.,2005].

(ITWG RR- узорак плутонијума за интеркомпарацијску вежбу, SRM 947 и SRM 946 представљају плутонијумске стандардне референтне материјале, R1 и R2 два узорка руског порекла, наводно произведени реактору за тестирање материјала и RBMK реактору, Munich 1994 – узорак заплешен на Минхенском аеродрому)

На слици 3.3 црвеним тачкама су означени подаци добијени од стварних узорака плутонијума (емпиријски отисци) док су плавом бојом означене тачке које су добијене софтверским неутронским прорачунима (предиктивни отисци). Како би анализа била што валиднија, одабрани су узорци који имају идентичан референтни масени удео  $^{239}\text{Pu}$  од 93.8%. Приказана је корелација за два карактеристична изотопска односа ( $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$  и  $^{238}\text{Pu}/^{\text{TOT}}\text{Pu}$ ) који уједно представљају и веома специфичне комбинације нуклеарнофорензичких отисака. Однос  $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$  је показатељ изложености или изгарања док је однос  $^{238}\text{Pu}/^{\text{TOT}}\text{Pu}$  индикатор за "тврдоћу" неутронског спектра. Приказани подаци су добијени помоћу масене спектрометрије. Са слике се може закључити да се на основу овог типа анализе може извршити јасно разликовање између одређених узорака, што представља велики корак ка одређивању порекла датог материјала. Видимо да различити узорци имају јасно дефинисане вредности изотопских односа плутонијума, што се у форензичкој истрази може веома добро искористити за идентификацију заплешеног материјала. Подаци указују на то да се са високим степеном сигурности може извршити разликовање "weapons-grade" узорака плутонијума који су добијени из различитих основних типова реактора. Под овим се подразумевају реактори који користе природни уранијум као гориво, "fast-breeder" реактори и реактори који користе обичну воду за хлађење и осиромашен уранијум за гориво. Са друге стране, одређени изотопски састави као што су то они добијени из "Hanford" и "NRX" типова реактора, се јако тешко могу разликовати. Такође може се закључити да у овом случају нуклеарно-форензичка анализа која се базира на емпиријским отисцима даје много више закључака од оне базиране строго на

предиктивним доказима. Наравно у неким ситуацијама је приступ правим доказима веома ограничен, те су анализе базиране на предиктивним отисцима једини извор информација [AAAS,2007].

### 3.3 Уранијум

Уранијум као елемент представља почетну тачку како за сопствено изотопско обогаћивање тако и за производњу плутонијума унутар реактора. Уранијумске отиске можемо сврстати у три најрелевантније групе: историјат материјала коришћеног у процесу обогаћивања (разлика између репроцесуираног и природног уранијума), врсте технологија имплементираних при процесу производње "weapons-grade" уранијума и варијације у изотопском саставу првобитне уранијумске руде. Уранијум је природни елемент из групе актинида, и може се наћи унутар Земљине коре у концентрацији од 3 ppm ("parts per million" – део у милион). У саставу природног уранијума налазе се три изотопа (у значајним концентрацијама), а то су  $^{234}\text{U}$  (0.0054 % заступљености),  $^{235}\text{U}$  (0.72 % заступљености) и  $^{238}\text{U}$  (99.27 % заступљености) [Ebaid,2009; AAAS,2007].

#### Разлике у процесу обогаћења репроцесуираног и природног уранијума

Услед деликатности материје, земље које поседују нуклеарно наоружање, превасходно примењују двостепени приступ када је у питању производња фисибилног материјала. Први корак подразумева употребу уранијума у *breeder* реакторима за плутонијум, где се  $^{235}\text{U}$  само делимично осиромашује са 0.7% до 0.6% масеног удела у материјалу. Из изгараног горива се потом екстрахују уранијум и плутонијум, а репроцесуирани уранијум се користи даље као сировина за производњу високо обогаћеног уранијума (HEU). Овим поступком се осигурава константна производња нуклеарног материјала чак и ако је сировина (уранијумска руда) у оскудици [AAAS,2007].

Карактеристични отисак да је уранијум у материјалу био репроцесуиран (претходно озрачиван) је присуство његових изотопа који се не јављају у природи као  $^{236}\text{U}$  и  $^{232}\text{U}$ . Концентрација  $^{232}\text{U}$  изотопа у репроцесуираном уранијуму је такође веома корелисана са фактором који није повезан за озрачивањем у реактору а то је време мировања, односно временски период између процеса пурификације (пречишћавања) природног уранијума и процеса озрачивања унутар реактора како би настао плутонијум. Унутар овог временског интервала се део  $^{235}\text{U}$  распада преко краткоживећег изотопа торијума  $^{231}\text{Th}$  у паладијум  $^{231}\text{Pa}$ . Поменути  $^{231}\text{Pa}$  када је изложен високом флуксу неутрона (унутар реактора) доживљава захват неутрона и претвара се у језгро  $^{232}\text{Pa}$ , које се у кратком временском периоду распада на  $^{232}\text{U}$ . Овај процес је веома значајан, будући да се тиме много повећава количина нагомиланог  $^{232}\text{U}$  по озрачивању горива од природног уранијума. Дакле, по присуству и количини вештачких изотопа уранијума  $^{236}\text{U}$  и  $^{232}\text{U}$  можемо утврдити да ли је материјал био претходно озрачиван или не, као и колико је времена протекло од момента производње до озрачивања, што је веома корисна информација која се може искористити у нуклеарно-форензичкој анализи и као таква дефинитивно представља веома карактеристичан отисак уранијума [AAAS,2007].

У Табели 1.10 приказани су изотопски састави уранијумског материјала за два различита типа реактора - "Hanford" тип графитно модерираних реактора и "NRX" тип реактора који као модератор користи тешку воду. У циљу наглашавања разлика, у прорачуну је претпостављено да Hanford тип ради при мањој густини снаге од  $20 \text{ W}\cdot\text{cm}^3$  док је за "NRX" тип узето да ради са густином снаге од  $80 \text{ W}\cdot\text{cm}^3$ . У оба примера, садржај  $^{236}\text{U}$  у репроцесуираном уранијуму износи 3% садржаја  $^{235}\text{U}$



односно 0.02% укупног уранијума у материјалу. Оно што је значајна разлика у два наведена примера односно материјала је управо садржај  $^{232}\text{U}$ . Он је већи у материјалу из "Hanford" типа реактора будући да се гориво у овом случају дуже озрачује при мањој густини снаге што резултује већим временом излагања, које, последично, даје више времена  $^{235}\text{U}$  да се услед озрачивања (преко  $^{231}\text{Pa}$  и  $^{232}\text{Pa}$ ) распадне на  $^{232}\text{U}$ . Ово резултује већим нагомилавањем поменутог  $^{232}\text{U}$  код "Hanford" типа реактора [AAAS,2007].

**Табела 3.5.** Атомски удели уранијума из производног реактора на циљаном степену изгарања[AAAS,2007].

Изотоп	Hanford тип [% $^{235}\text{U}$ ]	NRX тип [% $^{235}\text{U}$ ]	Однос
$^{232}\text{U}$	$2.03 \cdot 10^{-12}$	$1.20 \cdot 10^{-12}$	1.684
$^{233}\text{U}$	$3.58 \cdot 10^{-11}$	$3.77 \cdot 10^{-11}$	0.949
$^{234}\text{U}$	$5.29 \cdot 10^{-5}$	$5.29 \cdot 10^{-5}$	1.000
$^{235}\text{U}$	$6.01 \cdot 10^{-3}$	$5.90 \cdot 10^{-3}$	1.019
$^{236}\text{U}$	$1.86 \cdot 10^{-4}$	$1.99 \cdot 10^{-4}$	0.932
$^{238}\text{U}$	$9.94 \cdot 10^{-12}$	$9.94 \cdot 10^{-12}$	1.000

\*За време протекло од последње пурификације до почетка озрачивања је узета једна година, што је еквивалентно почетном уделу  $^{231}\text{Pa}$  од 1 ppm  $^{235}\text{U}$ .

Материјали описани у Табели 3.5 се по озрачивању могу користити као полазни материјали у сврхе производње нуклеарног наоружања. Ради прорачуна, узет је норматив који налаже да ће ови материјали добијени од материјала описаних у Табели 3.5, имати номинално обогаћење уранијумом  $^{235}\text{U}$  од 93 % (HEU материјал). Резултати приказани у Табели 3.6 добијени су уз помоћ софтвера MSTAR-IAEA Enrichment Code, који служи за моделовање мултиизотопског обогаћивања и користи приступ упареног односа изотопске заступљености. Више о самом коду и начину рада овог софтвера може се видети у [Starr,1996]. Добијени резултати су најподобнији за процес изотопског обогаћивања гасне дифузије. Посматрајући Табелу 3.6 може се приметити да су уранијумски отисци који су били присутни у материјалу пре процеса изотопског обогаћења присутни и после истог, што представља значајну чињеницу у поступку евалуације валидности изабраних отисака у процесу нуклеарно-форензичке анализе (наравно, подразумевајући да су информације о детаљима везаним за историју и производњу заплењеног материјала познати). У поменутој табели су такође присутни подаци и о HEU материјалу добијеном од природног уранијума (нерепроцесуираног) [AAAS,2007].

**Табела 3.6** – Атомски удели "weapons-grade" уранијума добијеног од природног и репроцесуираног уранијума [AAAS,2007].

Изотоп	Чист HEU [% <sup>201</sup> U]	Изотоп	Hanford тип [% <sup>201</sup> U]	NRX тип [% <sup>201</sup> U]	Однос
<sup>232</sup> U	-	<sup>232</sup> U	$5.48 \cdot 10^{-8}$	$3.34 \cdot 10^{-8}$	1.643
<sup>233</sup> U	-	<sup>233</sup> U	$8.86 \cdot 10^{-7}$	$9.58 \cdot 10^{-7}$	0.925
<sup>234</sup> U	0.93	<sup>234</sup> U	1.12	1.15	0.977
<sup>235</sup> U	93.00	<sup>235</sup> U	93.00	93.00	1.000
<sup>236</sup> U	-	<sup>236</sup> U	1.26	1.36	0.923
<sup>238</sup> U	6.07	<sup>238</sup> U	4.62	4.49	1.029

\*Циљано обогаћење је 93 % <sup>235</sup>U. Резултати су базирани на MSTAR калкулацијама

### Уранијумски отисци при различитим процесима изотопског обогаћења

У сврхе производње нуклеарног наоружања, високо обогаћен уранијум се може добити различитим технолошким процесима. Највише заступљени су процес гасне центрифуге и процес гасне дифузије. Поменуте методе имплементирају потпуно различите физичке процесе за изотопску масену сепарацију. За разлику од случаја са различитим пореклом материјала где се уочава јасан отисак при анализи материјала, различити индустријски процеси, у већини случајева, не остављају видљив отисак. Иако се апсолутна вредност сепарационих фактора, односно број етапа при производњи "weapons-grade" уранијума веома разликују за два поменута индустријска процеса, концентрације изотопа <sup>232</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>236</sup>U који се могу наћи у траговима у материјалу (а које чине отисак) се практично не разликују. Ово је последица међуфазног мешања ових изотопа у процесу оптимизованом за обогаћење изотопом <sup>235</sup>U. Услед тога, било који потенцијално отисак је на овај начин избрисан [AAAS,2007].

### Варијације у изотопском саставу природног уранијума

Као што је већ наведено, само се изотопи <sup>234</sup>U, <sup>235</sup>U и <sup>238</sup>U јављају природно у значајним концентрацијама. Наравно, постоје варијације у изотопском саставу у уранијумској руди зависно од места са ког је екстрахована, а последица су природних нуклеарних реакција, антропогеног утицаја и изотопске фракционације [Richter et al.,1999]. Постоји иницијатива да се карактерише што већи број руда природног уранијума широм света, како би постојала могућност идентификације порекла пресретнутих или заплених уранијумских узорака. <sup>234</sup>U се упркос неколико редова величине мањем периоду полураспада у односу на <sup>238</sup>U ( $2.3 \cdot 10^5$  и  $4.5 \cdot 10^9$  година, респективно) јавља у природном уранијуму. Ово је последица распада <sup>238</sup>U на <sup>234</sup>Th који се преко <sup>234m</sup>Pa брзо распада на <sup>234</sup>U. Равнотежна концентрација <sup>234</sup>U у природном уранијуму од 0.0055% одређена је односом периода полураспада <sup>234</sup>U и <sup>238</sup>U али у одређеној мери и одређеним хемијским и геолошким процесима унутар стена. Оно што је битно за нуклеарну форензику су само варијације <sup>234</sup>U, које су генерално реда  $\pm 10\%$  [AAAS,2007].

### 3.4 Радиоактивни извори

Материјали који се могу појавити као узорци, односно предмети истраге у нуклеарној форензици јесу и радиоактивни извори. Једна од основних подела радиоактивних извора је на затворене односно енкапсулиране и отворене.

- **Затворени радиоактивни извори** представљају тип радиоактивног извора који је енкапсулиран у неки вид чврстог материјала, најчешће метал, али може бити и у керамици или пластици. Намена поменуте енкапсулације је да одржи радиоактивни материјал на месту, недозвољавајући његово ширење или дислоцирање, чиме се спречава и пренос контаминације, док у истом моменту пропушта радиоактивно зрачење. Затворени извори су дизајнирани на такав начин да и по неповољним условима, као што су грубо руковање или излагање повишеним температурама, одрже свој интегритет, при чему не ослобађају радиоактивни материјал садржан у њима. Овај тип извора не представља контаминацијски ризик под нормалним условима, будући да је сам радиоактивни материјал енкапсулиран или нанесен и усендвичен између две површине. Са друге стране, услед непрописног руковања, затворени извори свакако могу представљати радијациони hazard.
- **Отворени радиоактивни извори** представљају тип радиоактивног извора који није енкапсулиран. Могу се јавити у форми течности, праха а у неким случајевима и у гасовитом облику, који у себи садрже радиоактивни материјал. Као такви представљају велики контаминацијски ризик будући да се лако могу просути или распршити у околину (животну средину) услед непрописне употребе и складиштења. Да би се ризик што је могуће више смањио, морају се чувати у затвореним посудама, изолованим подручјима или дигесторима како би се предупредило просипање, цурење или испаравање. Са друге стране, отворени извори имају разноврсне примене и могу бити коришћени у различитим експериментима али се њима мора руковати са посебним опрезом. Могу се лако разблаживати, мешати, одвајати или чак модификовати како би одговарали различитим потребама и циљевима.

Радиоактивни извори се користе у медицинске, истраживачке, индустријске па чак и војне сврхе. Било који радиоактивни извор који се не налази под регулаторном контролом било зато што никада није био под регулаторном контролом или зато што је био изгубљен, напуштен, украден или на било који други начин премештен без одговарајуће ауторизације, назива се "*orphan*" извор. Ови извори су довели до несрећа са тешким па чак и фаталним последицама које су биле резултат излагања појединаца радиоактивном зрачењу углавном из незнања или недовољне свести са чиме се рукује. *Orphan* извори се често могу затећи у отпадном металу. Топљењем овог метала заједно са *orphan* изворима, добија се високо радиоактивно-контаминирани рециклирани метал или отпад, што само по себи представља огроман радиолошки hazard за животну средину [IAEA SS,2012].

*Orphan* извори заједно са другим радиоактивним материјалом који су ван регулаторне контроле представљају *MORC*<sup>8</sup> материјале. У ненулеарним земљама, као што је Србија, *MORC* материјали који се могу наћи на терену су првенствено медицински и индустријски радиоизотопи, детаљније декларисани у Табели 1.2. Као такви, они често могу бити предмет криминалне истраге.

<sup>8</sup> MORC – Materials Out of Regulatory Control

У пракси затворени медицински или индустријски извори су уграђени у уређај који је дизајниран на тај начин да или дозвољава радиоактивном извору да се безбедно помери ван заштите уређаја на место где се сноп зрачења користи и затим поновно врати унутар заштите самог уређаја после употребе, или ослобађа сноп зрачења из уређаја уз очување заштите око самог извора током целог поступка. Неке од примена снопа зрачења оваквих извора су следеће: недеструктивно испитивање квалитета вара код металних цеви, испитивање нивоа течности у одређеном суду који се налази на покретној траци (прехрамбена индустрија), телетерапијско озрачивање онколошких пацијената и многе друге. Сам уређај у ком су смештени радиоактивни извори може се јављати у широком опсегу дизајна, зависно од функције и примене коју ће имати. Димензије ових уређаја ће варирати од величине од само неколико центиметара (елиминатори статичког наелектрисања) до преко једног метра (стари  $^{60}\text{Co}$  телетерапијски уређаји, ирадијатори) [IAEA SRS,2013].

Радиоактивни извори се у складу са [IAEA SS,2012], деле на пет категорија, зависно од степена претње коју представљају уколико се њима погрешно рукује.

- **Категорија 1 (екстремно опасни)** – Ови извори, уколико се њима не рукује на поуздан начин или нису довољно заштићени, са великом вероватноћом могу изазвати трајне повреде на било којој особи која је у контакту са њима дуже од неколико минута. Дужи периоди излагања имали би фаталан исход. Типични представници ове категорије су радио-термоелектрични генератори, телетерапијски извори и индустријски ирадијатори.
- **Категорија 2 (веома опасни)** - Ови извори, уколико се њима не рукује на поуздан начин или нису довољно заштићени, могу изазвати трајне повреде на било којој особи која је у контакту са њима кратак временски период (неколико минута до неколико сати). Излагање изворима ове категорије дуже од неколико сати може бити фатално. Примери извора који спадају у ову категорију су они који се користе у индустријској радиографији и брахитерапијски извори велике и средње брзине дозе.
- **Категорија 3 (опасни)** - Ови извори, уколико се њима не рукује на поуздан начин или нису довољно заштићени, могу изазвати трајне повреде на било којој особи која је у контакту са њима дуже од неколико сати. Излагање под одређеним условима (неколико дана до неколико недеља) може бити фатално али је мало вероватно. Извори који спадају у ову категорију су они који се користе у стационарним индустријским мерачима, као што су мерачи нивоа течности, мерачи густине, притиска као и уређаји који се користе у евалуацији састава слојева у бушотинама.
- **Категорија 4 (мало вероватно да буду опасни)** – Мало је вероватно да неко може имати трајне повреде услед излагања изворима ове категорије. Међутим, већа незаштићена количина овог радиоактивног материјала, може уз малу вероватноћу, да изазове привремене повреде на особи која је у контакту са њима дужи временски период.
- **Категорија 5 (углавном безопасни)** – Не постоји никакав ризик од трајних повреда услед било каквог излагања изворима ове категорије.

Тачне активности извора који спадају у категорију 1, 2 и 3 могу се наћи у [IAEA CRS,2005].

---

## 4. ЕКСПЕРИМЕНТАЛНЕ МЕТОДЕ И ТЕХНИКЕ

---

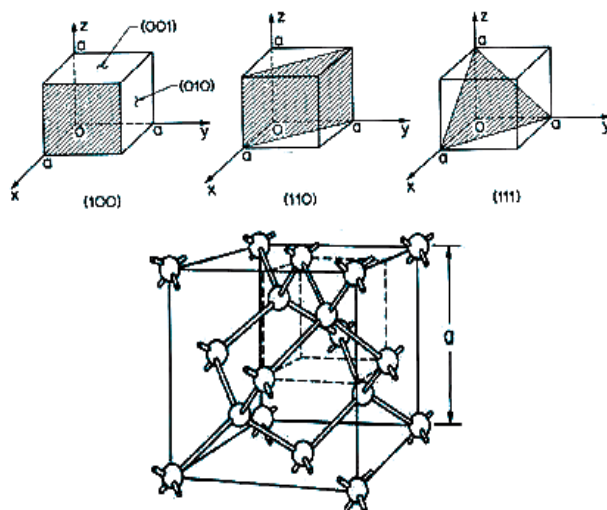
Циљ ове тезе је развој иновативних недеструктивних метода за потребе анализе нуклеарног и другог радиоактивног материјала, наравно ослањајући се на постојећу и добро установљену методолошку инфраструктуру. У домену нуклеарне форензике као научно-истраживачке дисциплине, када је у питању недеструктивна анализа, први избор увек пада на гамаспектрометрију. Када су у питању мерења која изискују добру енергетску резолуцију, најчешће се као алат користе полупроводнички детектори.

### 4.1 Полупроводнички детектори

---

У нуклеарној физици веома је распрострањена употреба полупроводничких материјала као детектора зрачења. У оквиру ове тезе, експериментална мерења су вршена на германијумским полупроводничким детекторима високе чистоће (High Purity Germanium - HPGe), те ће у овом поглављу фокус бити стављен на њих. Могу се производити у више геометрија, али две значајније су планарна и коаксијална конфигурација. Баш та два типа HPGe детектора и налазе своју примену у нуклеарној форензици, као алати за недеструктивну гамаспектрометријску анализу нуклеарних и других радиоактивних материјала. Један од разлога због којих се HPGe детектори користе за лабораторијске недеструктивне анализе је њихова ненадмашива енергетска резолуција у односу на друге типове детектора зрачења. Главни фактор који одређује енергетску резолуцију детектора чврстог стања је статистика, односно број носилаца информације-наелектрисања (у овом случају парова електрон-шупљина) који настаје по проласку упадног зрачења кроз медијум кристала детектора. Овај број је управо највећи код HPGe детектора, што резултује енергетском резолуцијом на завидном нивоу. Она је од кључног значаја за успешно извлачење корисних информација из мерених спектра нуклеарних и осталих радиоактивних материјала [Knoll,2010].

За потребе гамаспектрометрије, германијум (Ge) се највише користи као материјал за израду полупроводничких детектора. За то постоји пар разлога, пре свега има већи редни број ( $Z=32$ ) од свог главног 'конкурента' силицијума, што га чини ефикаснијим у заустављању гама зрачења већих енергија услед већег масеног атенуационог коефицијента. Посматрајући монокристале германијума, област просторног наелектрисања мора бити и даље релативно велика како би у потпуности зауставила гама зраке ( $\sim 25$  mm за зрачење енергије 662 keV-a). Германијум је металоид који спада у IV-а групу периодног система елемената и има површински центрирану кубну (дијамантску) структуру кристалне решетке. Шематски приказ ове решетке дат је на слици 4.1 [Dobson,2005], док су основне физичке карактеристике германијума приказане у Табели 4.1 [NSM,2001].



Слика 4.1. Равни кристалне решетке германијума приказане помоћу *Miller*-ових индекса и површински центрирана кубна кристална решетка [Dobson,2005].

Табела 4.1. Физичка својства германијума [NSM,2001].

Карактеристика	Вредност
Атомска маса	72.6
Атомски број	32
Атомски радијус	0.137 nm
Густина	$5.32 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$
Електронска конфигурација	$(3d)^{10}(4s)^2(4p)^2$
Диелектрична константа $\epsilon_r$	16.2
Концентрација интринсичних носилаца наелектрисања (300 K)	$2.0 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$
Интринсична отпорност	$46 \Omega \cdot \text{cm}$
Енергетски процеп (300 K/0 K)	0.67 eV/0.75 eV
Енергија јонизације (77 K)	2.96 eV
Покретљивост електрона (300 K)	$3900 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
Покретљивост шупљина	$1900 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$

Да би неки детектор био употребљив и функционалан за гама спектрометрију, одређена дебљина његове активне запремине односно слоја просторног (везаног) наелектрисања мора бити постигнута, како би тај детектор био способан да ефикасно атенуира гама зраке. Дебљина овог слоја дефинисана је релацијом 4.1:

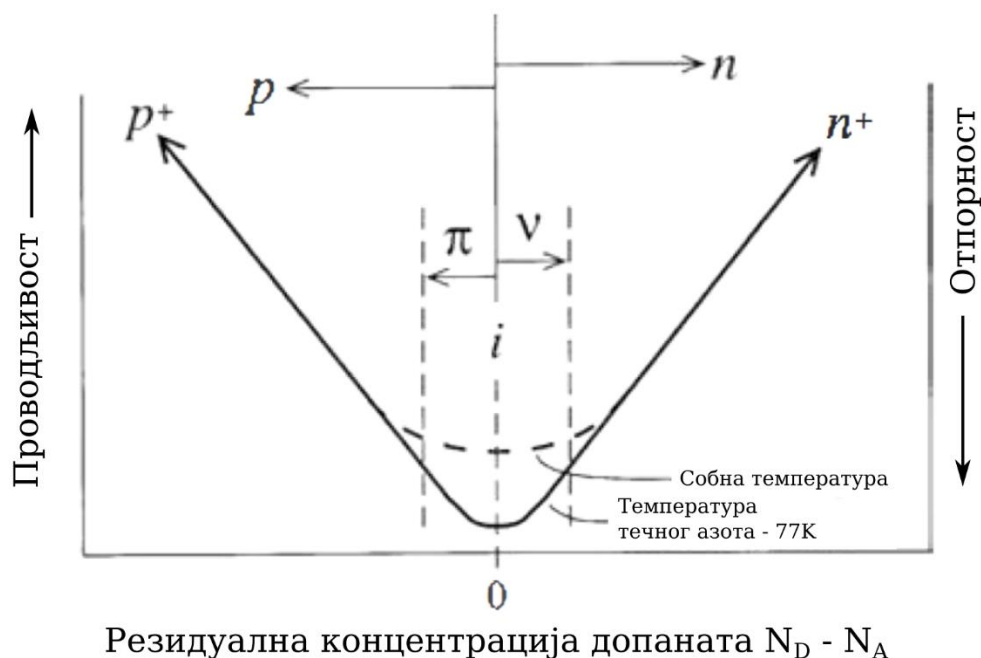
$$d = \left( \frac{2\epsilon V}{eN} \right)^{1/2} \quad (4.1)$$

, где је  $\epsilon$  диелектрична константа материјала,  $V$  представља инверзни 'биас' напон,  $e$  је елементарно наелектрисање, док је  $N$  нето концентрација нечистоћа у материјалу. Приметићемо да се на одређеном задатом напону  $V$ , повећање дебљине слоја просторног наелектрисања може постићи искључиво смањењем концентрације нечистоћа унутар кристала  $N$ . Што је дебљина  $d$  већа, материјал ће служити као ефикаснији детектор зрачења. Смањење концентрације нечистоћа се, у принципу, може постићи на два начина. Један је имплементација технолошких индустријских процеса који имају могућност да произведу практично чист германијум са концентрацијом нечистоћа од  $10^{10}$  атома/ $\text{cm}^3$ . У складу са релацијом 4.1, узимајући у обзир наведену концентрацију нечистоћа и при напону не већем од 1000 V, могу се постићи дебљине слоја просторног наелектрисања од 10 mm. Детектори који су произведени на овакав начин називају се интринсични германијумски или германијумски детектори високе чистоће (*High Purity Germanium*–HPGe detectors). Други начин је стварање материјала у коме су присутне нечистоће избалансиране допантним атомима супротног типа у односу на већ постојеће нечистоће. Овај процес је у случају германијумских детектора добио име "*lithium ion drifting*" (процес дрефта јона литијума). Детектори који се производе на овакав начин називају се Ge(Li) детектори. Ge(Li) детектори су комерцијално присутни од 1960тих година, све до почетка 1980тих када се технологија довољно усавршила да би их наследили HPGe детектори. Главна предност HPGe детектора у односу на Ge(Li) је та да су они могли бити безбедно "загрејани" на собну температуру у периодима када нису коришћени, за разлику од Ge(Li) детектора који су, да би остали функционални, морали бити одржавани на температури течног азота, што их чини знатно више "*user friendly*" односно лакшим за употребу. Треба нагласити да су перформансе и операционе карактеристике за Ge(Li) и HPGe детекторе идентичне величине кристала практично једнаке. Под тиме се подразумева да су величине као што су одзив, висина и облик излазног сигнала, ефикасност детекције и многе друге, за два наведена типа детектора веома сличне или пак, потпуно једнаке [Knoll,2010].

#### 4.1.1 Производања HPGe детектора

Још 1970-тих година почеле су са развојем технологије које су биле у могућности да произведу германијум изузетно високе чистоће, са концентрацијом нечистоћа од свега  $10^{10}$  атома/ $\text{cm}^3$ . Почетна "сировина" за овај процес био је германијум који се и до тада употребљавао за производњу полупроводничких детектора. Техника зонског рафинисања је коришћена како би се овај полазни материјал даље процесуирао. Имплементацијом ове технике се количина присутних нечистоћа прогресивно смањује, а то се постиже локализованим загревањем узорка, и постепеним премештањем загрејаног подручја са једног на други крај истог. Имајући у виду да су нечистоће растворљивије у истопљеном него у чврстом германијуму, на овај начин се оне преферентно вежу за истопљену зону, и на тај начин бивају уклоњене из узорка. Након многоструких итерација овог

поступка, може се добити узорак који у себи садржи концентрацију нечистоћа од свега  $10^9$  атома/ $\text{cm}^3$ . Материјал који је добијен на овај начин је један од најпречишћенијих који су икада направљени. Потом се, из овако пречишћене базе, могу производити релативно велики монокристали германијума који се потом користе за производњу HPGe детектора. Уколико су преостале нечистоће у кристалу n-типа или донорске (нпр. P, As или Sb), добијен монокристал ће бити "благог n-типа" (често се као ознака за високо чисти германијум n-типа користи v-тип). Са друге стране, уколико су резидуалне нечистоће у рафинисаном германијуму акцепторског или p типа (нпр. Al, Ga или In), добијамо монокристал "благог p-типа" (π-тип). На слици 4.2 је приказана зависност електричне проводљивости германијума од резидуалне концентрације допаната (акцепторског или донопрског типа). У пракси је ситуација таква да се германијумски детектори производе тако да је у њима резидуална концентрација допаната веома мала а самим тим и проводљивост ниска [Knoll, 2010].

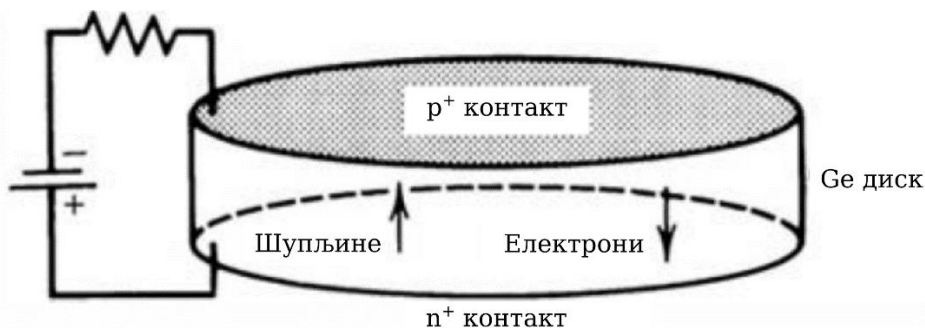


**Слика 4.2.** Промена електричне проводљивости у германијуму као функција резидуалне концентрације допаната. Идеално интринсични материјал налази се на нултој тачки на апсциси [Knoll, 2010].

#### 4.1.2 Планарни тип детектора

Уколико је за потребе анализе одређеног материјала неопходна висока енергетска резолуција на 'ниским' енергијама (што и јесте случај са нуклеарним материјалима, будући да спектри оваквих материјала имају велики број блиско позиционираних фотопикова у нискоенергетском опсегу) избор за мерну опрему односно детектор пада на планарни тип HPGe детектора. Пример конфигурације једног таквог планарног HPGe π-типа детектора дат је на слици 4.3. Када посматрамо планарну конфигурацију, електрични контакти су реализовани на две равне површине германијумског диска [Knoll, 2010].





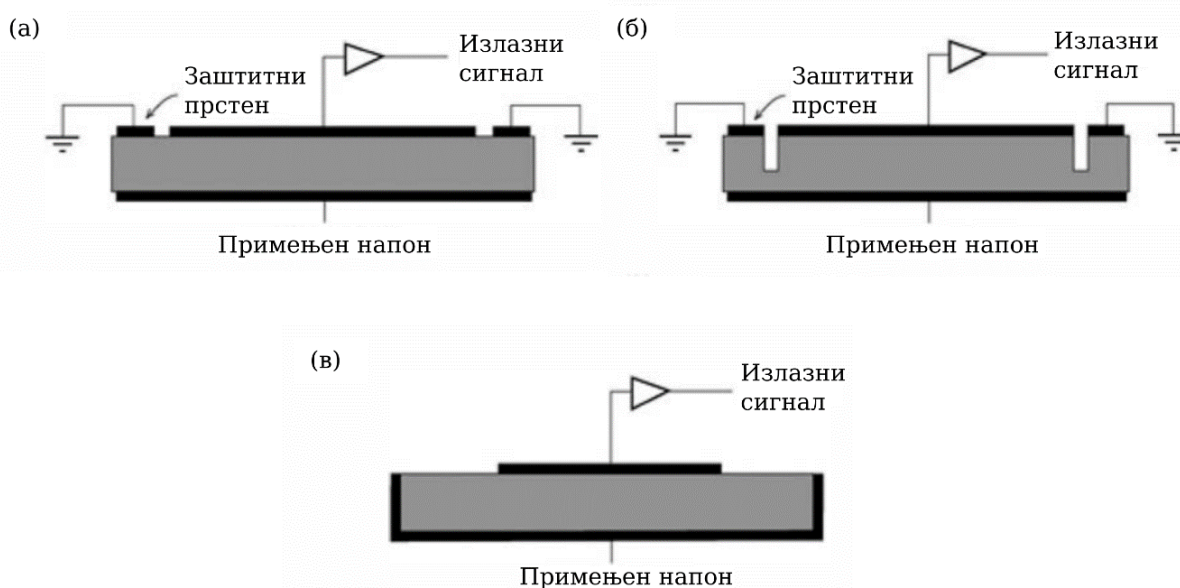
**Слика 4.3.** Шематски приказ планарног HPGe детектора. Ако се ради о  $\pi$ -типу детектора,  $p^+$  контакт је ректифирајући, док је у случају  $\nu$ -типа то  $n^+$  контакт [Knoll, 2010].

Активна запремина односно област просторног наелектривања се формира прикључењем оваквог  $p$ - $n$  споја на инверзни *bias* напон. Технике јонске имплантације се превасходно користе за производњу контактних слојева, будући да се на овај начин могу направити веома танки слојеви, што је изразито погодно за детекцију слабопродорног зрачења као што су гама фотони ниске енергије и X-зраци.  $p$ -тип контакти се формирају релативно једноставно, имплантацијом атома бора (B). У случају  $n$ -типа контаката, њихова производња је нешто ређа, будући да се процесом имплантације стварају акцепторска места у кристалу германијума. Када се производе,  $n$ -тип контакти се реализују имплантацијом атома фосфора (P), али је у процесу производње потребан корак који подразумева захтевно жарење како би донорски атоми постали електрично активни. Услед наведене чињенице, већина контаката  $n$ -типа се и даље производе дифузијом литијума (Li), чиме се добијају знатно дебљи површине мртвог слоја (*dead layer*). Инверзни *bias* напон подразумева примену позитивног напона на  $n^+$  контакт у односу на  $p^+$  површину. Регија без слободних носилаца наелектривања (активна запремина детектора) почиње на  $n^+$  ивици  $p$ - $n$  споја (централне регије) и шири се са порастом примењеног напона дог готово цела запремина детектора не остане без слободних носилаца наелектривања. Даљим порастом напона се добија униформни пораст вредности јачине електричног поља у целом детектору. Пожељно је да се примењени напон додатно повећа (*overvoltage*) толико да минимална вредност јачине електричног поља буде довољно велика да преда сатуризациону брзину дрифта (брзина дрифта која даље не зависи од пораста електричног поља) носиоцима наелектривања, чиме се минимализују нежељени ефекти попут заробљавања и рекомбинације наелектривања као и време сакупљања наелектривања. У случају германијума (Ge) на нормалној оперативној температури од 77K, сатуризационе (максималне) брзине електрона се достижу при вредностима јачине електричног поља од око  $10^5$  V/m, док је за постизање ових брзина у случају шупљина потребна јачина поља 3-5 пута већа. Максимални примењен напон је у пракси ограничен на 3-5 kV, при ком електрони али не и шупљине достижу сатуризациону брзину дрифта. Разлог за ово су пробој материјала и површинско цурење струје при већим напонима [Knoll, 2010].

HPGe детектори се могу производити и на начин да они буду  $\nu$ -типа. И у овом случају инверзни *bias* напон подразумева примену позитивног напона на  $n^+$  контакт у односу на  $p^+$  површину, али су улоге контаката у овом случају замењене.  $p^+$  контакт је у овом случају ректифирајући, што даље подразумева да се са порастом напона област просторног наелектривања шири од овог контакта [Knoll, 2010].

При максималној величини области просторног (везаног) наелектрисања и при великом *overvoltage*, електрично поље је готово равномерно у простору између контаката. Услед тога, електрони и шупљине дрефтују под утицајем електричног поља константне јачине кроз целу активну запремину детектора. У случају коаксијалне геометрије која ће у наставку бити описана, електрично поље унутар активне запремине детектора је прилично неuniformно што за последицу има значајно већи утицај на динамику кретања носилаца наелектрисања него што је то случај код планарне конфигурације. Код планарних HPGe детектора, да би настало електрично поље довољно за ефикасну колекцију наелектрисања, потребно је да се примени напон од барем 1000 V. У конфигурацији приказаној на слици 4.3, може се приметити да се примењен напон појављује преко бочних површина Ge диска, што је узрок појаве такозваних струја цурења (*leakage currents*). Флукуације ових струја могу бити узрок настанка шума у сигналу, и могу довести до погоршања енергетске резолуције детектора [Knoll,2010].

Постоје начини да се поменута *leakage current* и њени лоши утицаји у великој мери сузбију, и они су приказани на слици 4.4. Први од њих приказан је на слици 4.4а, где се ово сузбијање реализује помоћу уске електроде у виду заштитног прстена (*guard ring*) која се налази око периферије електроде са које се читава сигнал и између којих постоји одређен размак. Струја цурења која тече по бочним ивицама кристала је на овај начин једноставно уземљена, те даље не може имати утицај на сигнал. Овим се незнатно смањује ефикасност детекције, будући да је површина електроде са које се сигнал читава незнатно мања него што би била да покрива целу површину. Ово не мора нужно имати негативну конотацију, будући да активна запремина у овом случају не укључује регије кристала које се налазе близу ивица диска где може доћи до заробљавања наелектрисања које резултује пулсевима смањене амплитуде, што на крају доводи до погоршања енергетске резолуције



**Слика 4.4.** Типови конфигурација планарних детектора. Електроде су приказане са пренаглашеним пуним црним линијама [Knoll,2010].

детектора. На слици 4.4б је приказана конфигурација са жлебом, која користи фабрички урезан жлеб у кристал Ge како би се повећала ефективна површина размака између заштитног прстена и електроде са које се читава сигнал, без утицаја на величину активне запремине детектора. Још једно могуће решење приказано је на слици 4.4в, где електрода на доњој површини обухвата бочне стране Ge диска, док је горња електрода направљена тако да буде значајно мања од горње површине планарног детектора. Ова конфигурација омогућава велики размак између електрода, и као додатну погодност, смањује капацитанцу детектора у односу на случај кад би горња електрода покривала целу површину, што за последицу има бржи 'одговор' детектора као целог система. Такође постоји и могућност побољшања односа сигнал/шум, будући да је шум сразмеран капацитанци детектора. У овом случају, равномерност електричног поља кроз активну запремину детектора је у одређеној нарушена у односу на једноставан планарни детектор, те је и динамика кретања носилаца наелектрисања незнатно другачија, чиме је донекле повећана вероватноћа за рекомбинацију наелектрисања и нарушен процес сакупљања наелектрисања. Како је главна примена овог типа детектора у нискоенергетској гама спектроскопији, електрода која обавија Ge диск се производи да буде што је могуће тања како би се минимизирала атенуација. Диск је оријентисан тако да је ова електрода окренута ка инцидентном зрачењу [Knoll, 2010].

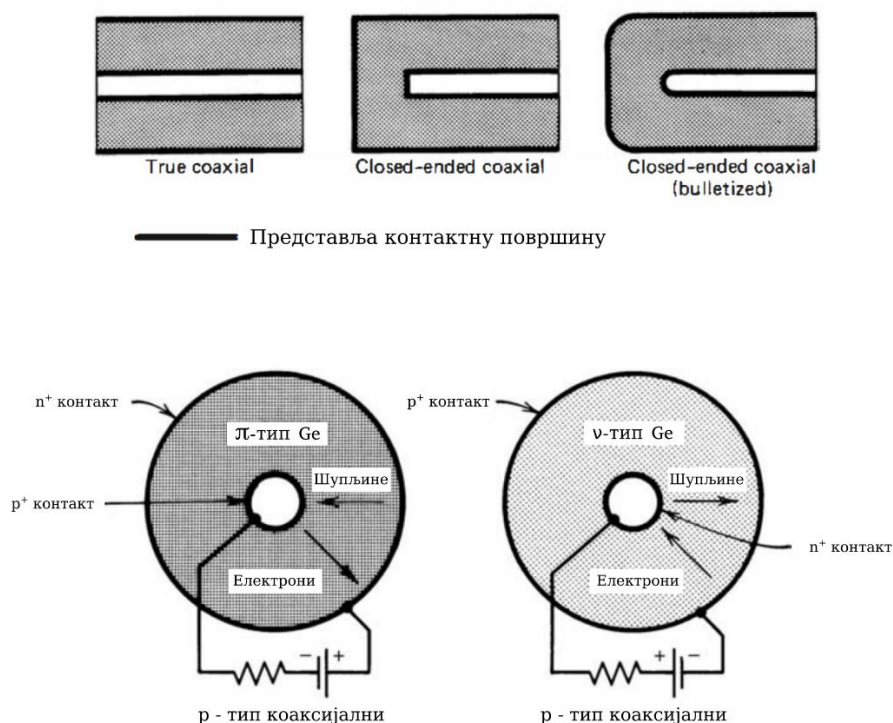
Како је претходно већ речено, планарни HPGe детектори су одличан избор када нам је потребна висока енергетска резолуција, међутим то је могуће једино на рачун ефикасности детекције за гама зрачење виших енергија. Ово произилази из просто физичких ограничења у виду димензија самог Ge кристала, где оне једноставно нису довољне како би се на ефикасан начин зауставило (атенуирало) високоенергетско зрачење.

#### 4.1.3 Коаксијални тип детектора

Код планарне конфигурације HPGe детектора, укупна запремина кристала се креће у десетинама  $\text{cm}^3$  и ограничена је са пречником узгајаног кристала дебљине одсецања истог. У свакодневној гама спектрометрији која подразумева и анализу узорка пореклом из животне средине, значајнија је потреба за детекторима веће запремине, који последично имају употребљиву ефикасност детекције у ширем енергетском опсегу. Ово се постиже цилиндричном или коаксијалном геометријом која у себи садржи много већу запремину кристала а самим тим и активну запремину него што је то случај код планарне. На слици 4.5 приказани су попречни пресеци коаксијалне геометрије детектора у две равни као и различите конструкционе варијације исте. У овој конфигурацији, једна електрода је направљена да буде на спољној површини германијумског цилиндра, док је друга електрода обезбеђена вађењем "језгра" Ge кристала и смештањем контакта преко унутрашње површине цилиндра. Како се на овај начин кристал може произвести да буде дугачак у аксијалном правцу, достижу активне запремине до чак  $800 \text{ cm}^3$ . Још једна предност коаксијалне конфигурације је та да се, користећи мали унутрашњи пречник, могу произвести детектори велике запремине са мањом капацитанцом него што би то било могуће имплементацијом планарне геометрије [Knoll, 2010].

*Closed-end* коаксијална конфигурација подразумева да је само део унутрашњег језгра Ge цилиндра извађен, те се спољна електрода протеже и преко равног дела цилиндра. Већина комерцијалних HPGe коаксијалних детектора се и производе у овој конфигурацији како би се избегле компликације настале услед струја цурења. Додатна предност *closed-end* варијације је да равна површина може да послужи за детекцију нискоенергетског зрачења, уколико се конструкцијски на њу смести танак

електрични контакт. За разлику од *true coaxial*, код *closed-end* конфигурације линије електричног поља нису у потпуности радијалне, те постоји тенденција да се у активној запремини кристала створе регије са слабијим пољем (обично се налазе у угловима цилиндра), у којима носиоци наелектрисања не достижу сатурациону брзину дрефта. Како би се очувао радијални карактер линија поља унутар кристала и елиминисале регије са слабијим електричним пољем, произвођачи заобљују предње углове цилиндра кристала (*bulletizing*) и продубљују централну рупу тако да буде што ближа равној површини (слика 4.5). Такође, коаксијални детектори се могу производити у у *well* конфигурацији, у којој је омогућен спољни приступ централној рупи. У овој геометрији је узорак практично окружен детектором, што резултује изузетно великом ефикасношћу детекције. Наравно, постоји и негативни аспект овакве геометрије, а то је веома изражен ефекат каскадног сумирања видљив у спектру мереног материјала/узорка [Knoll,2010].



**Слика 4.5.** Три различита типа коаксијалне конфигурације (горе) и попречни пресеци кристала *n*- и *p*-типа кристала са одговарајућим конфигурацијама електрода [Knoll, 2010].

Ректифирајући контакт се у овој геометрији може направити да буде како на спољашњој тако и на унутрашњој површини кристала. Уколико је спољашња површина ректифирајући контакт, област просторног наелектрисања расте са порастом примењеног напона ка унутра, док не достигне максималну запремину. Ако је ректифирајући контакт унутрашња површина, активна запремина расте ка споља, и потребан је много већи напон како би она досегла максималну величину. Први случај обезбеђује већу јачину електричног поља на спољашњем контакту, где се налази и већински део запремине детектора. Имајући наведене чињенице у виду, произвођачи већински производе спољни контакт као ректифирајући, тачније за *p*-тип *HPGe* коаксијалних детектора спољни контакт ће бити  $n^+$ , док ће код *n*-типа детектора спољни контакт бити  $p^+$ . Високи напон се повезује са спољашњим контактом док се унутрашњи контакт налази близу потенцијала уземљења [Knoll,2010].

## 4.2 Гама спектрометрија као недеструктивна метода нуклеарне форензике

У случајевима када је очување физичко-хемијског стања узорка императив (што је случај у нуклеарној форензици) прво се прибегава имплементацији недеструктивних мерних техника. Једна од њих је и гама спектрометрија. Она се користи да се на релативно брз, јефтин и што је од великог значаја- недеструктиван начин изврши карактеризација нуклеарног или другог радиоактивног материјала у погледу елементарног састава или његова категоризација преко изотопског састава узорка. Поред поменуте сврхе, гама спектрометрија може да послужи и за решавање мало захтевнијих задатака, као што су питање репроцесуирања нуклеарног материјала (поновна употреба истрошеног нуклеарног горива) као и његова старост [Apostol et al.,2016; Fedchenko,2015; Zsigrai, Nguyen,2006].

Као што је познато, ефикасност детекције HPGe детектора је функција енергије инцидентних гама фотона. Стога, ово је један од фактора који је битан за избор енергетског опсега конкретне мерења односно типа детектора који ће се користити. У нуклеарној форензици, при гамаспектрометријској анализи, често постоји потреба за анализу нуклеарних материјала који у себи садрже плутонијумске и уранијумске изотопе. У зависности од конкретне изотопа, они некад могу бити директно мерени преко сопствених гама пикова, док се у другим случајевима (када радиоизотоп није гама емитер) њихова активност одређује помоћу гама пикова потомака.

### 4.2.1 Енергије од интереса при анализи нуклеарног материјала

Степен обогаћења уранијумских узорка (HEU- високо-обогачен, LEU- ниско-обогачен и DEU – осиромашен уранијум) који је уско везан за концентрацију  $^{235}\text{U}$  се одређује помоћу пикова на енергијама од 143.8, 163.3, 185.7, 194.9 и 205.3 keV. Активност  $^{238}\text{U}$  се одређује преко активности потомака, пре свега  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  на енергијама 250.3, 766.4 и 1001.0 keV. Изотопски односи (концентрације) уранијума се у пракси често изражавају у односу на  $^{238}\text{U}$ . Однос  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  се користи за одређивање старости материјала (времена протеклог од последње хемијске сепарације), где  $^{234}\text{U}$  емитује гама фотон енергије 120.9 keV. Затупљеност изотопа  $^{234}\text{U}$  може се користити као индикатор географског порекла руде уранијума, ако се искористи чињеница да изотопска заступљеност конкретно овог изотопа незнатно варира у зависности од локације ископавања руде. Однос  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  (користећи енергију 49.4 keV) се користи за утврђивање репроцесуирања материјала (да ли је претходно био озрачиван у реактору), док се изотопи  $^{233}\text{U}$  и  $^{232}\text{U}$  који се такође користе за одређивање старости материјала пореде са изотопом  $^{229}\text{Th}$  уместо  $^{238}\text{U}$ . Присуство  $^{232}\text{U}$  је такође индикативно за присуство горе поменутог  $^{236}\text{U}$ , будући да је он веома тешко видљив у гама спектрима због фотопикова слабог интензитета. Присуство  $^{236}\text{U}$  је веома битно за операторе нуклеарних реактора будући да је он апсорбер неутрона [Fedchenko,2015; Ramebäck et al.,2008; Zsigrai et al.,2015].

При анализи материјала који садржи Pu, ситуација је веома слична горе поменутој. Већина плутонијумских изотопа ( $^{238}\text{Pu}$ - $^{242}\text{Pu}$ ) су такође гама-емитери. Изотоп који се користи превасходно за израду нуклеарног наоружања,  $^{239}\text{Pu}$ , емитује гама зрачење енергија 129.4 и 413.7 keV, док присуство  $^{240}\text{Pu}$  утврђујемо преко гама пикова на 45.2 и 160.3 keV. Активност изотопа који практично немају видљивих гама линија као што је  $^{241}\text{Pu}$ , одређујемо преко њихових потомака, што је у овој инстанци  $^{241}\text{Am}$  и његова гама линија на 59.5 keV. Изотопи који су превасходно фисиони продукти ( $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{237}\text{Np}$  и други), односно њихове гама линије, могу се наћи у

спектрима материјала који су отпад од нуклеарне експлозије или истрошено нуклеарно гориво будући да имају дугачак период полураспада. Као такви представљају опасност по животну средину [Fedchenko,2015].

#### 4.2.2 Фонско зрачење

Фонско зрачење у већини рутинских мерења представља нежељену компоненту спектра гама зрачења. Оно највећим уделом потиче од космичког зрачења, заштите и електронике, радиоактивних нечистоћа у детекторском систему и наравно спољашњег природног и вештачког зрачења из околине. HPGe детектори највећу ефикасност детекције имају у нискоенергетској области, где се управо налази и већински удео позадинског (фонског) зрачења. Постоји неколико решења за редукцију фона, када причамо о HPGe детекторском систему са криостатом.

Најједноставније од њих је да се из ближе околине детекторског система уклоне све компоненте које доприносе фону а нису неопходне. Уколико ово није довољно да се фон спусти на задовољавајући ниво, прибегава се конструкцији заштите око система. Опет, ова заштита може бити реализована на два начина: активна (вето) и пасивна заштита. Активна заштита у ствари представља додатни детектор (углавном су то органски пластични сцинтилатори (BGO)), који се антикоинцидентно повежу са HPGe детектором, на тај начин да га вето детектори или у потпуности или у неколико праваца окружују. У пракси ово значи да се одбацује сваки догађај који је прво детектован у вето детектору, а потом у германијумском, односно на овај начин се одбацују сви сигнали који потичу из околине детектора а не мереног узорка. Ово за последицу има знатно нижу статистику догађаја, и у овој инстанци је потребно много дуже време аквизиције за користан гама спектар. Што се тиче пасивних заштита, оне се углавном праве од олова (Pb), будући да је оно комерцијално лако доступно и има велику густину што га чини ефикасним у атенуацији гама зрака. Међутим, и оно има одређених мана – практично свако лакодоступно олово је у одређеној мери контаминирано својим изотопом  $^{210}\text{Pb}$ , који своје порекло углавном води још из руде олова. Период полураспада  $^{210}\text{Pb}$  износи 22.2 године, и оно доприноси фону двојачко - својим гама фотоном енергије 46.5 keV као и *bremsstrahlung* континуумом до 1.16 MeV, који потиче од бета распада  $^{210}\text{Bi}$ , који је један од потомака  $^{210}\text{Pb}$ . Такође ту су и флуоресцентни X-зраци, на енергијама 74.9 keV и 84.9 keV, који настају услед интеракција гама фотона са оловном заштитом. Како би се смањило утицај  $^{210}\text{Pb}$  на фон, препоручује се коришћење 'старог' олова (од старих оловних водоводних цеви, баласт тегова са старих бродова, итд.). [Fedchenko,2015; Verplancke,1992].

Уколико фон постигнут претходно описаном методом није на задовољавајуће ниском нивоу, прибегава се конструкцији слојевите заштите. Најчешћа у употреби је комбинација 3 материјала: унутрашњи танки слој (реда неколико mm-1cm) прави се од ултра-чистог електролитичког бакра (Cu), после кога следи такође танак међуслој од ултра-чистог калаја (Sn), док је спољашњи (и најмасивнији) слој направљен од олова (Pb). Овај слој у неким случајевима може да се састоји од два дела – тањег унутрашњег слоја који належе на слој од калаја, који је направљен од радио-чистог олова које готово да не садржи  $^{210}\text{Pb}$  и масивног спољашњег слоја од конвенционалног олова. Улога овако слојевите заштите је следећа: флуоресцентне X-зраке од олова (енергије 74.9 keV и 84.9 keV) успешно атенуира калај, у ком се услед овога индукују флуоресцентни X-зраци енергија 25.3 keV и 28.5 keV; Ови X-зраци доспевају до унутрашњег слоја од бакра који их атенуира, и реemitује сопствене флуоресцентне X-зраке енергија 8 keV и 8.9 keV. Ово су толико ниске енергије, да у рутинској гамаспектрометријској анализи, свакако бивају софтверски одсечене (*energy cut* се обично

прави испод 10 keV, будући да у овом енергијском опсегу, шум пореклом од саме електронике има већински удео као и да тај сам опсег није релевантан у рутинској гама спектрометрији.

Приликом избора материјала за израду заштите HPGe детектора треба избегавати оне компоненте које у свом саставу имају елементе са великим ефикасним пресецима за  $(n, n_\gamma)$  и  $(n, \gamma)$  реакције, затим материјале који имају велики масени удео водоника, будући да је он изузетно добар у апсорпцији неутрона (коју прати емисија фотона енергије 2.22 MeV- захват неутрона од стране водоника и формација деутеријума) и термализацији брзих неутрона. Такође, треба обратити пажњу да дебљина заштите не буде већа од оне која је потребна за дати ниво фонског зрачења, будућу да она утиче на повећање броја неутрона [Fedchenko, 2015].

Велики допринос фонском зрачењу или *background*-у има и сво гама и X-зрачење које потиче од  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  који се могу наћи у електронским компонентама предпојачавача, затим зрачење из природних радиоактивних низова  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  које се може наћи у алуминијуму (Al) који се користи у многим компонентама детекторског система. Поменути  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$ , свој допринос фонсу могу дати и преко активираних активног угља и молекуларног сита који се налазе у криостату (тачније дјуару) HPGe детекторског система. Мали али некад незанемарљив удео фонсу могу дати и радиоизотопи германијума који настају у интеракцијама са космичким зрачењем. Један од значајних радионуклида који (у зависности од локације на којој се детекторски ситем налази) је и радон, тачније његова три изотопа:  $^{222}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 3.8$  дана),  $^{220}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 56$  s) познатији и као торон и  $^{219}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 4$  s), који, будући да су у гасовитом стању, лако дифундују у блиску околину детектора где се брзо распадају на своје потомке који су интензивни гама емитери ( $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{208}\text{Tl}$ , итд.). Проблем утицаја радона се једноставно решава имплементацијом вентилационог система [Fedchenko, 2015].

Када је реч о компоненти фона која потиче од космичког зрачења, она произилази или из директних или из секундарно индукованих реакција. Састав космичког зрачења већински чине протони, алфа честице и тежа језгра. Услед њихових реакција у горњим слојевима атмосфере, настају миони, електрони, фотони и друге честице које потом стижу на површину земље. Управо у интеракцији миона са материјом, стварају се неутрони који, како је мало пре описано, у својим интеракцијама индукују настанак гама зрачења које доприноси фонсу. Како би се умањила ова компонента фона, препоручују се приземни или чак подземни услови мерења, како би се постигао што нижи фон. Такође, могу се поставити вето детектори, како је већ описано, на позицији изнад детектора, како би се космичко и секундарно гама зрачење индуковано њиме могли уклонити из спектра [Fedchenko, 2015].

#### 4.2.3 Гама спектрометрија као алат нуклеарне форензике

Иако се гама спектрометрија данас рутински користи, неке специфичности везане за анализу за потребе нуклеарне форензике биће детаљно приказане у даљем тексту у складу са тренутно важећим препорукама међународне радне групе за нуклеарну форензику у области гама спектрометрије.

Као што је претходно било речено, гама спектрометрија припада групи недеструктивних техника нуклеарно-форензичке анализе. А то даље значи да се узорак мери у "изворном" стању, без претходних хемијских или физичких припрема, користећи гама зрачење карактеристично за сваки радиоизотоп и његов интензитет како би се открио квантитет и квалитет радионуклида присутних у

узорку. Гама спектрометрија своју примену налази како у лабораторијским условима, тако и на терену.

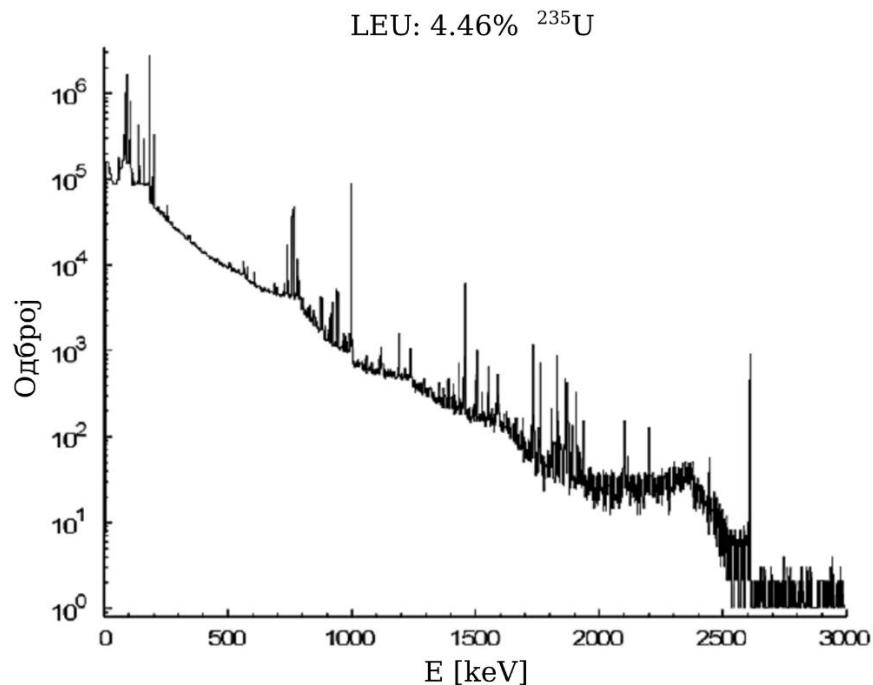
- У теренским условима, ову методу користимо како би одредили степен претње односно радиолошки инцидент који представља заплењен нуклеарни или други радиоактивни материјал. Ово подразумева да се на брз и ефикасан начин идентификује радиоактивни материјал и да се стекне груба слика о његовом изотопском саставу. Узимајући у обзир начин на који ће узорак накнадно бити процесуиран, разматрају се следеће четири категорије: Радиоактивни материјал природног порекла - NORM (*Naturally Occurring Radioactive Material*- NORM)
- Медицински радиоизотопи
- Индустриски радиоизотопи (можда убацити табелу 1 из IAEA 2-G [4])
- Специјални нуклеарни материјал

Где се под NORM подразумевају они материјали који се могу наћи у животној средини а који садрже радиоизотопе природног порекла (углавном су то чланови природних радиоактивних низова  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$ , као и  $^{40}\text{K}$ ). У медицинске радиоизотопе спадају  $^{14}\text{C}$ ,  $^{18}\text{F}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{125}\text{I}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ..., док се у индустриске радиоизотопе сврставају  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{252}\text{Cf}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ... [IAEA No. 2-G,2015]. Под специјалним нуклеарним материјалима (*Special Nuclear Material – SNM*) се подразумевају они материјали који су обogaћени изотопима уранијума  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  или садрже било који од изотопа плутонијума  $^{238-242}\text{Pu}$  [Moody et al.,2015; IAEA No. 2-G,2015; ITWG\_GsIf,2016].

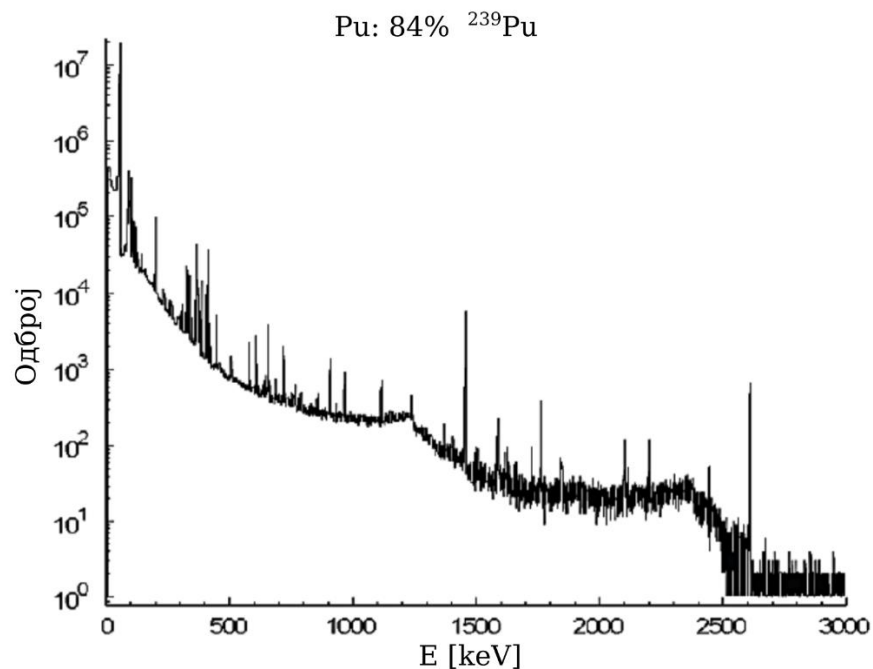
У лабораторијским условима, гама спектрометрију у оквиру нуклеарно форензичке истраге користимо како би могли прецизно да одредимо изотопски састав и количину свих присутних радионуклида у заплењеном узорку. Када се ради о анализи специјалног нуклеарног материјала као што су уранијум или плутонијум, помоћу гама спектрометрије можемо израчунати старост материјала, присуство репроцесуираног уранијума као и присуство физионих продуката. Информације добијене на овај начин могу бити од користи при истрази, пружајући показатеље порекла и старости заплењеног материјала, као и могућности повезивања тог материјала са већом количином истог или са неким од претходних случајева заплена [ITWG\_GsLa,2016].

Гама спектар мереног узорка на својеврстан начин представља његову "личну карту", будући да се из њега готово недвосмислено могу утврдити гама емисије радионуклида присутних у датом узорку. Поједностављено речено, спектар приказује број детектованих гама фотона као функцију енергије. На слици 4.6 и 4.7 приказани су карактеристични спектри уранијума и плутонијума респективно.





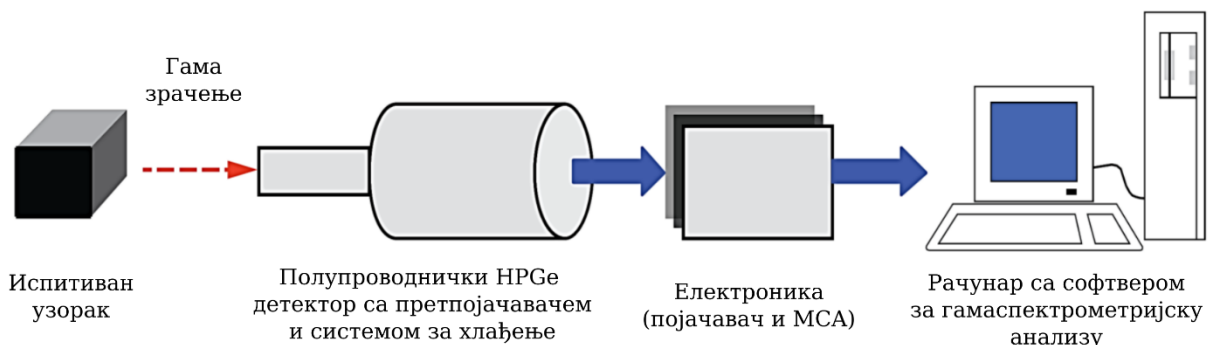
Слика 4.6. Гама спектар уранијума номиналног обogaћења 4.42%  $^{235}\text{U}$  [ITWG\_GsOv,2016].



Слика 4.7. Гама спектар плутонијума номиналног обogaћења 84%  $^{239}\text{Pu}$  [ITWG\_GsOv,2016].

Шематски приказ модерног детекторског система високе резолуције (енергетске) који се имплементира за потребе нуклеарне форензике приказан је на слици 4.8. Састоји се од HPGe детектора који је хлађен или електрично или путем течног азота и на који је прикачен предпојачавач, затим електронских компоненти (извор високог напона, појачавач, мултиканални анализатор...) и

рачунара који служи за приказ, обраду и чување гама спектра. Електронске компоненте у неким изведбама могу бити интегрисане у једну јединицу, док су код портабилних система све наведене компоненте уграђене у један преносни уређај. Конкретно, у лабораторијској поставци, детектори се обично окружују заштитним материјалима који су претходно описани, наравно да би се смањило допринос фона и утицај других радиоактивних материјала који се могу налазити у непосредној околини [ITWG\_GsOv,2016].



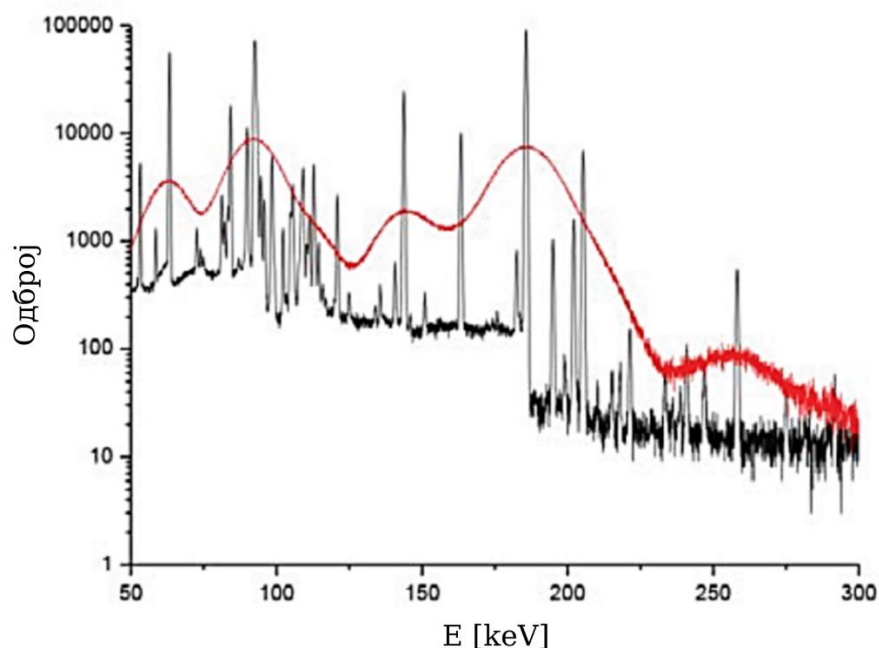
Слика 4.8. Шематски приказ компоненти детекторског система [ITWG\_GsOv,2016].

Најједноставније речено, да би се добио гама спектар заплењеног узорка, он се постави на детектор у одређени положај и на одређеном растојању од капе детектора у зависности од карактеристика самог узорка, пре свега његове активности. Потом, гама зрачење из узорка продире до кристала детектора, где долази до интеракције овог зрачења са медијумом кристала, услед чега се ствара електрични сигнал. Ти сигнали пролазе кроз појачавач ту се уобличавају и прилагођавају за улаз у мултиканални анализатор, затим се броје и сортирају у дискретне канале у зависности од енергије гама зрака (амплитуде сигнала). Овај тип података се најчешће приказује у облику хистограма броја детектованих сигнала. Ако  $x$ -осу (апсцису) овог хистограма у виду броја канала претворимо у енергију, добијамо жељени гама спектар, као што су они приказани на сликама 4.6 и 4.7. Што је дуже време аквизиције спектра, боља је статистика мерења (више фотона бива конвертовано у спектар), односно мање су мерне несигурности интензитета конкретне гама пика. Другим речима, што је дуже време мерења, подаци из спектра су поузданији [ITWG\_GsOv,2016].

Са друге стране, време потребно за аквизицију доброг гама спектра није фиксна величина већ зависи од одређених параметара као што су, пре свега, активност, густина и геометријска конфигурација узорка у односу на детектор, ефикасности детектора и наравно типа информације коју желимо да извучемо из спектра (једноставна идентификација радионуклида или њихова квантификација). У типичним нуклеарно-форензичким случајевима време мерења за потребе категоризације узорка на лицу места је реда десетине минута, док је за детаљнију лабораторијску анализу потребно време мерења од пар сати до неколико дана [ITWG\_GsOv,2016].

Када је реч о избору прикладног детектора за дато мерење, велику улогу игра његова ефикасност детекције. Као што је познато, ефикасност детектора представља однос броја детектованих фотона и броја фотона који су дошли до детектора. Позивајући се на горе поменуто време аквизиције спектра, оно је краће што је ефикасност детекције већа. Са друге стране, још једна битна карактеристика гама спектрометра, па и сваког другог, је његова енергетска резолуција. Она

представља меру способности детектора да раздвоји два гама фотона блиских енергија и у спектру их прикаже као два одвојена фотопика. Енергетска резолуција се описује помоћу величине FWHM (*Ful Width at Half Maximum*) која представља ширину фотопика одређене енергије на половини његове максималне висине изражену у keV. Што је FWHM мањи, већа је енергетска резолуција детектора, те је стога способан да боље разлучи два суседна фотопика блиских енергија. На слици 4.9 је приказана разлика између спектра истог материјала, прикупљених детекторима високе и ниске енергетске резолуције [ITWG\_GsOv,2016]. Детектори ниске и средње енергетске резолуције као што су то сцинтилациони Na(Tl)I или LBr<sub>3</sub> или пак полупроводнички Cd(Zn)Te се могу користити у теренским условима како би се идентификовао радиоактивни материјал или детектовало присуство нуклеарног материјала, али за комплекснију лабораторијску примену и анализу користе се искључиво гама спектрометри високе резолуције, односно HPGe детектори. Треба нагласити да перформансе тренутно најнапреднијих преносних електрично хлађених HPGe детектора нису на задовољавајућем нивоу за потребе захтевније лабораторијске анализе (која укључује нпр. одређивање изотопског састава нуклеарног материјала или његове старости) већ се у те сврхе користе искључиво HPGe системи који се хладе течним азотом [ITWG\_GsLa,2016].



**Слика 4.9.** Спектар LEU који је снимљен Na(Tl)I детектором ниске резолуције (приказан црвеном линијом) и HPGe детектором високе резолуције (црна линија) [ITWG\_GsLa,2016].

У случају када било који комад заплешеног материјала изискује нуклеарнофорензичку анализу, имплементирају се два типа лабораторијских гамаспектрометријских мерења која користе два различита типа HPGe детектора. Примера ради, изотопски састав материјала који садрже U и/или Pu, старост Pu се одређују помоћу детектора који има добру енергетску резолуцију у области ~100 keV – ово су планарни детектори описани у поглављу 4.1.2, са резолуцијом (FWHM) < 600 eV на 122 keV, будући да се у овој енергетској области налази већина фотопикова релевантних за одређивање поменутих карактеристика нуклеарних материјала. Додатне информације везане за

испитивани материјал се могу добити из вишег енергетског опсега спектра. Међутим, енергетска резолуција детектора опада са порастом ефикасности, и обрнуто. Стога, детектори који имају добру енергетску резолуцију у нискоенергетској области ( $< 250 \text{ keV}$ ), имају лошу ефикасност на вишим енергијама, те спектри са вишим енергијама прикупљени од стране оваквих детектора нису адекватни за анализу. Овај проблем се решава додатним мерењем, где се користи коаксијални HPGe детектор који има знатно бољу ефикасност у високоенергетској области ( $\sim 500\text{-}1200 \text{ keV}$ ). На овај начин се могу добити информације везане за присуство репроцесуираног U, старост U као и присуство физионих продуката. Такође, из спектра коаксијалног детектора се може потврдити изотопски састав плутонијума, добијен из спектра планарног детектора. Одавде видимо да је избор одговарајућег детектора за конкретно мерење увек компромис између енергетске резолуције и ефикасности детекције [ITWG\_GsLa,2016].

На тржишту постоје и такозвани "*broad energy*" детектори који имају задовољавајућу енергетску резолуцију у комбинацији са релативно високом ефикасношћу преко целог енергетског спектра, и могу се користити за мерење како нискоенергетске тако и високоенергетске области гама спектра, наравно уз одређене компромисе у погледу перформанси. *Broad energy* детектори су добро решење у виду уштеде ресурса, будући да се са њима могу прикупљати и ниско и високоенергетски спектри нуклеаних и других радиоактивних материјала, али ни близу истог квалитета као што се то може постићи са детекторима који су оптимизовани за одређену енергетску област [ITWG\_GsLa,2016].

Што се тиче заштите детектора у нуклеарнофорензичкој анализи, она је неопходна уколико користимо коаксијални детектор који има добру ефикасност и у вишем енергетском опсегу спектра из ког желимо да извучемо информације везане за испитивани материјал, будући да су фотопикови од интереса слабог интензитета, тако да чак и природни фон може имати значајан негативни утицај. Уколико користимо планарни детектор за одређивање изотопског састава материјала, интензитети пикова у нискоенергетској области су знатно већи, стога природни фон има мали утицај на мерење. У поменутој инстанци заштита детектора није неопходна, али наравно уколико постоји практична могућност за то увек је пожељна [ITWG\_GsLa,2016].

Генерално гледано, по дефиницији Међународне агенције за атомску енергију ИАЕА, нуклеарнофорензичка анализа представља процес анализе заплетееног илегалног нуклеарног или другог радиоактивног материјала и свих повезаних материјала ради пружања доказа за нуклеарну атрибуцију. Процес анализе почиње са категоризацијом заплетееног материјала како би се утврдила и евалуирала претња, после чега долази детаљнија анализа у виду карактеризације, како би се недвосмислено одредила природа радиоактивног и/или нуклеарног материјала. У свему овоме, гама спектрометрија има двојаку улогу. Прво, на локацији места злочина где је материјал откривен, она представља веома користан алат за брзу теренску идентификацију и категоризацију заплетееног радиоактивног или нуклеарног материјала. У почетним тренуцима истраге, циљ је да се за кратак временски период идентификује материјал и стекне груба слика о његовом изотопском саставу. Друго, за свеобухватнију карактеризацију материјала, гама спектрометрију користимо као недеструктивну аналитичку технику у лабораторији. Овде је циљ да се са што је могуће већим степеном тачности одреди изотопски састав материјала. Уколико је реч о специјалном нуклеарном материјалу као што су уранијум или плутонијум, користећи гама спектрометрију можемо одредити и укупну количину нуклеарног материјала, присуство репроцесуираног уранијума, старост материјала као и присуство физионих продуката. Параметри материјала који могу бити квантификовани помоћу гама спектрометрије, приказани су у Табели 4.2 [ITWG\_GsOv,2016].

#### 4.2.4 Узорци-карактеристике и ограничења

Као што је већ дефинисано, гама спектрометрија је недеструктивна метода. Као таква може се применити на широк распон узорака различитих конфигурација и врста. Испитивани материјали се обично стављају на анализу у изворном стању (како су и доспели у лабораторију), без било какве претходне хемијске и физичке припреме. Старост материјала и изотопски односи се могу одређивати независно од облика, хемијског састава или физичке форме узорка, и не захтевају употребу референтних материјала. Са друге стране, када је циљ анализе квантификација радионуклида присутних у узорку нуклеарног или другог радиоактивног материјала, односно добијање њихове активности, веома је битна мерна конфигурација узорак-детектор и неопходна је употреба референтних материјала и матрице сличне испитиваном узорку или пак симулационих и/или семиемпиријских техника. Експериментални рад ове тезе, базирао се управо на утицају различитих геометрија узорка и његове матрице на резултат анализе у виду масене активности узорка, који ће у поглављу 5 бити детаљно изложен [ITWG\_GsOv,2016].

**Табела 4.2.** Гамаспектрометријски параметри релевантни за нуклеарну форензику [ITWG\_GsOv,2016].

Параметар	Коментар
Присуство гама "отисака" услед интеракције алфа честица или неутрона	Указују на присуство стабилних (нерадиоактивних) материјала који су били у контакту или окруживали нуклеарни материјал
Старост U	Препоручује се заштита детектора (ниске енергије)
Старост Pu	-
Изотопска заступљеност $^{234}\text{U}$ , $^{235}\text{U}$ и $^{238}\text{U}$ у уранијумском узорку	Углавном без потребе за заштитом детектора (ниске енергије)
Изотопска заступљеност $^{238}\text{Pu}$ , $^{239}\text{Pu}$ , $^{240}\text{Pu}$ , $^{241}\text{Pu}$ и $^{241}\text{Am}$ у плутонијумском узорку	Углавном без потребе за заштитом детектора (ниске енергије)
Садржај $^{232}\text{U}$	$^{232}\text{U}$ указује на присуство репроцесуираног уранијума
Укупан садржај Pu и U	-
Присуство фисионих продуката	Указује на претходно озрачивање или контаминацију
Врста и активност других радиоактивних материјала	Нпр. материјали у радиолошкој дисперзивној направи или контаминација у узорку

У стандардној пракси, код гамаспектрометријских мерења претпоставља се да је узорак хомоген, али се мора имати на уму да уколико су димензије самог узорка велике, детектовано зрачење (услед велике густине узорка) долази превасходно из површинских слојева окренутих ка детектору. Стога, у тим случајевима, мерењима не добијамо никакве информације о унутрашњости узорка. На овом месту ће бити изнесена нека од својстава узорака (прво радиоактивних а потом и нуклеарних материјала) који могу имати негативан утицај на гамаспектрометријско мерење [ITWG\_GsOv,2016].

- *Активност узорка* – при анализи узорака чија је активност изразито висока, када се смањење мртвог времена детектора (време које је потребно детекторском систему да прецизно раздвоји два или више гама фотона којој пристижу у кратком временском интервалу) не може извести повећањем удаљености узорка од детектора или поставком додатне заштите између њих, прибегава се дељењу (цепању узорка).
- *Присуство других радиоактивних материјала* чије гама зрачење може сметати детекцији гама зрачења узорка ('masking' ефекат).
- *Заштита узорка* – уколико се између узорка и детектора налази превише заштитног материјала (> 5 cm олова) добија се ограничен обим информација из спектра снимљеног под таквим условима.
- *Неутронско зрачење* – У прошлости Pu се често користио за производњу Pu-Be неутронских извора. Неутронско зрачење представља опасност из више разлога:
  1. Радиолошки hazard за гама спектрометристе
  2. Фонски континуум у спектру који потиче од гама зрака насталих интеракцијом неутрона са кристалом детектора смета у евалуацији самог спектра. У одређеним инстанцама када се неутронски Pu-Be извори праве од Pu веома високог степена изгарања (< 50% <sup>239</sup>Pu у изотопском саставу Pu материјала [Lloyd, Clayton,1973]), интерференције у спектру могу бити те размере да комерцијални кодови за анализу материјала попут PC FRAM не буду у могућности да тачно одреде изотопски састав узорка.
  3. Могућа радијациона оштећења HPGe кристала
- *Садржај нуклеарног материјала* – Да би у року од неколико сати добио задовољавајуће прецизан резултат изотопског састава узорка потребно је око 0.5g нуклеарног материјала.
- *Изотопски састав Pu* – Изотопски састав Pu у узорку се често процењује (одређује) имплементирањем комерцијално доступних кодова који аутоматски рачунају Pu изотопски састав из гама спектра. Различити кодови па чак и различите верзије истог кода могу дати другачије резултате користећи исти спектар. Пре свега, Pu високог степена изгарања, који има повишен удео <sup>242</sup>Pu и последично смањен удео <sup>239</sup>Pu представља посебан "изазов" за поменуте кодове, тако да резултате за материјале који садрже < 60 % масеног удела <sup>239</sup>Pu треба узимати са одређеном дозом опреза. Комерцијално доступни кодови у неким инстанцама уопште не успевају да добију резултат за изотопски састав оваквог материјала или пријаве погрешне вредности. У овим случајевима потребан је алтернативни приступ. Да би се добили репрезентативни резултати, некад је једноставно довољно повећати време аквизиције спектра, док је понекад потребно прибећи ручним прорачунима.

Употреба гама спектрометрије у нуклеарно форензичким истрагама има својих предности, али и својим мана, што ће на даље бити наведено.

Предности:

- Брзи резултати већ на терену.

- Портбилност.
- Потпуно недеструктивна метода, чиме традиционални форензички докази остају очувани.
- Минимални или никакви захтеви у виду припреме узорка.

Мане:

- За гама спектрометре високе резолуције потребно је хлађење или електрично или течним азотом.
- Услед ограничења на терену (углавном су то кратка времена аквизиције) или немогућност контроле услова мерења на лицу места (удаљеност детектор-узорак, заштита), прецизност и тачност теренских мерења је знатно нижа од мерења спроведених у лабораторијским условима.
- Са модерним гамаспектрометријским детекторским системима није могуће директно из спектра извући информације о уделу  $^{242}\text{Pu}$ . Да би се то постигло, користе се изотопске корелације. За Pu који има висок удео  $^{242}\text{Pu}$ , ово изазива велике несигурности у одређивању изотопског састава плутонијума. Добијање прецизних удела  $^{242}\text{Pu}$  потпуно недеструктивним методама могуће је ако резултате гама спектрометрије комбинујемо са неутронским коинцидентним мерењима и калориметријом.
- Прецизност гама спектрометрије је значајно мања него код деструктивних метода попут различитих масених спектрометрија (стандардна девијација појединачног резултата мерења код гама спектрометрије ће бити већа).

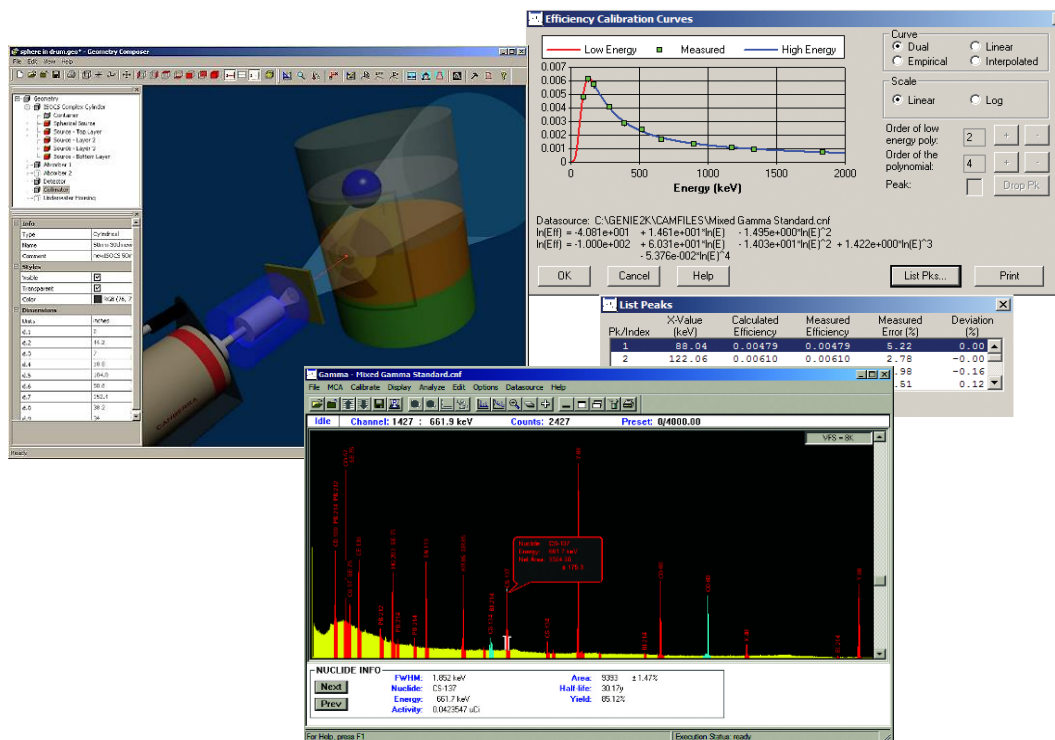
### 4.3 Софтверски пакети за анализу

---

За потребе аквизиције и накнадне анализе прикупљених спектра нуклеарних и других радиоактивних материјала коришћен је неколико софтвера и софтверских пакета. Први у низу је GENIE 2000 софтвер, који је коришћен за прикупљање спектра са детектора и читавање интензитета гама линија од интереса унутар спектра, потом су коришћени софтвери Angle и EFFTRAN у циљу калкулација одговарајућих ефикасности детекције на принципу модела трансфера ефикасности, симулациони софтверски пакет GEANT4 који је коришћен за моделовање детектора и креирање симулираних функција ефикасности детекције и на крају PC FRAM софтвер помоћу ког се могу добити масени удели одређених изотопа једног елемента односно њихово обогаћење. Поред поменутих софтвера коришћени су и други али у много мањем уделу, о којима ће такође бити речи касније.

### 4.3.1 Genie™ 2000 Basic Spectroscopy Software

*Genie™ 2000 Basic Spectroscopy Software* представља свеобухватно окружење које служи за аквизицију, приказивање и анализу података у области алфа и гамма спектрометрије. Пружа подршку за велик број независних детектора, чиме се постижу знатне могућности у погледу умрежавања. *Genie™ 2000* софтвер у свом саставу може да поседује различите програмске пакете који тиме обезбеђују могућност целокупне обраде и анализе прикупљених података, а то поред стандардне спектралне анализе подразумева креирање специфичне геометрије везане за мерења, фитовање појединачних пикова унутар мултиплета, корекције резултата на радиоактивни распад, идентификацију и квантификацију радионуклида из спектра, итд. Један од поменутих пакета је *Interactive Peak Fit* који се састоји од бројних алата за анализу пикова у конкретном спектру. Овај пакет је веома сврсисходан у инстанцама када се обрађују комплексни спектри, због своје способности да анализира синглет пикове као и оне који се налазе у мултиплетима, независно од остатка спектра. Такође, корисник има опцију да ручно фитује било који гама пик у спектру (синглет или мултиплет). *Gamma Analysis Software* је пакет који садржи скуп напредних алгоритама за анализу гама спектра које добија софтвер *Genie™ 2000*, док пакет *Geometry Composer* омогућује интерактивну визуелизацију и дефиницију параметара везаних за детектор, апсорбер и узорак. На слици 4.10 је приказано корисничко окружење појединих пакета унутар *Genie™ 2000 Basic Spectroscopy Software*-а [Genie,2016; Genie OM,2006].



Слика 4.10. Корисничко окружење унутар софтвера *Genie™ 2000 Basic Spectroscopy Software* [Genie,2016; Genie OM, 2006].



### 4.3.2 EFFTRAN софтвер

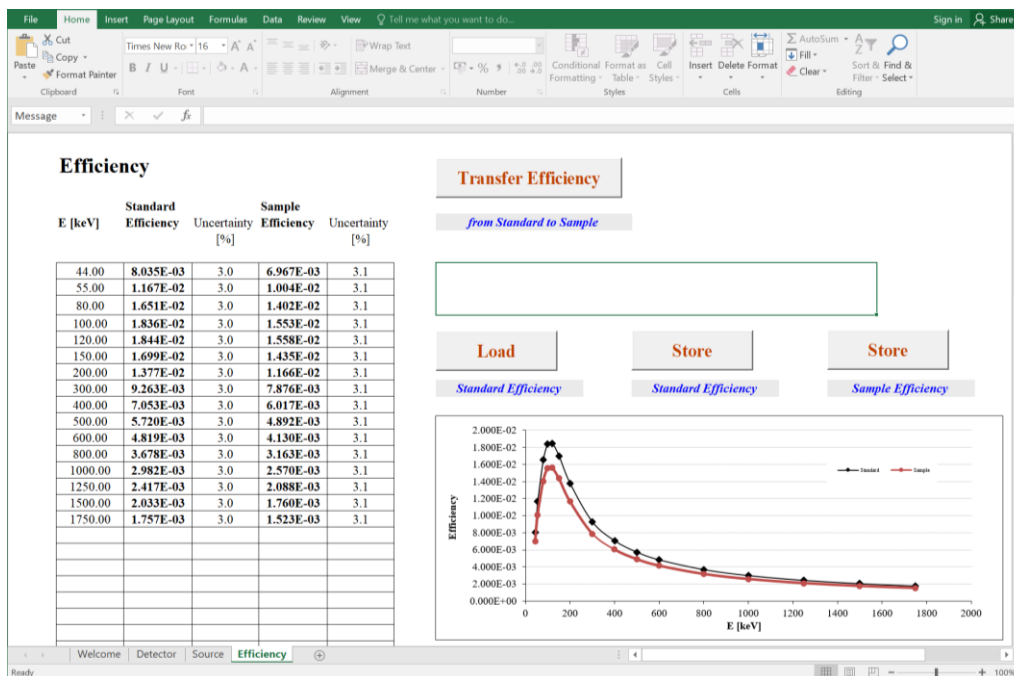
EFFTRAN је математички софтверски код који је написан унутар програма Fortran77 и који функционише на *Windows* платформи посредством *Microsoft Excel* корисничког окружења употребом *Visual Basic Application* (VBA) модалитета, у сврху рачунања непознате ефикасности детекције. EFFTRAN софтвер представља практичну примену метода "трансфера ефикасности" у гамаспектрометрији за узорке цилиндричне геометрије, базиране на Монте Карло симулацијама које инкорпорирају вероватноће за различите интеракције гама зрака при њиховом проласку кроз различите медијуме као што су узорак и сам детектор. Овај приступ чини рачунарски код релативно једноставним за писање и пружа адекватну брзину калкулација за рутинску анализу прикупљених спектра. Механизам ове методе подразумева израчунавање односа тоталне ефикасности за узорак од интереса и калибрационог узорка и множењем тог односа са експерименталном односно мереном *Full Energy Peak Efficiency* (FEPE) калибрационог узорка. Велика предност ове методе, огледа се у томе да се рачунањем односа ефикасности, у великој мери поништавају евентуалне нетачности или несавршености у самом моделу детектора, чиме се омогућава добијање квалитетних резултата чак и у ситуацијама када од стране произвођача детектора нису обезбеђени или су обезбеђени неоптимизовани подаци. Поништавање нетачности се такође односи на ефикасне пресеке за интеракције гама и рендгенских зрака који се могу користити у различитим имплементацијама метода трансфера ефикасности и на физичке моделе њихове интеракције и праћење трагова честица. EFFTRAN софтвер такође има могућност калкулације корекционих фактора за коинцидентно сумирање за одређени радионуклид у одговарајућој узорак-детектор геометрији. Приликом рачунања ових фактора, узимају се у обзир гама-гама, гама-рендгенске и рендгенско-рендгенске коинциденције. Након израчунавања, корекционим факторима за коинцидентно сумирање множе се нето површине обухваћене датим пиком у спектру. EFFTRAN софтвер аутоматски израчунава ове факторе, на основу геометрије узорка, модела детектора и радионуклида од интереса. [Vidmar,2005; Vidmar et al.,2010; Stanic et al.,2019; Vraničar et al.,2021]. Приказ корисничког окружења унутар EFFTRAN софтвера, дат је на слици 4.11 и 4.12.

Како би израчунао непознате ефикасности за дату узорак-детектор геометрију, EFFTRAN софтвер се ослања на процес 'трансфера ефикасности', који се спроводи у складу са једначином:

$$\varepsilon = \varepsilon_{ref} \frac{\eta}{\eta_{ref}} \quad (4.2)$$

У наведеној једначини, фотопик ефикасности су означене са  $\varepsilon$ , док су тоталне ефикасности означене са  $\eta$ . Величине које нису индексирани односе се на непознат узорак док се исте које имају индекс "ref" односе на геометрију са стандардним референтним калибрационим извором. Тоталне ефикасности су срачунате помоћу самог кода унутар EFFTRAN-а, док фотопик ефикасности референтног извора морају бити измерене. Исход ове методе је фотопик ефикасност непознатог волуминозног извора. Наравно, да би поменуте тоталне ефикасности могле бити срачунате, неопходно је конструисати детаљан модел детектора. Како би се добили прецизни резултати гамаспектрометријских мерења, од велике важности је прецизно израчунавање ефикасности детекције за различите геометрије извора, матрице и енергије, чиме се добијају референтне криве ефикасности (*Reference Efficiency Curve* – REC). Тражена ефикасност се може израчунати или

помоћу калибрационих стандарда са сертификованим активностима радионуклида који поседују идентична својства као непознати узорак (геометрија, матрица и присутни радионуклиди), где нема места апроксимацијама, или помоћу софтвера који су дизајнирани у сврхе нумеричких или семиемпиријских калкулација [Vidmar,2005].

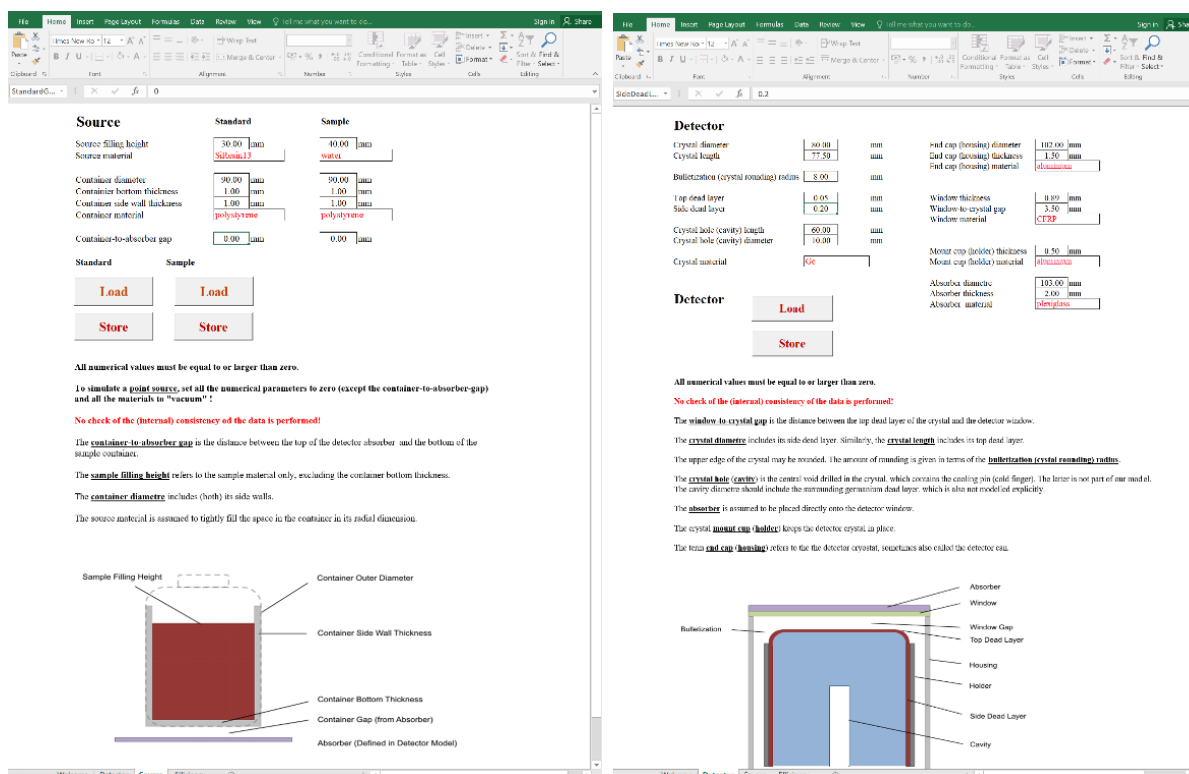


Слика 4.11. Корисничко окружење унутар EFFTRAN софтвера.

Имајући у виду наведене чињенице, може се закључити да је калибрација ефикасности саставни део сваке врсте мерења које се спроводи са детекторима који имају параметарски зависну функцију ефикасности детекције. По завршетку мерења и аквизиције спектра, може се приступити поступку рачунања референтне криве ефикасности. Неопходан услов је да прикупљен спектар буде од добро дефинисаног извора, сертификоване активности. Потом, врши се селекција пикова који потичу од радиоактивног распада жељеног изотопа, на основу којих се користећи релацију (4.3) може израчунати релативна ефикасност:

$$\epsilon_{ref} = \frac{N \cdot COI}{t \cdot p_{\gamma} \cdot A} \quad (4.3)$$

У релацији (4.2),  $N$  представља укупан број детектованих гама фотона одређене енергије,  $t$  је време аквизиције,  $p_\gamma$  представља квантни принос, односно вероватноћу емисије фотона дате енергије при распаду,  $A$  је активност радионуклида коригована на распад док  $COI$  представља корекциони фактор за коинцидентно сумирање. Референтне криве ефикасности се могу израчунати за било који референтни материјал, различите детекторе, геометрије узорка и матрице. У оквиру овог софтверског пакета, постоји могућност креације материјала, односно матрице узорка и стандарда. За ову радњу, постоји засебни модул у склопу ког можемо креирати матрицу произвољног елементарног или молекулског састава до десет конституената. Када су познате REC и спецификације узорка, калибрационог стандарда и детектора, EFFTRAN софтвер може креирати жељену непознату криву ефикасности за мерени узорак [Vidmar,2005].



Слика 4.12. Корисничко окружење унутар EFFTRAN софтвера.

На слици 4.12 видимо прозоре унутар којих се задају одвојено параметри везани за детектор (висина и радијус кристала, заобљеност, материјал од ког је направљен, дебљине мртвих слојева на самом кристалу као и постојање прозора на детектору и, уколико постоји, материјал истог) и стандардни референтни материјал и узорак од интереса (висина, облик и материјал контејнера у којем су, матрица односно материјал који сачињава стандард и узорак као и њихова геометрија у односу на детектор). На слици 4.11 могу се приметити поља у којима уносимо експериментално одређене вредности функције ефикасности за енергије од интереса, за које нам софтвер, респективно, рачуна ефикасности за наш узорак, помоћу параметара детектора, стандарда и самог узорка које смо претходно задали. Највеће ограничење EFFTRAN софтвера огледа се у чињеници да је процес трансфера ефикасности могућ једино у случају цилиндричне и аксијално симетричне геометрије детектора и узорка.

### 4.3.3 Angle софтвер

Angle представља софтвер који своју употребу налази у области квантитативне гама спектрометрије, и као такав се већ више од 25 година користи у бројним аналитичким лабораторијама које се баве гама спектрометријом. У први мах, овај софтвер је развијен за полупроводничке германијумске детекторе (HPGe), док тренутно постоји подршка и за сцинтилационе (натријум-јодидске (NaI)) детекторе будући да су ова два типа детектора најзаступљенији у модерним гамаспектрометријским системима. Angle софтвер пружа прецизно одређивање активности узорака, те се као такав и користи за квантификацију односно спектрометрију самих мерења. Слично као и EFFTRAN софтвера, да би срачунао ефикасност детекције, Angle користи методу 'трансфера ефикасности', само се она спроводи на мало другачији начин. Angle кориснику пружа могућност за прецизно одређивање активности гама-спектроскопских узорака, и као такав се користи за квантификацију мерних података [Angle 4,2016; Jovanovic et al.,1997].

Као што је то био случај и код EFFTRAN софтвера, унутар Angle софтверског пакета корисник има сличне могућности - да направи и зада геометрију и тип детектора, врсту контејнера за узорак и референтни стандарни материјал, матрицу узорка и референтног материјала и наравно референтну криву ефикасности (REC). Оно што је битна разлика, је да Angle софтвер и без задавања REC може да пружи резултате у виду просторних углова за стандарни референтни материјал и узорак. Ефективни просторни угао  $\bar{\Omega}$  представља калкулисану вредност која у себи садржи три компоненте, а сама је уско повезана са ефикасношћу детекције. Овим се подразумева да је виртуелни 'пик-на-пик' однос, у ствари интринсична карактеристика кристала детектора, то јест да зависи искључиво од енергије. То даље значи да је ефикасност детекције  $\varepsilon$  пропорционална ефективном просторном углу  $\bar{\Omega}$ . Ефикасност детекције ( $\varepsilon_p$ ) се добија помоћу следеће релације :

$$\varepsilon_p = \varepsilon_{p,ref} \frac{\bar{\Omega}}{\bar{\Omega}_{ref}} \quad (4.4)$$

где је са ознаком *ref* означена референтна детекциона геометрија док се ознака *p* односи на тражену (непознату) ефикасност детекције. У наставку текста биће приказан математички модел за рачунање просторних углова и ефикасности за случај аксијално-симетричне геометрије детектор-узорак (извор) [Angle 4, 2016].

#### Математички модел

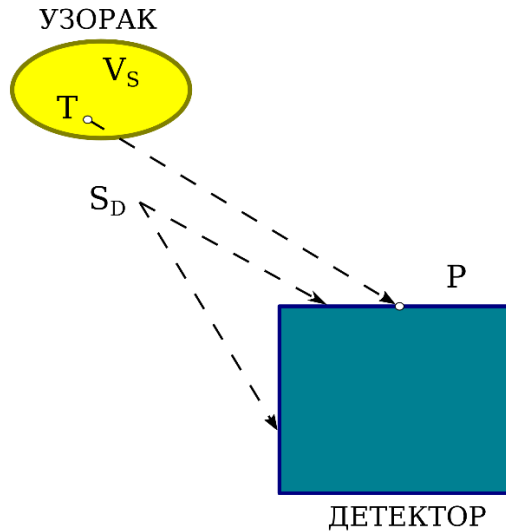
За дату произвољну геометрију детектор (D) – извор (S), ефективни просторни угао може да се дефинише на следећи начин:

$$\bar{\Omega} = \int_{V_S S_D} d\bar{\Omega} \quad (4.5)$$

где је са  $V_S$  означена запремина извора а са  $S_D$  површина детектора окренута ка извору (површина детектора коју 'види' извор), док је  $d\bar{\Omega}$  дефинисан као:

$$d\bar{\Omega} = \frac{F_{att}F_{eff}\overline{TP}\vec{n}_u}{|\overline{TP}|^3} d\sigma \quad (4.6)$$

У једначини (4.6) са  $T$  је означена произвољна тачка унутар запремине  $V_S$ ,  $P$  представља произвољну тачку која се налази на површини  $S_D$ , док је са  $\vec{n}_u$  означен јединични вектор који је нормалан на инфинитезималну површину  $d\sigma$  површине  $S_D$ . Имајући све наведено у виду, једначина (5.4) представља петоструки интеграл. Помоћу фактора  $F_{att}$  урачуната је атенуација гама-фотона који се креће дуж правца вектора  $\overline{TP}$ , док креће се кроз детектор и напушта његову активну запремину, а употребом  $F_{eff}$  описана вероватноћа нееластичне интеракције фотона са материјалом детектора (интеракције у којима долази до губитка енергије иницијалног фотона). У поменути два фактора су инкорпорирани геометријски и композициони параметри материјала кроз који пролази фотон. Описане величине су приказане на Слици 4.13 [Angle 4,2016].



Слика 4.13. Приказ параметризоване произвољне геометрије извор-детектор [Angle 4,2016].

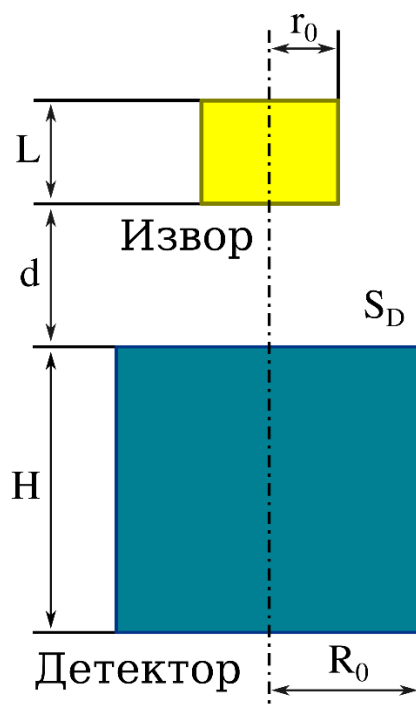
У рутинској гамаспектрометријској пракси, извор или узорак се, када је реч о волуминозним изворима, најчешће налази у цилиндричној геометрији. У наставку ће бити описани случајеви централно-аксијалне симетрије извора и детектора, у инстанци када је полупречник извора мањи, односно већи од полупречника детектора.

У случају када је полупречник извора мањи од полупречника детектора ( $r_0 < R_0$ ) и исти се налазе у аксијалној симетрији, петоструки интеграл из једначине (4.5) се своди на четвороструки услед саме природе аксијалне симетрије.

За случај када је полупречник цилиндричног извора мањи од полупречника детектора ( $r_0 < R_0$ ) једначина (4.5) добија следећи облик:

$$\bar{\Omega} = \frac{4}{r_0^2 L} \int_0^L (d+l) dl \int_0^{r_0} r dr \int_0^\pi d\varphi \int_0^{R_0} \frac{F_{att}F_{eff}R dR}{[R^2 - 2Rr \cos\varphi + r^2 + (d+l)^2]^{\frac{3}{2}}} \quad (4.7)$$

Шематски приказ геометрије ( $r_0 < R_0$ ) дат је на Слици 4.14. Уколико желимо да радимо прорачун просторног угла за диск и тачкасте изворе, у једначину (4.7) уврштавамо  $L=0$  и  $L=0$ ,  $r_0=0$  респективно.



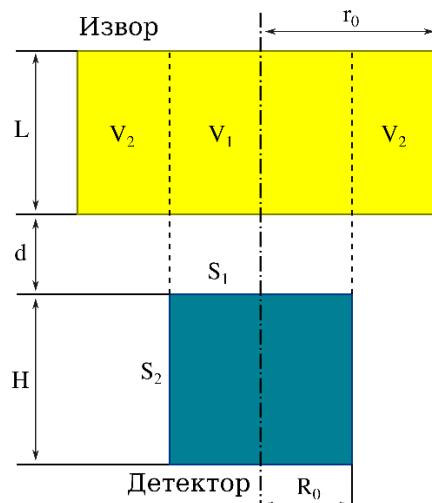
Слика 4.14. Шематски приказ поставке извор-детектор ( $r_0 < R_0$ ) [Angle 4,2016].

У инстанци када је полупречник извора већи од полупречника детектора ( $r_0 > R_0$ ), једначина (4.5) се може написати на следећи начин (Слика 4.15):

$$\begin{aligned}
 \bar{\Omega} &= \int_{V_1, S_1} d\bar{\Omega} + \int_{V_2, (S_1+S_2)} d\bar{\Omega} = \\
 &= \frac{4}{r_0^2 L} \int_0^L (d+l) dl \int_0^{r_0} r dr \int_0^\pi d\varphi \int_0^{R_0} \frac{F_{att} F_{eff} R dR}{[R^2 - 2Rr \cos\varphi + r^2 + (d+l)^2]^{\frac{3}{2}}} + \\
 &+ \frac{4}{(r_0^2 - R_0^2) L} \int_0^L (d+l) dl \int_0^{r_0} r dr \int_0^{\varphi_0} d\varphi \int_{-H}^0 \frac{F_{att} F_{eff} (r \cos\varphi - R_0) dh}{[R_0^2 - 2R_0 r \cos\varphi + r^2 + (d+l-h)^2]^{\frac{3}{2}}} \quad (4.7)
 \end{aligned}$$

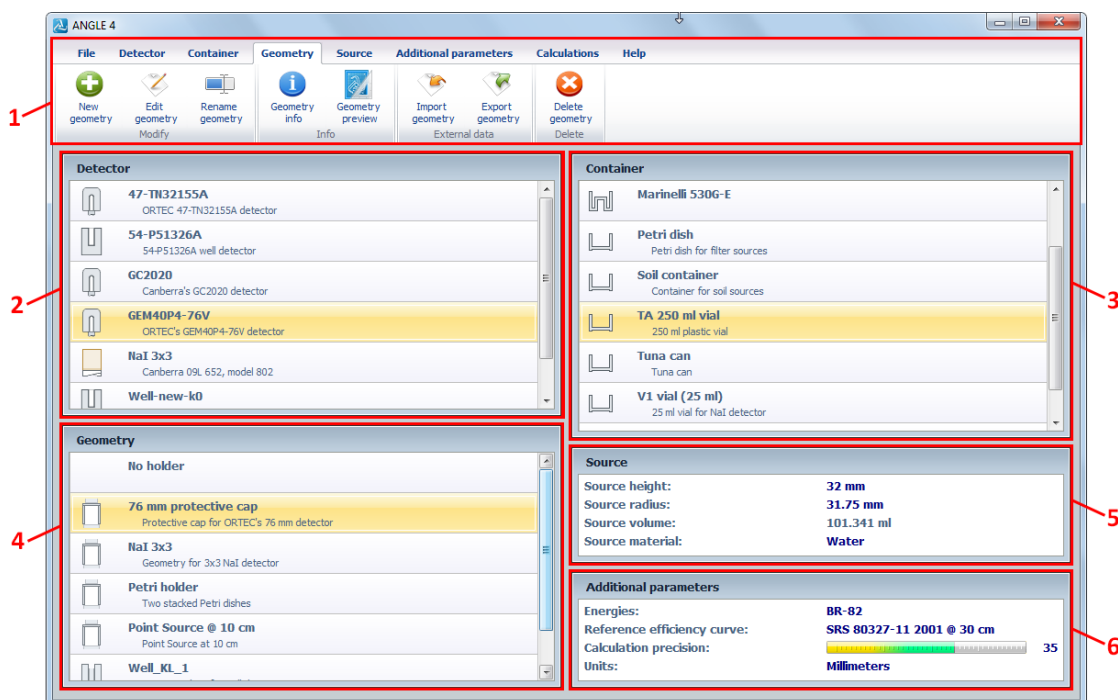
где је  $\varphi_0$  дефинисано као :

$$\varphi_0 = \varphi_0(r) = \arctg \frac{\sqrt{r^2 - R_0^2}}{R_0} \quad (4.8)$$



Слика 4.15. Шематски приказ поставке извор-детектор ( $r_0 > R_0$ ) [Angle 4,2016].

На слици 4.16 је приказан главни прозор, односно кориснички интерфејс који се појављује приликом покретања програма Angle. Бројевима су означена поља посредством којих програм извршава главне функције: 1- Трака која садржи основне функције и позива остале прозоре, 2- прозор унутар кога задајемо основне параметре детектора, 3- прозор за дефинисање састава и облика контејнера унутар кога се налази извор, 4- прозор за параметризацију геометрије узорак-детектор, односно дефинисање њихвог међусобног положаја и постојања међуслојева и апсорбера између узорка и детектора, 5- прозор унутар кога задајемо карактеристике извора (узорка), 6- прозор који садржи додатне параметре као што су прецизност калкулације, сет енергија од интереса, криву ефикасности, итд. [Angle 4,2016]



Слика 4.16. Корисничко окружење ANGLE 4 софтвера [Angle 4, 2016]

#### 4.3.4 FRAM софтвер

The **Fixed-energy Response-function Analysis with Multiple efficiency (FRAM)** је софтверски код који је првобитно намењен за рад са полупроводничким HPGe детекторима високе резолуције, а од своје нове верзије (V6.1) и са лантанијум бромидним (LaBr<sub>3</sub>) и кадмијум-цинк-телуридним (CaZnTe) детекторима средње резолуције који по својој природи спадају у сцинтилационе детекторе. Овај софтвер је доживео свој развој средином 1980тих година у Los Alamos National Laboratory, а данас је комерцијализован од стране фирми *Ametek ORTEC* и *Mirion TECHNOLOGIES (CANBERRA)*. FRAM служи за анализу гама спектра од узорака који садрже плутонијум и/или уранијум. Унутар ових спектра се налазе све потребне информације како би софтвер прорачунао изотопске заступљености (односе) радионуклида присутних у мереном узорку <sup>238-241</sup>Pu, <sup>241</sup>Am, <sup>235</sup>U, <sup>237</sup>Np, итд., независно од облика, димензија, величине и физичког и хемијског састава узорка као и мерне геометрије и карактеристика контејнера узорка. Резултати се добијају користећи само податке садржане у спектру и физичке константе. Другим речима, за анализу FRAM софтвером и добијање резултата, као што су изотопска заступљеност и калориметријски подаци (снага произведена фисијом специјалних нуклеарних материјала), нам није потребна нити енергетска нити калибрација за ефикасност детекције. FRAM код је структуриран на такав начин да кориснику пружи онолико контроле колико жели над анализом како би се повећала свестраност и применљивост овог софтвера. Ово се постиже коришћењем сетова параметара, који садржи све параметре потребне за анализу гама спектра. То укључује информације о изотопима које треба анализирати, гама пиковима које треба користити, нуклеарне податке за изотопе и гама зраке, услове прикупљања података као што су појачање (gain), нула (pole zero), број канала, региони спектра за анализу и дијагностички тест параметара. [Zsigrai et al.,2017; ORTEC FRAM.,2022; Sampson,1992; Sampson,2003].

Формула коју *FRAM* софтвер користи за калкулацију изотопских односа дата је у једначини (4.9) [Sampson,2003]:

$$\frac{N^i}{N^k} = \frac{C(E_j^i)}{C(E_l^k)} \cdot \frac{T_{1/2}^i}{T_{1/2}^k} \cdot \frac{BR_l^k}{BR_l^i} \cdot \frac{RE(E_l)}{RE(E_j)} \quad (4.9)$$

где нам је:

- $C(E_j^i)$  површина фотопика  $j$  енергије  $E_j$  емитованог од стране изотопа  $i$
- $T_{1/2}^i$  период полураспада изотопа  $i$
- $N^i$  број језгара изотопа  $i$
- $BR_j^i$  однос гранања (број зрака по распаду) за гама зрак енергије  $E_j$  изотопа  $i$
- $RE(E_j)$  – релативна ефикасност за детекцију фотопика енергије  $E_j$ . Укључује ефикасност самог детектора, ефекат самоапсорпције унутар узорка и атенуације унутар материјала за паковање или оних који се налазе између детектора и узорка.

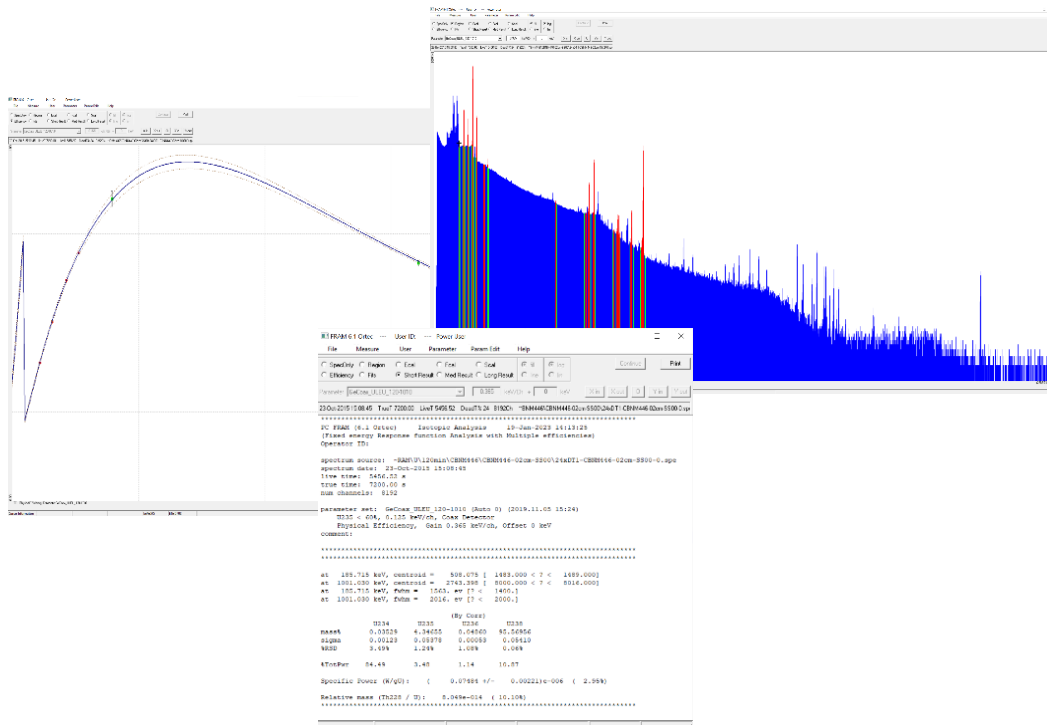
Потреба за односом ефикасности елиминише проблеме везане за апсолутна мерења ефикасности детекције као што су репродукцибилност тачних услова мерења и геометрије и чини овај метод применљивим на узорке произвољног саства, величине и облика. У најранијим применама метода за мерење плутонијумских изотопских односа, узета је претпоставка да два гама пика који се користе у прорачуну морају бити енергетски довољно близу како би се могле занемарити разлике у



самоапсорпцији, апсорпцији у материјалима за паковање и ефикасности детектора. Препорука за максималну енергетску разлику два зрака у једном пару била је 10 keV. Разлике у ефикасности, чак и код парова гама пикова блиских енергија могу бити значајне, и биле су узрок за одређена одступања која су уочена у почецима развоја ове методологије. Кључ за њену успешност било је инкорпорирање интринсичног самоодређивања криве релативне ефикасности из самог гама спектра сваког узорка. Уочено је да се из гама спектра узорка може одредити однос релативних ефикасности на одређеним енергијама. Из једначине (4.9) (посматрајући гама пикове једног радиоизотопа) може се видети да је количник површине фотопика дате енергије  $E_j$  и односа гранања истог сразмеран ефикасности на енергији  $E_j$ :

$$\frac{C(E_j^i)}{BR_j^i} \propto \left[ \frac{N^i \ln 2}{T_{1/2}^i} \right] \cdot \varepsilon(E_j) \quad (4.10)$$

Из једначине 4.10 следи да овај количник дефинише облик криве релативне ефикасности као функције енергије. За одређивање релативне ефикасности се могу користити гама пикови од различитих изотопа, докле год они у узорку имају исту физичку дистрибуцију. Криве од различитих изотопа исте физичке дистрибуције имају исти облик, само се разликују по амплитуди, која је окарактерисана чланом у угластој загради у једначини 4.10. За развој описане методологије заслужни су *Jack Parker* и *Doug Reilly*, и она представља основу за већину данашњих софтвера за изотопску анализу, укључујући и FRAM софтвер. Више детаља везаних за саму анализу и калкулације, могу се наћи у [*Sampson,2003; FRAM OM,2003*]. На слици 4.17 приказано је корисничко окружење FRAM софтвера.



Слика 4.17. Кориснички интерфејс PC FRAM софтвера.

---

## 5. РЕЗУЛТАТИ ИСТРАЖИВАЊА – АНАЛИЗА РАДИОАКТИВНИХ МАТЕРИЈАЛА

---

Идеја за експериментални рад урађен у оквиру ове докторске дисертације, потекла је управо од специфичности узорака који се појављују у области нуклеарне форензике, пре свега у погледу њиховог облика и хемијског састава. Узимајући у обзир нуклеарне материјале, они се могу појавити у, наизглед, металној форми (најчешће су то делови или цели горивни елементи), затим у прашкастој форми (где се углавном ради о узорку који потиче од једне од фаза циклуса производње горивних елемената) па и у форми течних раствора који садрже одређене количине нуклеарних и/или других радиоактивних материјала. Поменути узорци могу бити произвољног облика, састава и хемијске форме. У зависности од врсте анализе и циља исте, ово може или не мора представљати препреку. У експерименталном делу ове дисертације фокусирали смо се на методе недеструктивне анализе материјала, тачније гама спектрометрију. Као што је претходно речено, помоћу гама спектрометрије се може одредити старост узорка и његов изотопски састав, на шта облик, састав и хемијска форма узорка немају утицај. Међутим, када имамо за циљ квантификацију радионуклида који се налазе у узорку, конкретно добијање активности истих, поменути параметри узорка могу имати велики утицај на резултате анализе, зависно од конкретне геометрије мерења.

У првом делу истраживања спроведеног у оквиру ове тезе, акценат је стављен на испитивање утицаја облика узорка на резултат гамаспектрометријске анализе, односно утицаја на функцију ефикасности детекције. Када се прича о ефикасности детекције, на овом месту ће бити дато појашњење који типови ефикасности постоје, који су се користили у овом истраживању, као и које методе постоје за рачунање истих.

У зависности у ком контексту се ефикасност детекције употребљава, могу се дефинисати четири различита типа:

- **Релативна ефикасност** – дефинише се (за дати детектор) као однос брзине одброја унутар фотопика енергије 1332.5 keV када се тачкасти  $^{60}\text{Co}$  извор налази на удаљености 250 mm од (HPGe) детектора на вертикалној оси детектора и брзине одброја на фотопику 1332.5 keV када је исти извор мерен под истим условима на NaI(Tl) сцинтилационом детектору димензија 76 x 76 mm. Релативна ефикасност се користи за карактеризацију превасходно коаксијалних детектора, будући да они имају ефикасност детекције на задовољавајућем нивоу у енергетском опсегу од интереса. Планарни детектори нису ни дизајнирани за рад на поменутим енергијама (1332 keV) [Gilmore, 2008].
- **Апсолутна фотопик ефикасност** – у рутинској гамаспектрометрији, управо се користи овако дефинисана ефикасност детекције и представља један од најзначајнијих параметара. Помоћу ње доводе се у везу површина под фотопиком (укупан одброј) и активност коју исти представља, односно површина пика тачно одређене енергије и број гама фотона емитованих од стране извора. Она зависи од геометрије извор-детектор. Све рачунате ефикасности у експерименталном делу тезе су апсолутне фотопик ефикасности, и рачунају се користећи релацију 5.2 [Gilmore, 2008].
- **Апсолутна тотална ефикасност** – представља однос броја гама фотона свих енергија емитованих од стране извора и одброја у целом спектру (број детектованих гама фотона свих

- енергија). У овом случају се, за разлику од фотопик ефикасности, поред фотопикова у обзир узима и комптонски континуум [Gilmore,2008].
- **Сопствена ефикасност** – (било фотопик или тотална) повезује одброј у спектру са бројем инцидентних фотона који стужу до детектора. Овај тип ефикасности представља параметар самог детектора и независна је од геометрије извор-детектор [Gilmore,2008].

Постоје 3 различите методе за одређивање ефикасности детекције, а то су релативни, апсолутни и полуемпиријски приступ.

- **Релативна метода** – је често примењивана у рутинској гама спектрометрији. Користи се сертификовани референтни извор познате активности, за који се израчунава ефикасност детекције и потом пореди са непознатим узорком који је мерен под истим експерименталним условима као и извор. Циљ је да облик и матрица (састав) сертификованог узорка буду што сличнији непознатом узорку како би се могло урадити 'један-на-један' пресликавање функције ефикасности. Овај приступ је веома прецизан јер нема пуно фактора који доприносе мерној несигурности, али је такође и прилично непрактичан у погледу великог броја различитих извора сертификованих матрица којим се мора располагати како би се покрио дијапазон непознатих узорака који се могу наћи на мерењу [Angle 4,2016].
- **Апсолутна метода** – имплементира софтверске пакете као што је GEANT4 пакет који користи *Monte Carlo* методу, о коме ће више речи бити у даљем тексту. Овај приступ је веома тачан бући да је заснован на чисто математичким (симулационим) калкулацијама. Да би функционисао, овај метод захтева познавање великог броја физичких параметара, који описују детектор, узорак и сам процес детекције, и у већини случајева (у зависности од комплексности детекторског система) подразумева велика времена "израчунавања". Може се десити да дође до нарушења прецизности резултата услед великих фактора пропагације грешака [Angle 4,2016].
- **Полуемпиријска метода** – ради тако што комбинује позитивне стране апсолутног и релативног приступа рачунању ефикасности детекције, а самим тим и умањује њихове недостатке. Састоји се из два дела:
  - Калибрације - где се рачуна референтна крива ефикасности за дати детектор и геометрију (експериментални део) употребом било ког стандардног референтног материјала
  - Калкулације непознате активности.

Софтвери попут EFFTRAN-а и Angle4 користе управо овај приступ који се показао као веома користан у рутинској гамаспектрометријској пракси, будући да елиминише потребу за поседовањем великог броја сертификованих референтних извора, било који сертификовани извор је довољан за калибрацију, а потом се врши трансфер ефикасности на нову геометрију и/или нову матрицу узорка од интереса. И код примене ових софтвера битно је прецизно дефинисати детектор, па потенцијални проблем такође може бити чињеница да подаци о прецизним димензијама кристала и других компоненти детектора нису увек доступни [Angle 4,2016].

Разлог за испитивање утицаја облика узорка на резултате гамаспектрометријске квантитативне анализе произилази из чињенице да у рутинским гамаспектрометријским лабораторијама<sup>9</sup> постоји потреба за цилиндричним обликом узорка. Поред овог захтева пожељно је да узорак буде што сличнији по облику и елементарном саставу стандардном референтном материјалу. Услов да анализирани узорак буде цилиндричног облика постоји због ограничења софтвера за трансфер ефикасности (као што су то EFFTRAN и Angle), који могу да функционишу, односно дају резултате само ако је узорак који је постављен на детектор цилиндричног облика, односно аксијално симетричан у односу на вертикалну осу кристала детектора.

### **5.1 Тестирање могућности Angle и EFFTRAN софтвера у поређењу са GEANT4 симулацијама у гама спектрометрији цилиндричних и нецилиндричних геометрија узорака**

---

Основни циљ сваке рутинске гамаспектрометријске лабораторије је прецизно одређивање функције ефикасности детекције како би се добили прецизни резултати мерења. У стандардној гамаспектрометријској пракси, одређивање активности радионуклида који су нискоенергетски емитери може представљати својеврстан изазов. Гама спектрометрија се често користи као главни алат за иницијалну карактеризацију како би се одредили основни параметри непознатог узорка који је пронађен на терену, поготово ако постоји сумња да тај конкретни материјал може припадати материјалима изван регулаторне контроле и бити део криминалне истраге. У оваквим ситуацијама главну забринутост представља уранијум, будући да један од његових изотопа <sup>235</sup>U, може да се користи за потребе производње нуклеарне бомбе. Гама спектрометрија представља најприменљивију недеструктивну технику у области нуклеарне форензике за одређивање изотопског састава уранијума.

Први део истраживања бавио се тестирањем предности и мана полуемпиријских метода коришћењем два софтвера (EFFTRAN и Angle) као и симулационе методе коришћењем пакета GEANT4 примењеним на узорке који садрже изотопе уранијума и торијума. Посебна пажња посвећена је нецилиндричним геометријама узорака. Циљ овог истраживања био је да се испитају могућности рутинске гамаспектрометријске лабораторије да одговори на догађај везан за нуклеарну безбедност. На основу добијених резултата дате су опште препоруке за коришћење полуемпиријских и симулационих метода.

Један од значајних изазова у нискоенергетској гама спектрометрији (енергије испод 200 keV) представља тачно одређивање ефикасности детекције у овом региону које се показало од пресудног значаја за добијање прецизних резултата концентрације активности изотопа уранијума. Као што је већ речено, гама спектрометрија се у нуклеарној форензици користи као недеструктивна техника. Феномен нуклеарног кријумчарења и недозвољене трговине нуклеарним материјалом довео је до развоја нуклеарне форензике. Као релативно млада научна дисциплина, нуклеарна форензика представља начин да се знања и вештине из домена нуклеарне физике користе и примене као помоћ надлежнима у криминалистичким истрагама [Mayer *et al.*, 2005]. У случају специјалног нуклеарног материјала који садржи уранијум, гама спектрометрија се може користити за одређивање укупног

---

<sup>9</sup> Лабораторије које нису фокусиране на анализу нуклеарног материјала, већ обрађују узорке из животне средине, који су, по правилу, знатно ниже активности од нуклеарних.

садржаја нуклеарног материјала, старости материјала (време протекло од последњег обогаћивања), присуства репроцесуираног уранијума и присуства физионих продуката. Поред тога, као недеструктивна метода за анализу узорака, лабораторијске примене гама-спектрометрије за потребе нуклеарне форензике показале су се као добре за прецизно одређивање изотопског састава радионуклида који емитују гама зрачење у узорку и за квантификацију количине сваког присутног радиоизотопа [Stanic et al.,2019].

Уранијум је природни елемент из групе актинида, и може се наћи унутар Земљине коре у концентрацији од 3 ppm ('parts per million' – део у милион). У саставу природног уранијума који се добија ископавањем руде налазе се три изотопа (у значајним концентрацијама), а то су  $^{234}\text{U}$  (0.0054% заступљености),  $^{235}\text{U}$  (0.72% заступљености) и  $^{238}\text{U}$  (99.27% заступљености) [Ebaid,2009]. Већина најинтензивнијих гама линија које емитују сви изотопи уранијума налази се у нискоенергетском делу гама спектра, а управо овај енергетски регион представља изазов у било којој гама спектрометријској анализи како је већ речено. Да би се добила било каква информација о радионуклиду од интереса из гама спектра, мора бити испуњен главни предуслов, а то је тачно читавање брзине одброја из нискоенергетског дела спектра. То може бити сложено из више разлога, а један од њих је и позиционирања гама линије у области која природно има велик фон и лоше (неадекватно) дефинисане функције ефикасности детекције за овај енергетски опсег. Разлог за то може бити недовољно добра квантификација ефеката самоапсорпције нискоенергетских гама фотона у узорку. С обзиром на наведено, основни проблем у нискоенергетској гама спектрометрији је тачно одређивање функције ефикасности детекције у овом региону и показало се да је то од пресудног значаја за добијање прецизних резултата за концентрацију активности уранијума.

Узорци пронађени на терену су најчешће неправилног облика – нецилиндричног, и уколико желимо да узорак остане неоштећен за даљу анализу не можемо му променити облик и конституцију (хемијску форму). Као што је већ поменуто, у рутинској гамаспектрометрији калибрација германијумских детектора се врши за цилиндричну геометрију узорка. Да би се те калибрације могле користити за било који узорак који није нужно цилиндричан, мора се направити задовољавајуће добра апроксимација његове геометрије. Такође, густина, састав и садржај радионуклида узорака пронађених на терену могу варирати и није лако пронаћи адекватну апроксимацију која је потребна у математичким прорачунима ефикасности детекције.

Типична лабораторија за гама спектрометрију има на располагању ограничене ресурсе у рутинској пракси. На тржишту су доступни аутоматски, комерцијални софтвери за карактеризацију узорака пронађених на терену за које се потенцијално сумња да могу бити нуклеарни материјали као што је MGAU, MGAU++ (*Multi-Group Analysis for Uranium*), PC FRAM [ORTEC FRAM.,2022; Gunnick et al.,1994; MGA++,2023]. Ови софтвери за потребе анализе гама спектра користе функције деконволуције за мултиплете у спектру. Али, с друге стране, имајући у виду да анализа нуклеарног и другог радиоактивног материјала за потребе нуклеарне форензике није тако честа, од велике је важности да се тестирају и могућности и ограничења доступних кодова који користе математичке прорачуне (EFFTRAN и Angle) за трансфер ефикасности која би се могла користити за даљу прецизнију експерименталну анализу гама спектра. Ови математички кодови нису посвећени само анализи садржаја уранијума и/или плутонијума и стога се чешће налазе у лабораторији за гама спектрометрију. Уз одговарајуће прилагођавање, кодови математичког прорачуна трансфера ефикасности могу дати прихватљиве резултате за концентрацију активности радиоизотопа

присутних у узорку од интереса што ће бити показано у даљем делу на конкретним резултатима мерења.

У бројним објављеним студијама које су се фокусирале на утицај различитих матрица, густина и састава узорака у геометријама цилиндричног узорка на одређивање ефикасности, закључено је да тренутно доступни математички кодови за трансфер ефикасности дају значајна одступања у резултујућим концентрацијама активности радионуклида из нискоенергетског дела спектра [Kaminski et al.,2014; Tucaković et al.,2017; Stanic et al.,2019]. Идеја ове студије је да се испита применљивост две полуемпиријске методе (користећи софтвере EFFTRAN и Angle) у поређењу са симулационом методом (GEANT4) за анализу узорака нецилиндричне и цилиндричне геометрије на тај начин што ће облик узорка бити пажљивије и прецизније дефинисан. Предмет истраживања су узорци који садрже изотопе уранијума и/или торијума.

#### *Карактеристике детектора*

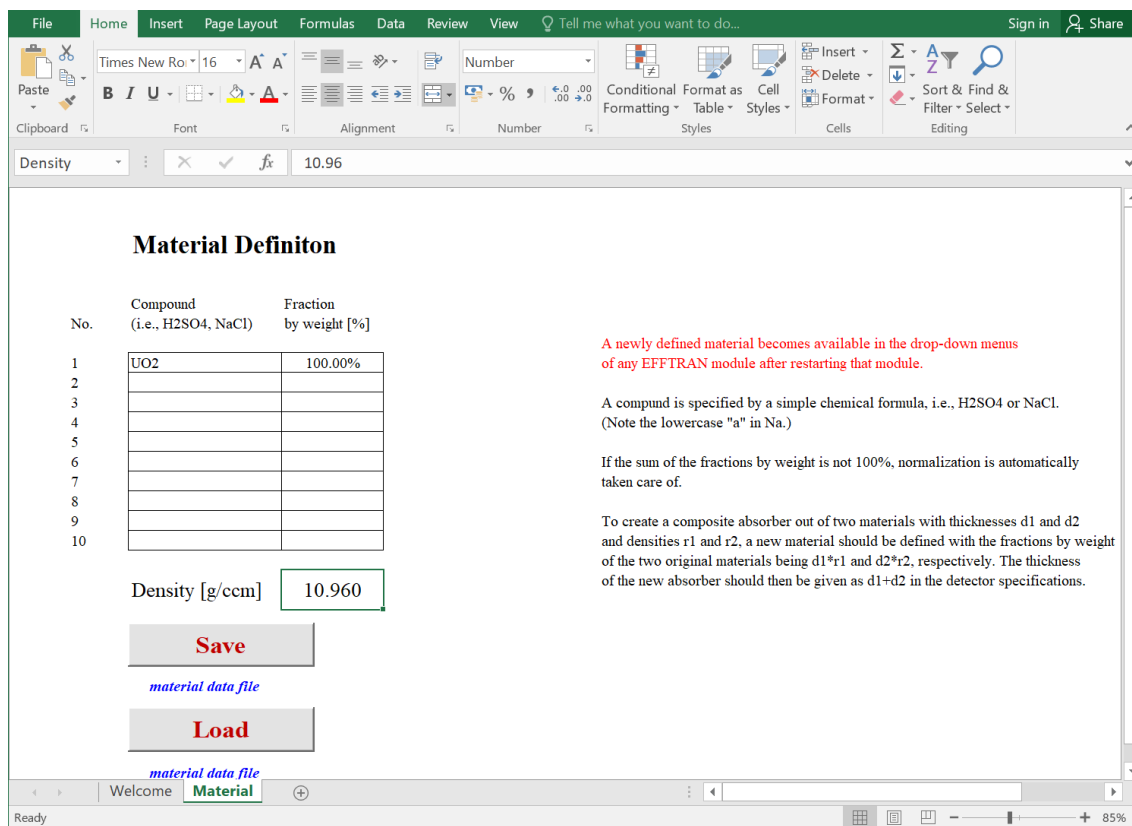
За потребе овог дела истраживања коришћен је HPGe коаксијални детектор проширеног енергетског опсега, произвођача CANBERRA и серијске ознаке GX10021. Активна запремина кристала детектора је 380 cm<sup>3</sup> и детектор има релативну ефикасност детекције од 100%. Капа детектора има прозор дебљине 0.89 mm који је направљен од карбонских влакана високе чврстоће, што обезбеђује 85% трансмисије за фотоне енергије преко 15 keV и готово 100% трансмисије за фотоне енергије изнад 20 keV [Mrdja et al.,2019]. Детектор има енергетску резолуцију од 1.4 keV на енергији 122 keV, и резолуцију од 2.0 keV на 1332 keV [Stanic et al.,2019]. Овај HPGe детектор је смештен у комерцијалну, претежно оловну, пасивну жаштиту која обезбеђује веома низак фон. Заштита је такође произвођача CANBERRA, производне ознаке 777B. Укупна маса ове заштите је 1633 kg. Дебљина оловне заштите је 15 cm. Спољашњих 125 mm заштите је направљено од нискофонског олова, док је унутрашњих 25 mm направљено од селекционисаног олова које има садржај <sup>210</sup>Pb од 20 Bq kg<sup>-1</sup>, дебљина овог унутрашњег слоја је довољна да заустави закочно зрачење произведено у спољашњем слоју. Модел 777B има додатни слој нискофонског калаја дебљине 1 mm који належе на унутрашњи слој олова, а на поменути слој калаја належе слој бабра високе електролитичке чистоће дебљине 1.5 mm. Као што је претходно напоменуто, калај служи да заустави флуоресцентне X-зраке од К-љуске олова енергије 75-84 keV, а бакар се користи да заустави X-зраке од К-љуске калаја, енергија 25-28 keV. Детекторски систем се састоји од HPGe детектора, извора високог напона (4500 V), појачавача и мултиканалног анализатора. Сам детектор у комерцијалној заштити приказан је на слици 5.1.



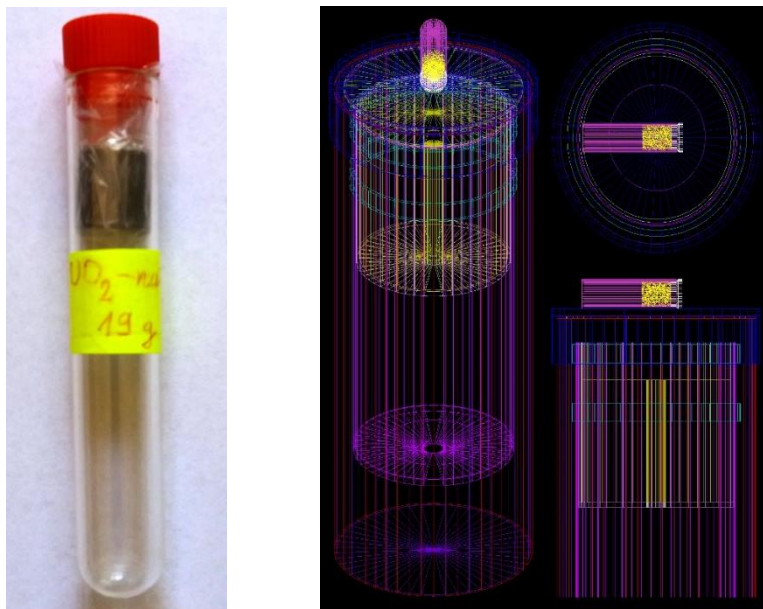
Слика 5.1. HPGe коаксијални детектор произвођача *CANBERRA* и серијске ознаке GX10021.

#### Узорци

**Узорак 1А** је пелет уранијум диоксида ( $\text{UO}_2$ ). Цилиндричног је облика, пречника 11.2 mm и висине 15.1 mm и смештен у стаклену епрувету дебљине зида од 1 mm. Постављен је хоризонтално на поклопац детектора и измерен. Саму епрувету није било могуће поставити усправно због облика, а и много интересантнији случај је био да геометрија не буде цилиндрична. Узорак се на детектору снимао преко ноћи у временском интервалу од  $7.5 \cdot 10^4$  s. Због чињенице да су EFFTRAN и Angle софтвери дизајнирани да раде само са вертикалном, аксијално-симетричном цилиндричном геометријом узорка, у овом случају неопходно је било да се дефинише приближна еквивалентна геометрија узорка што значи да се било која неправилна геометрија узорка "представи" у софтверу што сличније цилиндричном облику колико је могуће. Ова апроксимација свакако уноси додатну мерну несигурност у прорачун. У GEANT4 нема потребе за апроксимацијом са еквивалентном геометријом узорка јер се облик узорка може дефинисати са детаљима што је предност симулационог алата. База еквивалентног цилиндра је у случају *узорка 1А* узета да буде половина површине омотача положеног  $\text{UO}_2$  пелета. Ова одлука је донета из разлога што *узорак 1А* има изразито велику густину, те стога само гама зраци из слоја блиског површини пелета могу да напусте исти. Висина еквивалентног цилиндра је израчуната на основу претпоставке да пелет  $\text{UO}_2$  и ефективни цилиндар имају исту запремину. Узорак је, дакле, дефинисан као цилиндар пречника 18.33 mm и висине 5.6 mm. За матрицу узорка узет је  $\text{UO}_2$  густине  $10.96 \text{ g cm}^{-3}$ , и она је дефинисана у EFFTRAN софтверу, што је приказано на слици 5.2. Стваран изглед узорка као и симулирана поставка мерења добијена у пакету GEANT4 приказани су на слици 5.3.



Слика 5.2. Дефинисање матрице узорка *1A* у EFFTRAN софтверу.

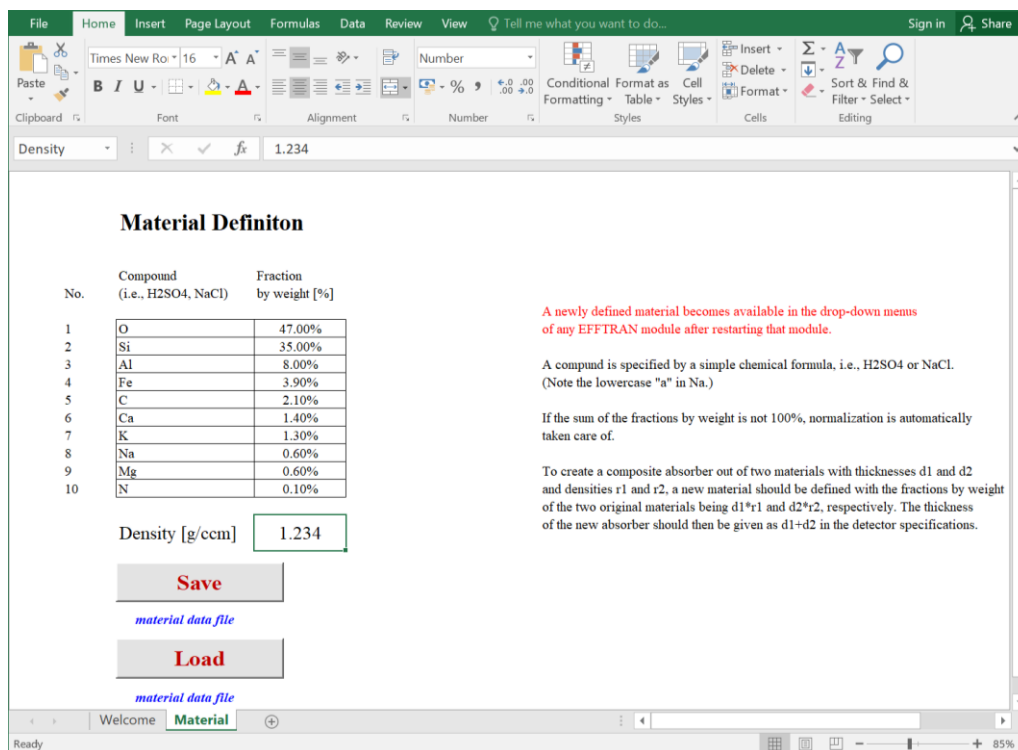


Слика 5.3. Узорак *1A* – пелет  $\text{UO}_2$  (лево) и симулирана поставка мерења у оквиру GEANT4 пакета (десно).



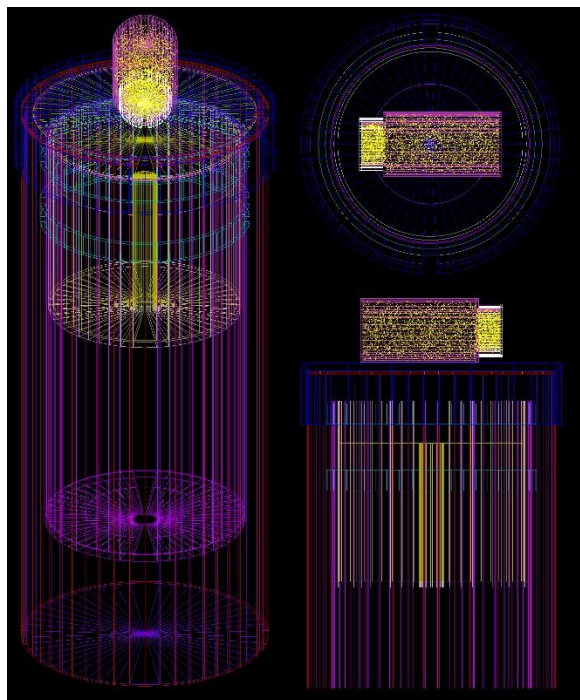
**Узорак 2А** је IAEA референтни материјал, уранијумска руда (ознаке IAEA-RGU-1) [RGU-1,1987], упакована у хоризонтално постављену HDPE<sup>10</sup> бочицу дебљине зида 1 mm, пречника 27 mm и висине 48 mm. Еквивалентна геометрија узорка био је цилиндар пречника 42.29 mm и висине 18.4 mm. Време аквизиције спектра је  $8.3 \cdot 10^4$  s. За ефективну површину базе цилиндра узет је попречни пресек хоризонтално постављене бочице, а висина је израчуната на основу претпоставке да хоризонтална бочица уранијумске руде и ефективни цилиндар имају исту запремину. Узорак 2 је такође упакован у стандардну цилиндричну геометрију пречника 69 mm и висине 60 mm. Матрица узорка је узета као земља са измереном густином  $(1.23 \pm 0.05)$  gcm<sup>-3</sup>. Узорак 2А има референтну вредност за концентрацију активности <sup>238</sup>U од  $(4.94 \pm 0.49)$  kBqkg<sup>-1</sup>. Дефинисање матрице узорка 2А приказано је на слици 5.4. а симулирана поставка мерења добијена у пакету GEANT4 приказана је на слици 5.5 у геометрији хоризонталног вијала, односно на слици 5.6 у стандардној цилиндричној геометрији.

**Узорак 3А** је комад металне гвоздене плоче, пореклом из авионског мотора са високим садржајем <sup>232</sup>Th. Уједначене је дебљине од 2 mm, неправилног је облика, отприлике 32 x 38 mm. Еквивалентна геометрија узорка узета је да буде цилиндар пречника 39.36 mm и висине 2 mm. Време аквизиције спектра је  $7.9 \cdot 10^4$  s. Ефективна површина базе цилиндра је узета као површина неправилне металне плоче, с обзиром да је апроксимативно квадратног облика. Матрица узорка је узета као гвожђе (Fe), густине 7.874 gcm<sup>-3</sup> упаковано у HDPE контејнер са дебљином зида од 1 mm. Дефинисање матрице приказано је на слици 5.7, док је симулирана поставка мерења добијена у пакету GEANT4 приказана на слици 5.8.

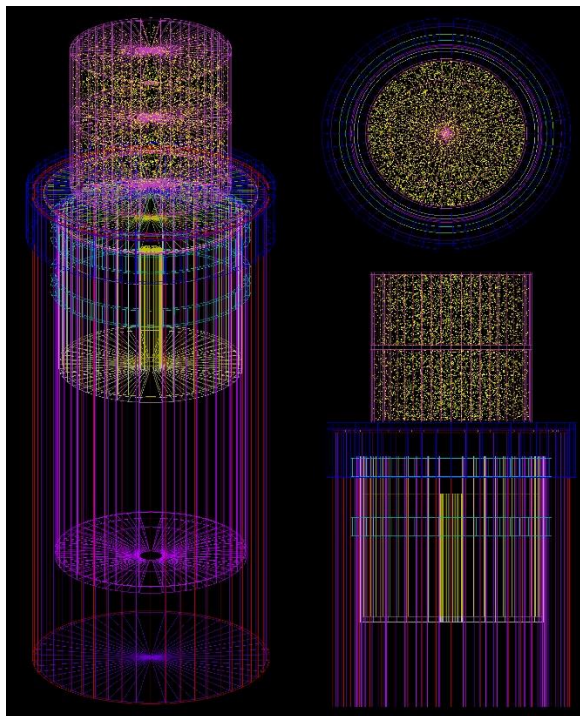


Слика 5.4. Дефинисање матрице узорка 2А у EFFTRAN софтверу.

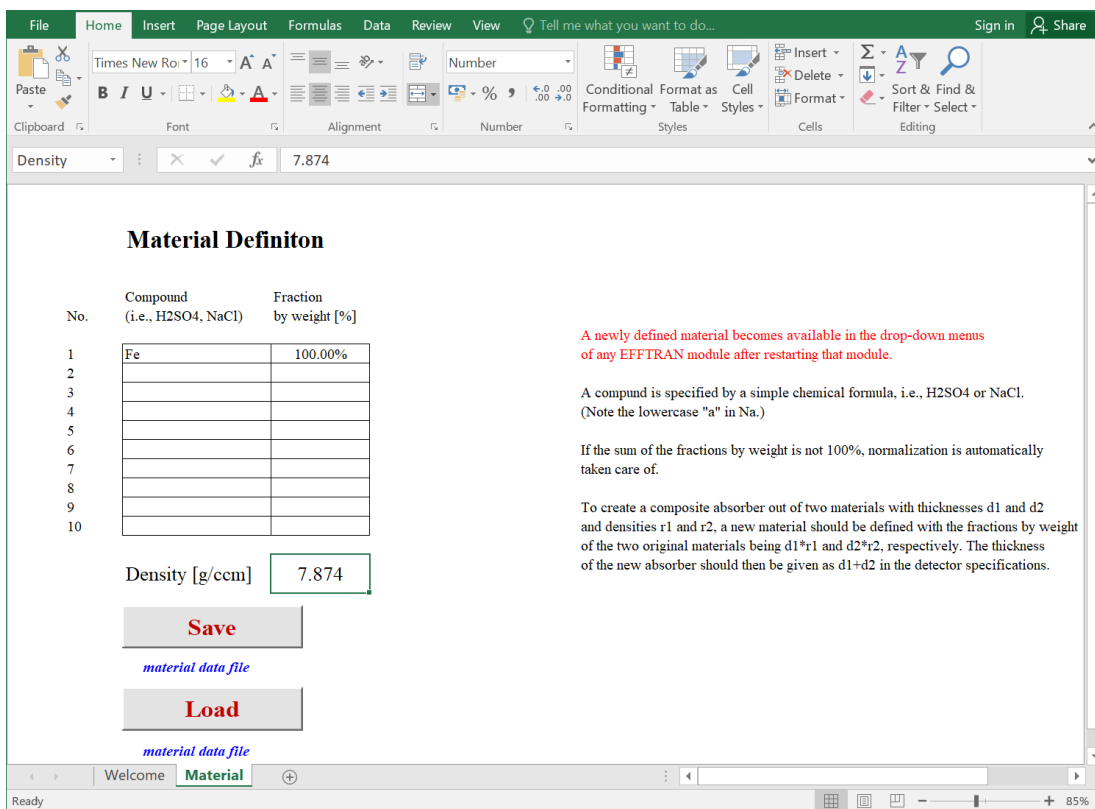
<sup>10</sup> High Density PolyEthylene – полиетилен високе густине



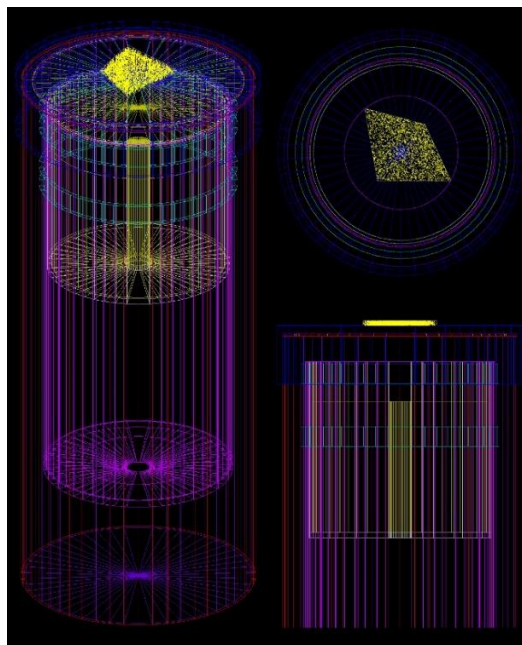
Слика 5.5. Симулирана поставка мерења за узорак 2А у геометрији хоризонталног виала у оквиру GEANT4 пакета.



Слика 5.6. Симулирана поставка мерења за узорак 2А у стандардној цилиндричној геометрији у оквиру GEANT4 пакета.



Слика 5.7. Дефинисање матрице узорка 3А у EFFTRAN софтверу.



Слика 5.8. Узорак 3А – гвоздена плочица (лево) и симулирана поставка мерења у оквиру GEANT4 пакета (десно).

*Прорачун*

Као што је наведено у уводним реченицама овог поглавља, ефикасности детекције су рачунате користећи EFFTRAN и Angle софтвере, и потом су поређене са ефикасностима добијеним путем GEANT4 софтверског пакета.

Посматрајући већину гама линија разматраних радионуклида у анализираним узорцима, корекциони фактори за коинцидентна сумирања добијени EFFTRAN софтвером су близу 1 (јединице) и стога је разлика у вредностима ефикасности детекције добијених EFFTRAN и Angle софтвером (верзија Angle софтвера коришћеног у овом истраживању (Angle 4) не укључује COI факторе) генерално мања од 8%. Дакле, у овом случају, COI фактори нису били од великог значаја за добијање коначних резултата. Калибрација ефикасности представља саставни део сваког гамаспектрометријског мерења. Након што су спектри измерени, може се приступити процесу прорачуна референтне криве ефикасности (REC). Прво, након мерења добро дефинисаног извора<sup>11</sup> са познатом активношћу, врши се селекција пикова за које се ради анализа активности за специфичне радионуклиде<sup>12</sup>. Тада се експериментална ефикасност добија користећи једначину 5.1:

$$\varepsilon_{ref} = \frac{N}{t \cdot p_{\gamma} \cdot A} \quad (5.1)$$

Слично као што је описано у поглављу 4.3,  $N$  представља укупан број детектованих гама фотона одређене енергије у спектру стандарда,  $t$  је време аквизиције,  $p_{\gamma}$  представља квантни принос, односно вероватноћу емисије фотона дате енергије при распаду док је  $A$  активност радионуклида у стандарду, коригована на распад. Софтвер Angle 4 не користи корекције на коинцидентно сумирање, док EFFTRAN то узима у обзир. Када имамо израчунате ефикасности за дискретне енергије за стандардни референтни материјал, могу се конструисати референтне криве ефикасности, за различите детекторе, геометрије узорка и матрице. Знајући детаљне параметре детектора, узорка и стандардног референтног материјала, EFFTRAN и Angle софтвер могу израчунати непознате ефикасности за било који непознати узорак.

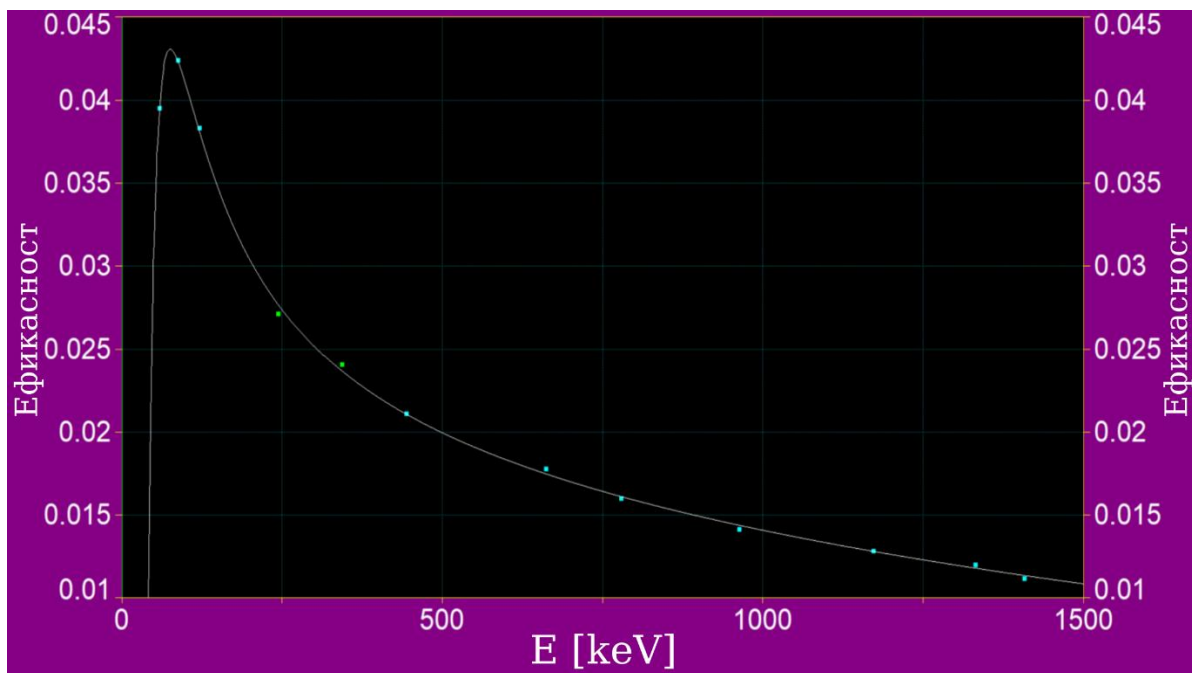
Као стандардни референтни материјал у свим мерењима коришћен је сертифициковани извор Чешког метролошког института типа CBSS-2, који у себи садржи мешавину различитих радионуклида ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ), како би покрио широк енергетски интервал 59-1836 keV. Ови радионуклиди су имплантирани у матрицу силиконске смоле, са декларисаним елементарним саставом и густином  $0.985 \text{ gcm}^{-3}$ . Овако дефинисан материјал је упакован у контејнер цилиндричне геометрије, пречника 70 mm и висине 69 mm.

Да би се унутар софтверских пакета EFFTRAN и Angle израчунале непознате ефикасности узорка од интереса, у оквиру семиемпиријске методе, потребно је направити референтне криве ефикасности (REC). За детектор CANBERRA GX20021 поменута крива је израчуната помоћу софтвера TableCurve 2D [TableCurve,2023], унутар кога је направљена фит функција експериментално добијених ефикасности које су срачунате помоћу стандардног референтног

<sup>11</sup> Стандардни референтни материјал који има сертифицивану концентрацију активности сваког радионуклида који се налази у њему као и јасно дефинисан састав и хемијску форму матрице.

<sup>12</sup> Мора се одрадити корекција номиналне активности на радиоактивни распад, односно израчунати активности појединих радионуклида на дан мерења.

материјала CBSS-2. *REC* је графички приказана на слици 5.9, док је функција фита приказана у једначини 5.2.



Слика 5.9. Референтна крива ефикасности за детектор *CANBERRA GX20021*.

$$y = a + b \cdot (\ln x)^2 + c \cdot \frac{\ln x}{x^2} + \frac{d}{x^2} \quad (5.2)$$

Вредности појединих параметара унутар једначине 5.2 су следеће:  $a=0.0378(9)$ ,  $b=-0.0051(21)$ ,  $c=198(9)$  и  $d=-771(31)$ . Сама функција у представља ефикасност детекције док је са  $x$  представљена енергија. У поређењу са полуемпиријском методом, за симулациону методу уопште није потребан референтни материјал. Због тога је симулациони метод тестиран са истом групом узорака.

Монте Карло симулација, кроз GEANT4 симулациони пакет [Agostinelli et al.,2003], развијена је у сврху репродукције одзива германијумских детектора, како би се добили експериментални спектри детектора у широком спектру примена [Jokovic et al.,2009; Krmar et al.,2013]. GEANT4 омогућава опис експерименталне поставке представљене структуром геометријских запремина сачињених од одређених материјала, и праћење физичких процеса. У симулацији, германијумски детектори, заједно са целом поставком, конструисани су веома детаљно, према спецификацијама података произвођача. У овом истраживању коришћена је верзија 4.9.5. GEANT4 за добијање ефикасности детекције за различите геометрије запреминских (волуминозних) извора постављених испред HPGe детектора (Слике 5.3, 5.5, 5.6, 5.8). У циљу извршења симулација, детектор је моделован узимајући у обзир техничке карактеристике добијене од произвођача, осим централне шупљине, чији су параметри величине процењени [Nikolic et al.,2014]. За сваку гама енергију,  $10^6$  фотона је генерисано изотропно из одређеног извора. У симулацијама је узет у обзир елементарни састав, као и густина матрица узорака и извора. Фотопик ефикасност за сваку енергију је пронађена као однос броја фотона детектованих под фотопиком дате енергије и броја генерисаних фотона. У симулацијама је

примењен стандардни електромагнетни пакет GEANT4 са следећим параметрима  $MC$  симулације: 1000 nm за пресек праћења и 990 eV за енергетски пресек.

Активност сваког од узорака рачуната је у складу са релацијом 5.1.

Комбиновану мерну несигурност за претходно дефинисану активност сваког од узорака у случају када ефикасност добијамо помоћу EFFTRAN и Angle софтвера  $u(A)$ , рачунамо помоћу следеће релације:

$$u(A) = \sqrt{(\delta\varepsilon)^2 + (\delta N)^2} \quad (5.3)$$

$\delta\varepsilon$  представља мерну несигурност фита за функцију ефикасности у комбинацији са релативном несигурношћу активности радиоактивног стандарда секундарног референтног материјала и несигурношћу уведеном процесом производње секундарног референтног материјала коју је дао произвођач (CBSS-2), коришћеног у методи трансфера ефикасности.  $\delta N$  је мерна несигурност одброја. Несигурности које се уносе преко  $t$  и  $p$ , су занемарљиве. Мерна несигурност  $u(A)$  за све анализирани енергије није прелазила 10% на нивоу поверења од  $2\sigma$ .

У GEANT4 пакету, приликом рачунања мерне несигурности, узета је у обзир претпоставка предочена у наредних пар реченица. Главне варијабле које су унете у симулацију су 9 карактеристичних димензија детектора (пречник и дужина кристала, пречник и дужина кристалне шупљине, горњи и бочни мртви слој, пречник капе детектора, дебљина прозора и размак између прозора и кристала) и 4 карактеристике које се односе на узорак (запремина узорка, материјал од ког су узорак и контејнер, односно њихова густина и хемијски састав, и размак између контејнера и апсорбера). За ове варијабле, осим хемијског састава узорка и контејнера, несигурност се може проценити на 1% за геометрију кристала и размака између контејнера и апсорбера и 10% за дебљину прозора и зазор између прозора и кристала. Да би се у што већој мери смањила неслагања између симулираних и измерених вредности, булетизација, мртви слој и простор између прозора и кристала су варирани у симулацији, а тиме је несигурност смањена на процењених 1%. Хемијски састав контејнера је добро дефинисан, али за узорак је ситуација компликованија. Узрок томе може бити неадекватно познавање хемијског састава уранијумске руде, металне плоче и  $UO_2$  пелета, што доприноси већој мерној несигурности. Процењује се да је то 10% [Nikolic et al.,2014]. Што се тиче симулације, мерна несигурност  $u_{simulation}$  је израчуната према следећој једначини:

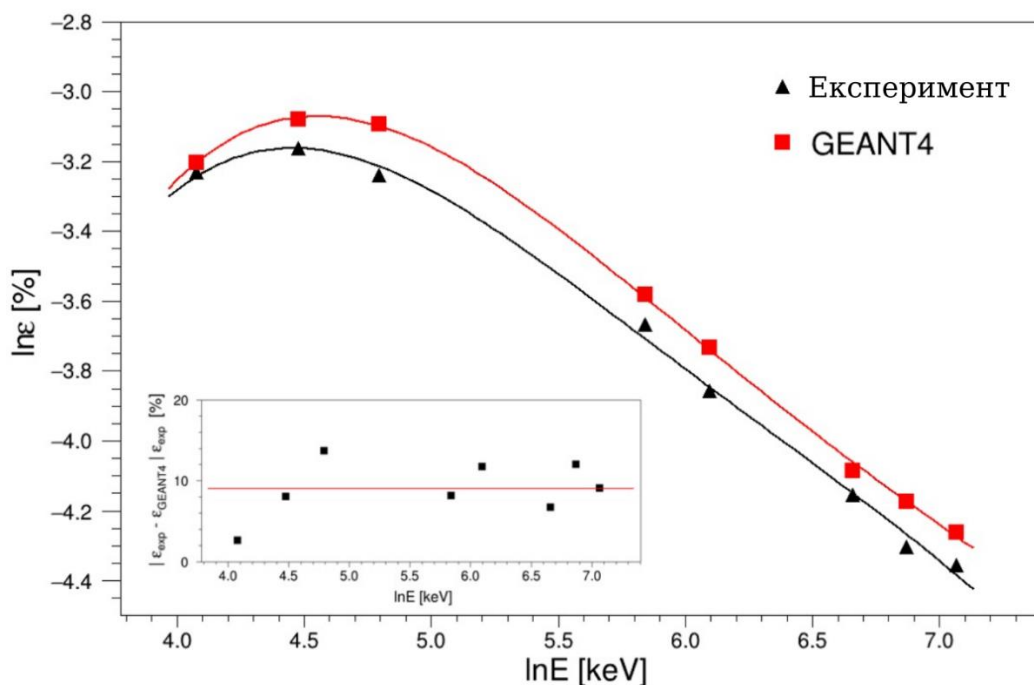
$$u_{simulation} = \sqrt{\sum (\delta x_i)^2} \quad (5.4)$$

где  $\delta x_i$  представља релативну несигурност вредности  $x_i$ . У прорачуну релативне мерне несигурности симулације, варијабла  $x_i$  представља фотопик ефикасност (FEPE), од којих је свака појединачно симулирана у оквиру GEANT4 кода за сваку енергију, док  $\delta x_i$  представља релативно одступање FEPE вредности израчунатих из симулација са различитим бројем генерисаних догађаја по *run*-у. Оптимални број догађаја по *run*-у који даје добру статистику са несигурношћу на задовољавајућем нивоу је  $10^6$  догађаја, имајући на уму да поменута несигурност треба да се задржи у распону од поменутих 5%. Узимајући у обзир наведено, укупна несигурност симулираних резултата процењује се на 5%.

## Резултати и дискусија

Резултати добијени коришћењем два софтвера за трансфер ефикасности (Angle и EFFTRAN) и симулационог пакета (GEANT4) приказани су у виду концентрација активности за одређене енергије које су карактеристичне за изотопе уранијума  $^{238}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  (Табеле 5.1-5.3) и  $^{232}\text{Th}$  (Табела 5.4).

У овом истраживању метод трансфера ефикасности је имплементиран у GEANT4 симулационом коду на следећи начин: коришћене су карактеристике произвођача детектора уз додатно подешавање геометрије (као што су дебљина мртвих слојева, растојање кристала од прозора, итд.) са циљем да се валидују<sup>13</sup> добијени резултати симулације. Експерименталне вредности ефикасности детекције израчунате су користећи декларисане познате активности сертификованог референтног материјала CBSS-2. Измерене (експерименталне) и симулиране криве ефикасности за CBSS-2 су представљене на слици 5.10. Релативна несигурност посматрајући цео енергетски опсег спектра пада испод 15%. Прилагођене карактеристике детектора су затим коришћене за све даље прорачуне за испитиване узорке.



**Слика 5.10.** Експерименталне и симулиране (са одговарајућим подешавањима карактеристика детектора) криве ефикасности за сертификовани референтни материјал CBSS-2.

Концентрација активности за изотоп  $^{238}\text{U}$  је рачуната коришћењем одброја из гама линија на 63.3 keV која потиче од распада  $^{234}\text{Th}$  и 1001.03 keV која потиче од распада  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ , будући да на поменути два фотопика имамо најмању количину интерференција од других пикова. Концентрација активности за изотоп  $^{235}\text{U}$  рачуната из линија на 143.8 keV и 163.3 keV које потичу директно од распада  $^{235}\text{U}$ .

<sup>13</sup> Циљ валидације је да се резултати у виду фотопик ефикасности добијених у GEANT4 у што већој мери поклопе са експериментално добијеном ефикасношћу.

За прорачун масене активности  $^{235}\text{U}$  није коришћена најинтензивнија линија на 185.7 keV због интерференције са линијом на 186.2 keV која потиче од распада  $^{226}\text{Ra}$ , а која није могла бити квантитативно искључена услед непознатог изотопског састава *узорка 1А*. Концентрације активности за изотопе уранијума  $^{238}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  за различите изорке приказане су у Табелама 5.1-5.3.

Концентрација активности за изотоп  $^{232}\text{Th}$  је рачуната коришћењем линија на 238.6 keV и 338.3 keV, које потичу од распада  $^{212}\text{Pb}$  и  $^{228}\text{Ac}$ , респективно и приказане су у Табели 5.4. У прорачуну поменутих концентрација активности сматрано је да је у узорцима успостављена секуларна радиоактивна равнотежа. Активности за одређену геометрију узорка коришћењем ефикасности добијених путем EFFTRAN, Angle и GEANT4 софтвера, рачунате су из истог гама спектра.

**Табела 5.1.** Концентрације активности са *узорак 1А* добијене полуемпиријским и симулационом методом.

Софтвер	Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq/kg]
EFFTRAN	$^{238}\text{U}$	63.3	3.56±0.17
		1001.03	5.68±0.24
	$^{235}\text{U}$	143.8	0.233±0.014
		163.3	0.245±0.016
Angle	$^{238}\text{U}$	63.3	3.73±0.19
		1001.03	5.38±0.81
	$^{235}\text{U}$	143.8	0.195±0.013
		163.3	0.234±0.015
GEANT4	$^{238}\text{U}$	63.3	3.94±0.21
		1001.03	5.79±0.87
	$^{235}\text{U}$	143.8	0.213±0.014
		163.3	0.219±0.014



**Табела 5.2.** Концентрације активности за узорак 2А у геометрији хоризонталног виала, добијене полуемпиријским и симулационом методом.

Софтвер	Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq/kg]
<b>EFFTRAN</b>	$^{238}\text{U}$	63.3	4.45±0.29
		1001.03	4.51±0.26
	$^{235}\text{U}$	143.8	0.424±0.018
		163.3	0.266±0.015
<b>Angle</b>	$^{238}\text{U}$	63.3	4.36±0.28
		1001.03	4.37±0.25
	$^{235}\text{U}$	143.8	0.382±0.019
		163.3	0.252±0.021
<b>GEANT4</b>	$^{238}\text{U}$	63.3	4.85±0.31
		1001.03	5.34±0.29
	$^{235}\text{U}$	143.8	0.386±0.018
		163.3	0.251±0.015

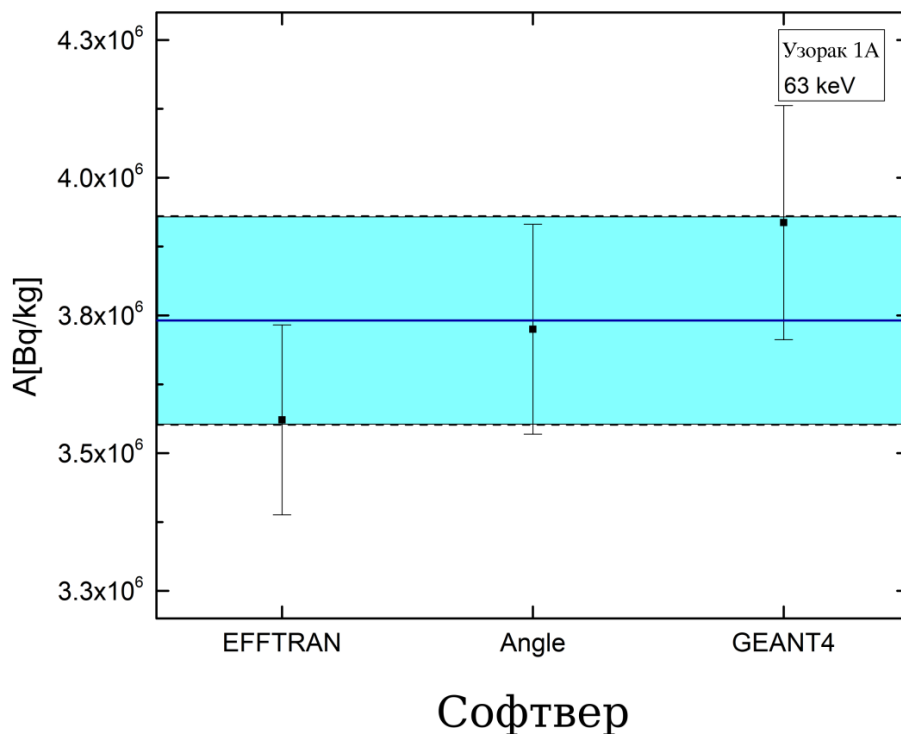
Табела 5.3. Концентрације активности са узорак 2А у цилиндричној геометрији, добијене полуемпиријским и симулационом методом.

Софтвер	Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq/kg]
EFFTRAN	<sup>238</sup> U	63.3	5.17±0.24
		1001.03	5.23±0.26
	<sup>235</sup> U	143.8	0.242±0.019
		163.3	0.249±0.021
Angle	<sup>238</sup> U	63.3	5.26±0.25
		1001.03	5.28±0.27
	<sup>235</sup> U	143.8	0.248±0.018
		163.3	0.266±0.022
GEANT4	<sup>238</sup> U	63.3	5.17±0.26
		1001.03	5.23±0.28
	<sup>235</sup> U	143.8	0.193±0.018
		163.3	0.204±0.015

Табела 5.4. Концентрације активности са узорак 3А, добијене полуемпиријским и симулационом методом.

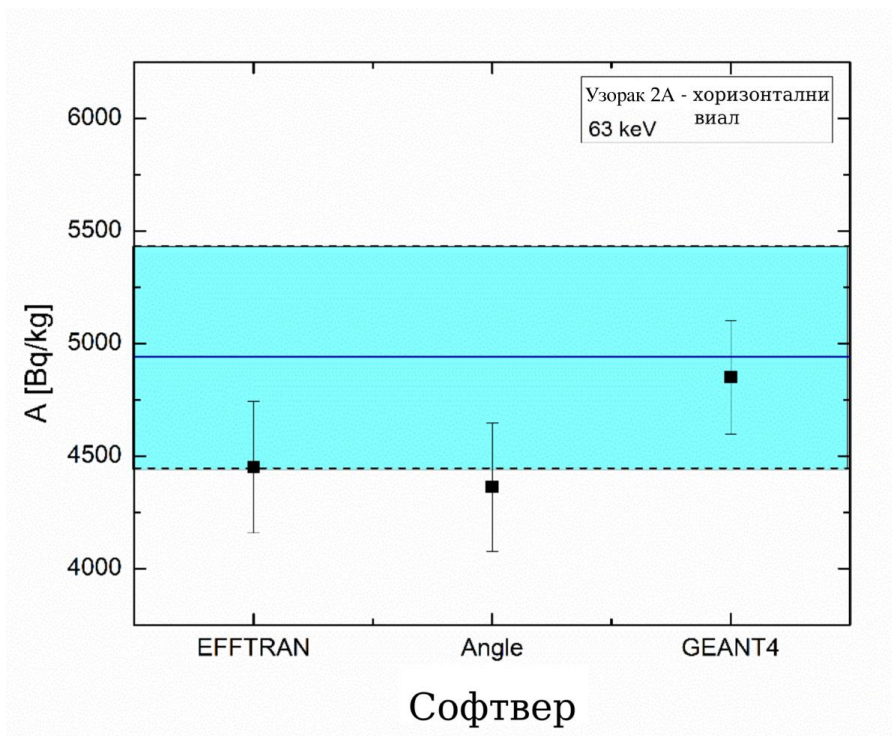
Софтвер	Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [10 <sup>5</sup> Bq/kg]
EFFTRAN	<sup>232</sup> Th	238.6	1.11±0.04
		338.3	1.12±0.05
Angle	<sup>232</sup> Th	238.6	1.09±0.05
		338.3	1.03±0.06
GEANT4	<sup>232</sup> Th	238.6	0.91±0.05
		338.3	0.94±0.05

Графички приказ међусобног поређења добијених резултата за појединачне узорке на енергијама 63.3 keV (узорак 1A и узорак 2A), односно 238.6 keV и 338.3 keV (узорак 3A) приказан је на сликама 5.11-5.15. Будући да тачна вредност концентрације активности било ког присутног радионуклида у узорцима 1A и 3A није позната, коришћена је средња вредност<sup>14</sup> са одговарајућом стандардном девијацијом као референтна (тачна), како би се тестирале методе. Узорак 2A је стандардни референтни материјал и као такав има декларисане вредности концентрација активности свих у њему присутних радионуклида, те се као референтна вредност за поређење метода користила управо она декларисана, са коридором грешке од  $\pm 10\%$ .

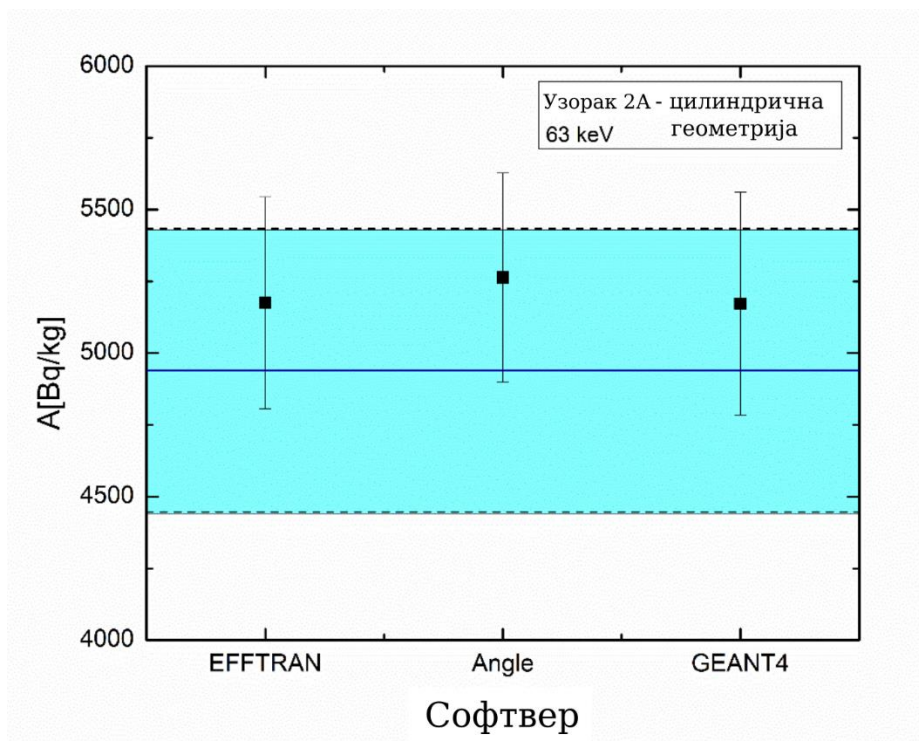


Слика 5.11. Концентрације активности за узорак 1A на 63.3 keV добијене помоћу различитих метода.

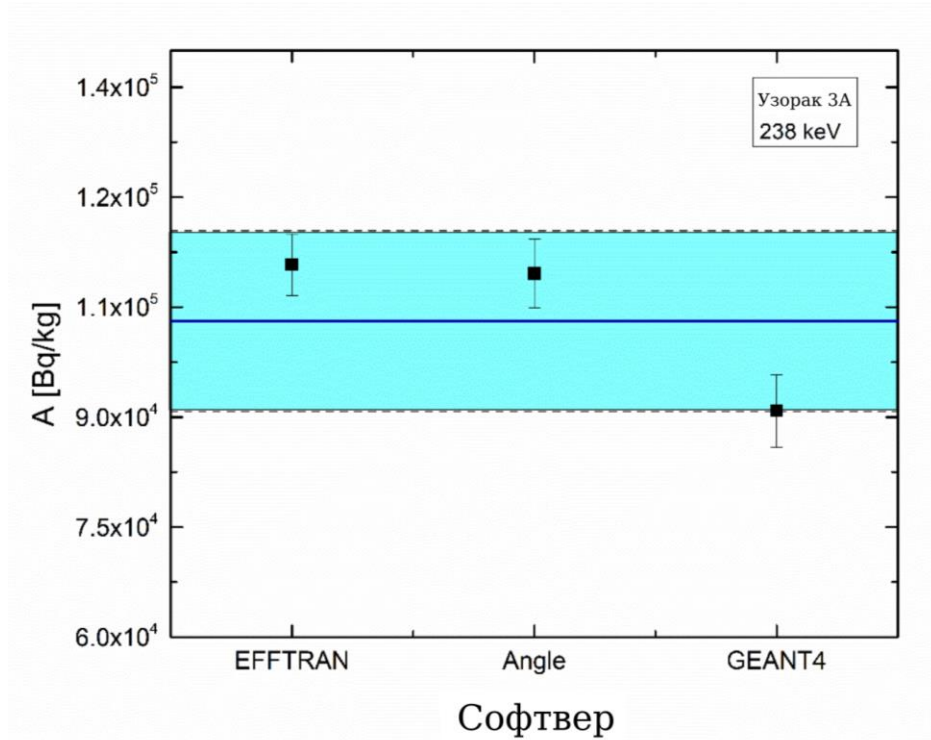
<sup>14</sup> Средња вредност за концентрацију активности је добијена усредњавањем резултата добијених EFFTRAN, Angle 4 и GEANT4 софтверским пакетима.



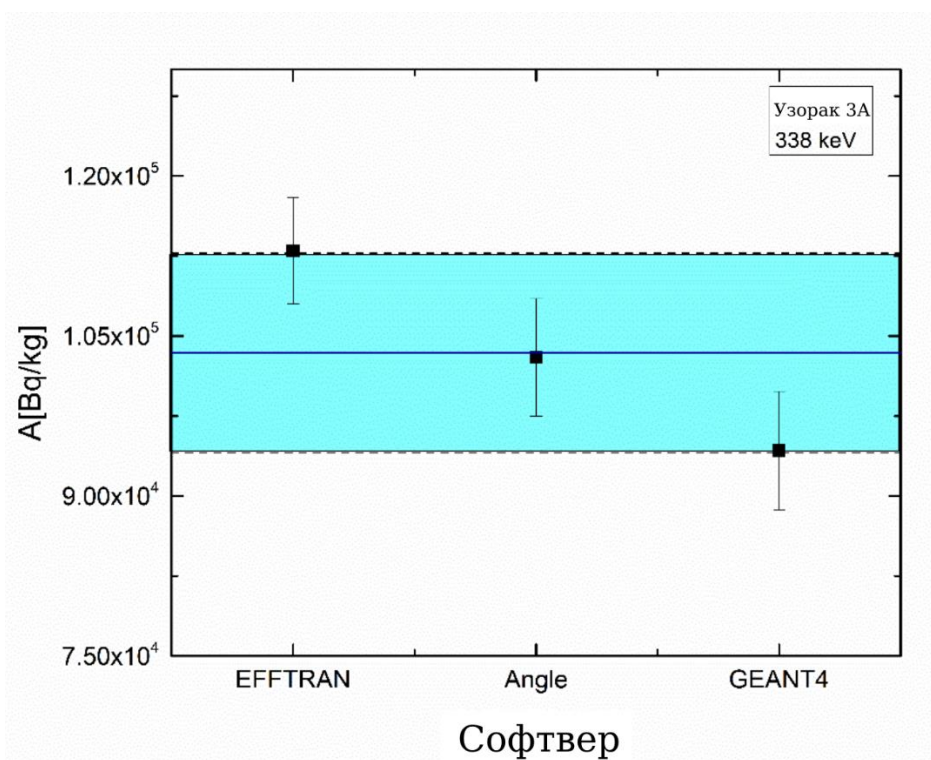
Слика 5.12. Концентрације активности за узорак 2А на 63.3 keV добијене помоћу различитих метода, у геометрији хоризонталног вијала.



Слика 5.13. Концентрације активности за узорак 2А на 63.3 keV добијене помоћу различитих метода, у цилиндричној геометрији.



Слика 5.14. Концентрације активности за узорак 3A на 238.6 keV добијене помоћу различитих метода.



Слика 5.15. Концентрације активности за узорак 3A на 338.3 keV добијене помоћу различитих метода.

Посматрајући резултате за *узорак 2A* у различитим геометријама који су приказани у Табели 5.2, слици 5.12, односно Табели 5.3 и слици 5.13, може се видети да и полуемпиријске и симулационе методе дају конзистентне, задовољавајуће резултате, односно оне које имају добро слагање са референтном вредношћу. За *узорак 1A* и *узорак 2A* су додатно израчунате и тоталне концентрације активности за изотоп  $^{238}\text{U}$ . Тотална концентрација активности се рачунала користећи линије на 63.3 keV и 1001.03 keV (који су потомци  $^{238}\text{U}$ ) али и из гама линија на 143.8 keV и 163.3 keV (који су потомци  $^{235}\text{U}$ ). Када се активност  $^{238}\text{U}$  рачуна преко гама линија потомака  $^{235}\text{U}$ , користила је релација 5.5 [Olszewski, 2016]. У тој релацији, однос 1/0.046 представља однос концентрација активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  у природним узорцима. У случају *узорка 1A* референтна вредност је у тој инстанци узета као средња вредност тоталних концентрација активности  $^{238}\text{U}$  добијених EFFTRAN, Angle и GEANT4 софтверским пакетима. Код *Узорка 2*, будући да је он референтни материјал, референтна вредност је позната од произвођача и узета је као таква. Тотална концентрација активности  $^{238}\text{U}$  као и њено одступање од средње вредности за *узорак 1A* и *узорак 2A* приказани су у Табелама 5.5 - 5.7, као и на сликама 5.16 - 5.18.

$$A(^{238}\text{U}) = A(^{235}\text{U}) \cdot \frac{1}{0.046} \quad (5.5)$$

**Табела 5.5.** Тотална концентрација активности  $^{238}\text{U}$  за *узорак 1A*.

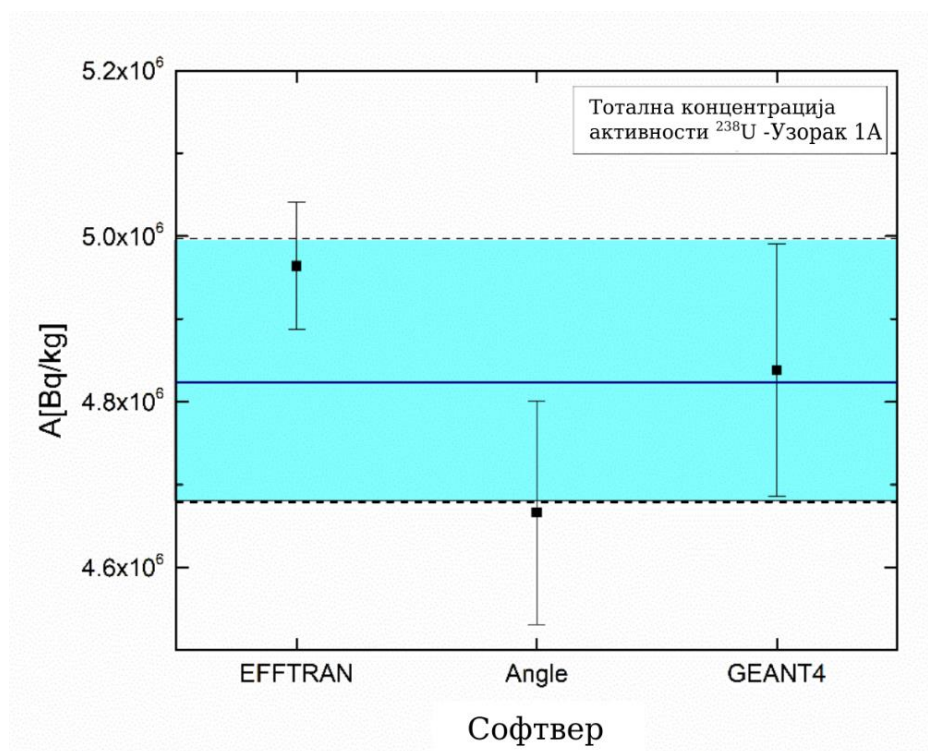
Софтвер	Тотална концентрација активности $^{238}\text{U}$ [MBq kg <sup>-1</sup> ]	Средња вредност као референтна [MBq kg <sup>-1</sup> ]	Релативно одступање [%]
EFFTRAN	4.96±0.08		+2.92
Angle	4.67±0.13	4.82±0.15	-3.26
GEANT4	4.84±0.15		+0.31

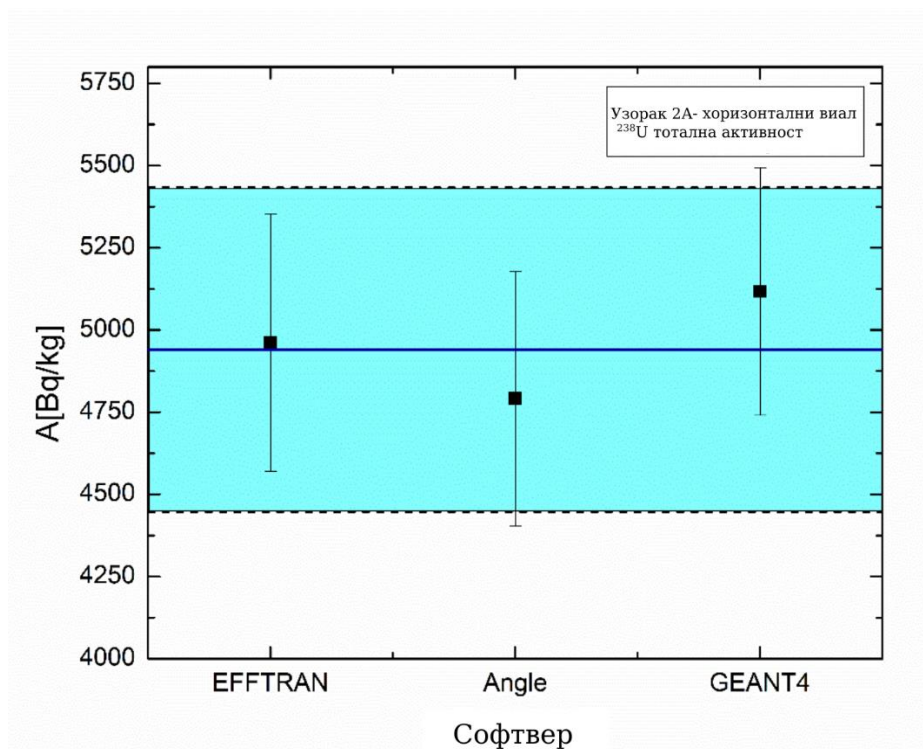
**Табела 5.6.** Тотална концентрација активности  $^{238}\text{U}$  за *узорак 2A*, геометрија хоризонталног вијала.

Софтвер	Тотална концентрација активности $^{238}\text{U}$ [MBq kg <sup>-1</sup> ]	Референтна вредност [MBq kg <sup>-1</sup> ]	Релативно одступање [%]
EFFTRAN	4.96±0.39		+0.40
Angle	4.79±0.38	4.94±0.49	-3.04
GEANT4	5.25±0.37		-3.58

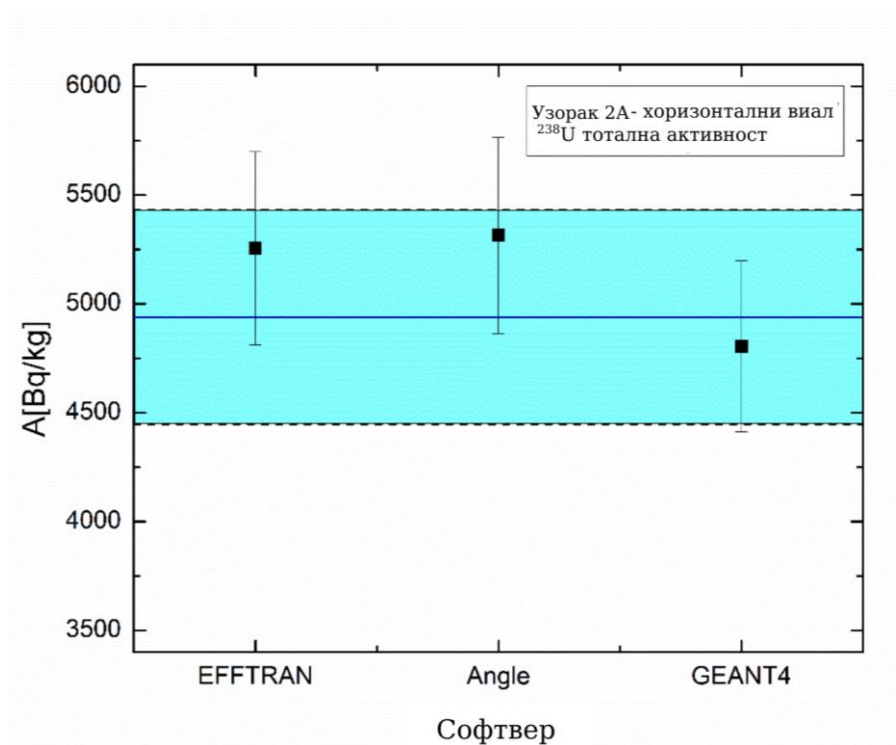
Табела 5.7. Тотална концентрација активности  $^{238}\text{U}$  за узорак 2А, цилиндрична геометрија.

Софтвер	Тотална концентрација активности $^{238}\text{U}$ [МВq kg <sup>-1</sup> ]	Референтна вредност [МВq kg <sup>-1</sup> ]	Релативно одступање [%]
EFFTRAN	5.25±0.44		+6.38
Angle	5.31±0.45	4.94±0.49	+7.61
GEANT4	4.81±0.39		-2.71

Слика 5.16. Тотална концентрација активности  $^{238}\text{U}$  за узорак 1А.



Слика 5.17. Тотална концентрација активности  $^{238}\text{U}$  за узорак 2А у геометрији хоризонталног виала.



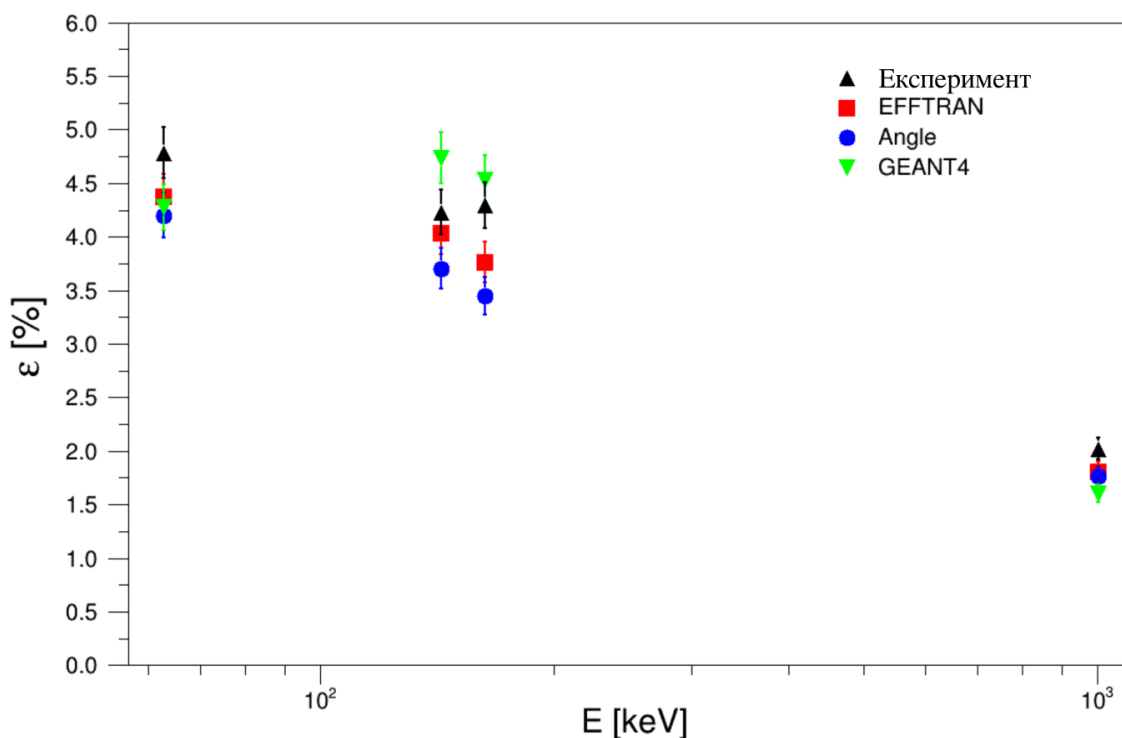
Слика 5.18. Тотална концентрација активности  $^{238}\text{U}$  за узорак 2А у цилиндричној геометрији.



Релативна одступања тоталне концентрације активности  $^{238}\text{U}$  од референтне вредности за *узорак 2А* у две тестиране геометрије (хоризонтални виал и цилиндрична) су испод 8% и за полуемпиријске и за симулациону методу, што је и приказано у Табелама 5.6-5.7 и на сликама 5.17-5.18. Задовољавајуће слагање између резултата добијених различитим методама добијено је и за специфичне енергије (63.3 keV), што је приказано на сликама 5.12-5.13 и Табелама 5.2-5.3. У референци [Nikolic,2014] сличан закључак је добијен поређењем EFFTRAN-а и GEANT4, када је од интереса нискоенергетски опсег (63.3 keV фотопик), EFFTRAN даје резултате са већом тачношћу. У идеалној ситуацији, концентрације активности израчунате одвојено за линије 63.3 keV и 1001.03 keV треба да буду упоредиве. Уколико то није случај, ово може бити индикација да матрица узорка није адекватно дефинисана, о чему ће више речи бити у делу истраживања који је фокусиран на утицај матрице узорка на тачност резултата. Из Табела 5.1-5.3 је очигледно да су и Angle и EFFTRAN софтвер дали задовољавајуће резултате.

Слична претпоставка се може применити и за прорачун концентрације активности  $^{232}\text{Th}$  преко фотопикова на 238.6 keV и 338.3 keV. Резултати приказани у Табели 5.4 показују да све три коришћене методе дају очекиване, односно усаглашене резултате.

Да би се добила директнија индикација тачности примењене методологије, додатно поређење између резултата ефикасности добијених EFFTRAN, Angle и GEANT4 софтверским пакетима и експерименталних резултата добијених за референтни материјал *узорак 2А* у цилиндричној геометрији приказано је на слици 5.19. Експериментална ефикасност је добијена за референтне вредности концентрације активности које су унапред познате. Резултати приказани на слици 5.19 јасно указују на добро слагање ефикасности за све испитиване методе.



Слика 5.19. Поређење резултата EFFTRAN, Angle и GEANT4 ефикасности и експерименталних резултата добијених за референтни материјал *узорак 2А* у цилиндричној геометрији.

*Основни закључци утицаја геометрије узорка*

Главна идеја овог истраживања била је да се тестира применљивост два софтвера за математичке калкулације (трансфер ефикасности) Angle и EFFTRAN у поређењу са симулационом методом (GEANT4) у сврху прецизног одређивања концентрација активности, за различите геометрије узорака. Обе методе (две полуемпиријске и симулациона) су тестиране на 3 различите геометрије узорка и матрице, иако мерени узорци нису директно повезани са областима нуклеарне форензике, коришћени су само у сврхе тестирања и закључак би могао да се односи на било који други узорак. Анализирани узорци су били UO<sub>2</sub> пелет, референтни материјал у цилиндричној геометрији аксијално симетричан у односу на вертикалну осу кристала детектора и цилиндрична бочица, испуњена референтним материјалом, постављена у хоризонталном положају на капи детектора и мала метална плоча неправилног облика. Основна идеја коришћења референтног материјала била је тестирање метода, са познатим концентрацијама активности. У пракси, када је реч о узорцима који се могу наћи ван регулаторне контроле, они могу бити различитих облика и састава, а општи закључак овог истраживања је да је једини начин да се за одређивање концентрације активности користе Angle и EFFTRAN софтвер (који имплементирају метод трансфера ефикасности) је да се геометрија апроксимира да буде што ближе обликом цилиндричној. Такође, састав-густину узорка треба апроксимирати или измерити. У GEANT4 софтверском пакету за симулацију, геометрија и састав узорка се могу прецизније дефинисати што је предност његове употребе.

Добијени резултати указују да су и Angle и EFFTRAN софтвер за трансфер ефикасности са адекватном апроксимативном дефиницијом геометрије узорка дали задовољавајуће резултате иако Angle 4 не укључује корекцију за коинцидентна сумирања и оба софтвера су дизајнирана за вертикално цилиндричну геометрију. Главни недостатак је што је за коришћење та два софтвера потребан сертификован референтни материјал. Са друге стране, симулациона метода уз GEANT4 би се могла користити без сертификованог референтног материјала са детаљном дефиницијом детектора од стране произвођача, али се тачнији резултати могу добити ако се у GEANT4 карактеристике детектора дефинишу како на основу дефиниције произвођача тако и уз додатна подешавања карактеристика детектора у симулацији уз коришћење сертификованог референтног материјала (у нашем случају CBSS-2).

Генерални закључак је да се обе методе (полуемпиријске и симулациона) могу користити за првобитну процену концентрације активности радиоизотопа уранијума у узорцима који имају различите геометрије. Са друге стране, иако је геометрија анализираних металних плоча представљала својеврстан изазов, обе методе су дале упоредиве резултате за концентрацију активности <sup>232</sup>Th.

У будућим истраживањима, описана методологија се може тестирати на другачијим нецилиндричним узорцима са непознатим садржајем радиоизотопа, будући да се различити нуклеарни и други радиоактивни материјали могу наћи ван регулаторне контроле као и да је доказано је да је гама спектрометрија једна од најбољих неструктивних аналитичких техника за почетну брзу карактеризацију и категоризацију непознатог материјала.

## 5.2 Утицај матрице узорка на моделовање функције ефикасности у гамаспектрометријском одређивању изотопа уранијума

Поред геометрије односно облика узорка, у оквиру ове тезе испитан је и утицај састава и матрице узорка на резултате гамаспектрометријских мерења. И у овом случају, квантификација утицаја матрице урађена је преко функција ефикасности детекције. Као што је већ поменуто у гамаспектрометријским лабораторијама често се метода трансфера ефикасности користи за добијање функције ефикасности детекције у оквиру различитих софтвера. Потребно је познавати састав односно матрицу узорка, и у одређеном кораку анализе унети у софтвер како би исти могао срачунати ефикасност детекције. Колико је битно познавати тачан састав нашег узорка, као и колику несигурност уносимо у анализу непознавањем истог, биће изложено у даљем тексту.

Основна идеја приказаног истраживања била је да се испита утицај прецизног одређивања матрице узорка на добијање поузданих резултата у гама спектрометрији. Идеја је тестирана коришћењем два различита приступа који имају исти циљ: квантификацију концентрације активности изотопа уранијума у различитим узорцима пронађеним у некадашњем лежишту руде уранијума Маздреја. Први приступ је заснован на итеративној методологији, која користи оне карактеристике узорка које се могу квантификовати пре самог гамаспектрометријског мерења. Густина узорка и израчунати масени удели његових састојака (који се варирају у свакој итерацији) могу помоћи да се добије функција ефикасности из које се могу извести концентрације активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  и одговарајуће масе изотопа уранијума за наредну итерацију. Други приступ који је тестиран представља претходно описан полуемпиријски метод у оквиру ког се, у овој инстанци, употребом GEANT4 и EFFTRAN софтверских кодова генерише функција ефикасности детекције која је потребна за даље прорачуне.

Установљено је да су матрице узорака које садрже елементе актиноида, посебно уранијум, веома важна тема за истраживање, будући да такви материјали представљају опасност по људе и животну средину јер имају везе са TENORM-ом<sup>15</sup> [Dowdall et al., 2004], употребом осиромашеног уранијума и илегалном трговином нуклеарних и других радиоактивних материјала.

У претходном периоду, када технологија за HPGe детекторе који имају високу ефикасност детекције у вишем енергетском опсегу није била доступна, мерење активности  $^{238}\text{U}$  се углавном заснивало на анализи пика од 63.3 keV од  $^{234}\text{Th}$  (са интензитетом од 3.7%). Разлог за ово је лоша статистика бројања мање интензивног пика од 1001.03 keV од  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  (0.84%) који има мање спектралних сметњи. Данас, када је присутна адекватна HPGe технологија, пик од 1001.03 keV се може користити за одређивање активности  $^{238}\text{U}$  [Dowdall et al., 2004; Yücel et al., 1998]. Као што се може видети, у гама спектрометрији, активност уранијума се одређује индиректно преко гама линија његових потомака. Приликом анализе гама спектра узорака са високим садржајем уранијума, морају се узети у обзир високе спектралне интерференције и велика самоапсорпција у измереном узорку на пику од 63.3 keV од  $^{234}\text{Th}$  који се налази у делу спектра где је природно велик фон. Показано је да занемаривање спектралних доприноса  $^{235}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  на фотопику од 63.3 keV може довести до великог одступања (0.8 - 122%) у израчунатој активности  $^{238}\text{U}$ , док у случају занемаривања доприноса  $^{232}\text{Th}$  (преко  $^{228}\text{Ac}$ )

<sup>15</sup> TENORM - Technologically Enhanced Natural Occuring Materials су природни радиоактивни материјали (NORM)

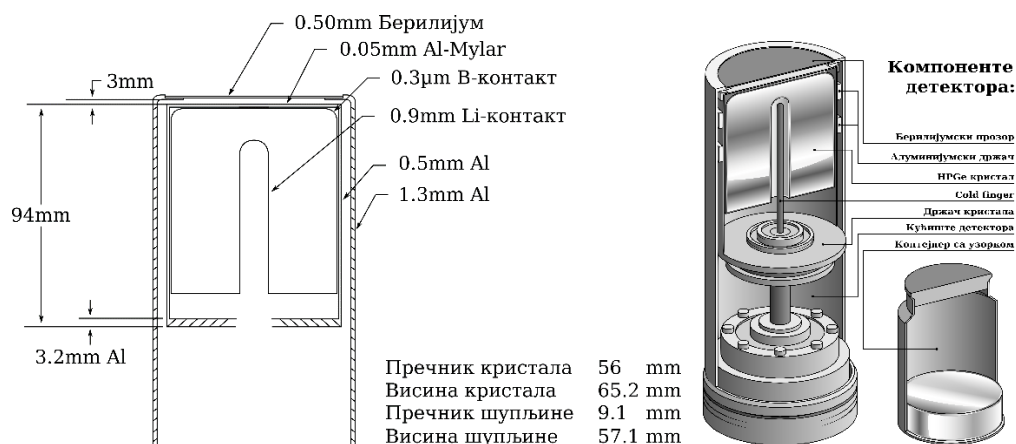
на 1001 keV пик од  $^{234m}\text{Pa}$ , имамо релативно мањи утицај од 0.05–3%, у зависности од садржаја торијума у узорцима [Yücel et al, 2009]. Стога, ако су технички услови испуњени, за прорачун активности треба узети високоенергетски пик уранијума (1001 keV), због мањег утицаја матрице узорка на тачност коначног резултата.

Сврха овог истраживања била је да се упореде различити приступи за одређивање концентрације активности уранијума у матрицама узорака који имају висок масени удео уранијума и да се утврди потреба за прецизним прорачуном (описаним у оквиру итеративне методе) на тај начин што ће се квантификовати релативно одступање међу израчунатим масеним активностима, које су добијене различитим методама.

### Методологија

#### Детектори

За потребе овог дела истраживања анализирани узорци су мерени на два HPGe детектора. Детектор 1 је германијумски детектор високе чистоће (HPGe) коаксијални детектор проширеног мерног опсега. Произведен је од стране фирме ORTEC са серијским бројем GMX-20190 (LLB). Ознака GMX (*gamma-x*) подразумева да је овај детектор намењен и за X и за гама спектрометрију, док ознака LLB (*Low Level Background*) значи да је детектор конструисан за услове нискофонског мерења. GMX-20190 је коаксијални детектор N-типа. Спољашњи контакт кристала детектора је имплантиран бором и дебљине је 0.3  $\mu\text{m}$  услед чега има већу ефикасност за детекцију нискоенергетског гама зрачења. Германијумски кристал је пречника 56 mm, висине од 65.2 mm и активне запремине од 160  $\text{cm}^3$  (слика 5.20). Детектор поседује танки берилијумски прозор дебљине 0.5 mm и чистоће 99.8 %. Релативна ефикасност детектора је 32.4 %, енергетска резолуција (FWHM) је 1.92 keV на 1.33 MeV и P/C однос<sup>16</sup> од 54.1. Детектор 1 је заштићен вишеслојном оловом, калајем и бавром. Заштита се састоји од спољашњег слоја од 120 mm од рафинисаног нискофонског олова (Pb), 3.5 mm калаја (Sn) и унутрашњег слоја од 0.5 mm од бакра (Cu) високе чистоће (слика 5.21). Мерење узорака 1 и 2 а HPGe детектору 1 извршено је на растојању од 0.5 cm између дна контејнера за узорке и берилијумског Ве прозора.



Слика 5.20. Карактеристике GMX-20190 детектора од стране произвођача (лево) и шематски приказ истог (десно).

<sup>16</sup> Peak-to-Compton ratio – Однос висине фотопика и комптонског континуума



**Слика 5.21.** HPGe коаксијални детектор произвођача *ORTEC* и серијске ознаке GMX-20190.

Детектор 2 је такође германијумски детектор високе чистоће (HPGe) произвођача *CANBERRA* са серијском ознаком GX5020. Његов кристал има радијус од 31.8 mm и висину од 63.95 mm са активном запремином од 200 cm<sup>3</sup>. Прилагођен геометријски модел детектора 2 постигнут је оптимизацијом дебљине мртвог слоја помоћу *Monte Carlo* симулација, а вредности су: горњи мртви слој од 0.005 mm, бочни мртви слој од 1.2 mm и берилијумски прозор дебљине 0.5 mm. Има релативну ефикасност од 50% и енергетску резолуцију (FWHM) од 2.0 keV на 1.33 MeV. Детектор 2 је постављен у оловну заштиту дебљине 16.5 cm која обезбеђује ниске фонске сметње (око 1 cps). Мерење узорка *1Б* и узорка *2Б* извршено је на растојању од 6.6 cm између дна посуде за узорке и берилијумског прозора. Узорци су стављени на празну Маринели посуду која је постављена на детектор, обезбеђујући растојање од 6.6 cm.

#### *Узорци*

У оквиру овог истраживања анализирана су два узорка. Оба узорка узета су из напуштеног рударског окна у некадашњем лежишту руде уранијума Маздреја, у источном делу Србије. *Узорак 1Б* је био налик земљишту, наранџасте боје, измерене густине од 0.801 g·cm<sup>-3</sup> и масе 20.72 g. *Узорак 2Б* је био такође налик земљишту тамно сиве, скоро црне боје, измерене густине 2.25 g·cm<sup>-3</sup> и масе 49.59 g (Слика 5.22).



Слика 5.22. Узорак 1Б (десно) и узорак 2Б (лево) у њиховим контејнерима.

#### *Итеративни метод*

Итеративни поступак се заснива на принципу константне густине узорка, док масени удео његових компонената варира у свакој итерацији. Итеративни метод је директно повезан са варијацијама масених удела различитих компоненти матрице узорка. Једина вредност повезана са саставом узорка, а која се може измерити, је његова густина. За одређивање масених удела конституената узорка може се поставити само једна једначина са једном променљивом [Rikalo,2020]. Резултати добијени у оквиру итеративне методе, добијени су на основу података добијених мерењем узорка на детектору 2.

У спектру узорка 1Б нису примећени гама пикови  $^{232}\text{Th}$  низа а уочени су само пикови првих неколико чланова  $^{238}\text{U}$  низа. На основу овога претпостављено је да присутни радионуклиди нису у свом природном облику и да су највероватније присутни као компоненте индустријски направљеног жутог колача (материјала који је у одређеном моменту прошао кроз процес хемијске сепарације, чиме је прекинута радиоактивна равнотежа свих елемената  $^{238}\text{U}$  низа коју очекујемо да видимо у узорцима природног порекла). Међутим, због мале густине узорка и чињенице да се у првој итерацији може поставити само једна једначина са једном непознатом променљивом, претпостављено је да се узорак састоји само од ваздуха и земљишта.

Теоријске вредности густине коришћене за земљиште и ваздух биле су  $1.4 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  и  $0.00125 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , респективно. Множењем густине са запремином узорка и дељењем са масом одређеног конституента могуће је одредити масене уделе конституената у узорку.

У спектру узорка 2Б примећени су гама пикови од свих чланова низова  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$ . То значи да је земљиште богато радионуклидима у природном облику. На основу густине узорка претпостављено је да се узорак састоји од индустријски произведеног жутог колача и влажног земљишта богатог радионуклидима у њиховом природном облику.

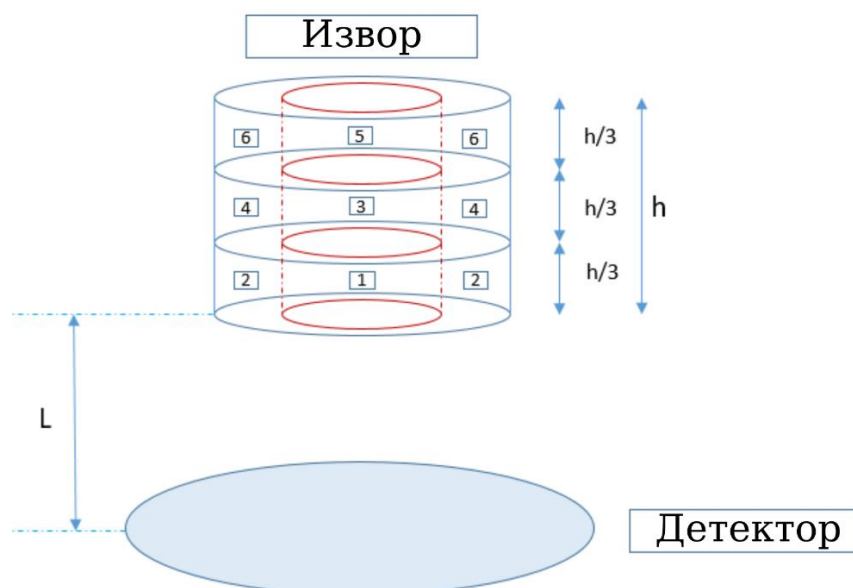
Утврђено је да маса жутог колача износи 22.55 g, а маса земљишта 27.04 g. Приближно је процењено да се влажно земљиште састоји од 30% воде и 70% сувог земљишта, што значи да се састоји од 18.93

g сувог земљишта и 8.11 g воде. Након одређивања масених удела, узорци се могу дефинисати у библиотеци LabSOCS<sup>17</sup> софтвера.

Корекциони фактори за коинцидентна сумирања за волуминозне изворе одређени су једначином (5.6), изведеном методом описаном у референци [Kolotov et al., 1996]. Ова метода захтева да се извор подели на неколико зона, једнаких по запремини.

$$F_g = \frac{\sum_{i=1}^n \varepsilon_{i,g} v_i}{\sum_{i=1}^n \frac{\varepsilon_{i,g}}{f_g(z_i)} v_i} \quad (5.6)$$

Фактор  $F_g$  представља корекциони фактор за коинцидентна сумирања на одређеној енергији  $g$  за запремински (волуминозни) извор,  $\varepsilon_{i,g}$  је ефикасност детектора на енергији  $g$  за зону набројану индексом  $i$  и  $f_g(z_i)$  експериментално одређен корекциони фактор за коинцидентна сумирања за тачкасти извор енергије  $g$  (слика 5.23).



Слика 5.23. Узорак подељен у 6 зона, какав је и коришћен у прорачуну.

Ефикасности детектора за сваку зону  $\varepsilon_{i,g}$  одређене су помоћу калибрационог LabSOCS софтвера. Потребно је правилно дефинисати димензије сваке зоне и њену удаљеност од детектора. Проблем настаје када је у питању дефинисање зона набројаних бројевима 2, 4 и 6 јер је немогуће дефинисати њен облик у LabSOCS софтверу. Да би заобишла ова препрека, уместо да се утврди ефикасност детектора за зону 2, одређена је ефикасност веће цилиндричне зоне која садржи обе зоне 1 и 2. Ова

<sup>17</sup> LabSOCS (Laboratory SOurceless Calibration Software) - је комерцијални софтвер који се користи за математичко одређивање функције ефикасности детекције германијумских детектора високе чистоће [LabSOCS, 2002]. Типично, LabSOCS софтвер долази унапред упарен са купљеним CANBERRA детектором, а све његове параметре унутар софтвера је већ унапред дефинисао произвођач. Показало се да је за цилиндричне узорке разлика у ефикасности између вредности добијених овим софтвером и експериментално мања од 3% [Djordjevic, Milosevic, 2012].

већа зона има исти допринос стопи бројања као зоне 1 и 2 заједно. Ефикасност детектора за зону 2 може се израчунати из једначине:

$$\varepsilon_2 = \frac{\varepsilon_{12}(V_1 + V_2) - V_1}{V_2} \quad (5.7)$$

у којој  $\varepsilon_{12}$  представља ефикасност детекције за зону која у себи садржи зоне 1 и 2. Ефикасности детекције за преостале парне зоне, се одређују на аналоган начин, коришћењем LabSOCS софтвера [Rikalo,2020].

Корекциони фактори који су функција растојања између детектора и тачкастих извора  $f_g(z_i)$  одређени су у референцама [Djordjevic, Milosevic,2012; Milosevic et al.,2014] применом референтних тачкастих извора  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ . За разлику од тачкастих извора, зоне у овом раду имају значајну запремину што имплицира да ће одређени делови зона бити удаљенији од других у односу на детектор. Да би се функције  $f_g(z_i)$  правилно користиле потребно је одредити просечно растојање између сваке зоне и детектора. Ово се постиже одређивањем растојања између две насумично одабране тачке, једне унутар запремине узорка, а друге на површини детектора. Након тога, овај израз се усредњује коришћењем интегралне целокупне запремине узорка и површином детектора. Потенцијални проблем са прецизним израчунавањем ефикасности детекције је интерференција са флуоресцентним рендгенским зрацима уранијума на енергији 92.59 keV [Murray et al.,1987]. Као последица бета распада, електрон се емитује из језгра атома, а ови електрони могу да ступе у интеракцију са другим атомима, услед чега успоравају и емитују континуално закочно зрачење (*bremsshtalung*). Поред тога, у узорцима богатим торијумом ове бета честице могу избацити електрон из унутрашње К-љуске атома торијума, а слабије везан електрон из L-љуске тада попуњава ово празно место. Као резултат тога, емитује се деексцитациони  $K\alpha_1$  фотон са енергијом од 93 keV. Ово ствара интерференцију са врхом од 92.59 keV [Kaste et al.,2006].

Активност изотопа уранијума је одређена коришћењем пикова на 63.29 keV, 92.59 keV и 1001.03 keV у складу са релацијом 5.8:

$$A = \frac{N}{t_m \varepsilon p_\gamma F} \quad (5.8)$$

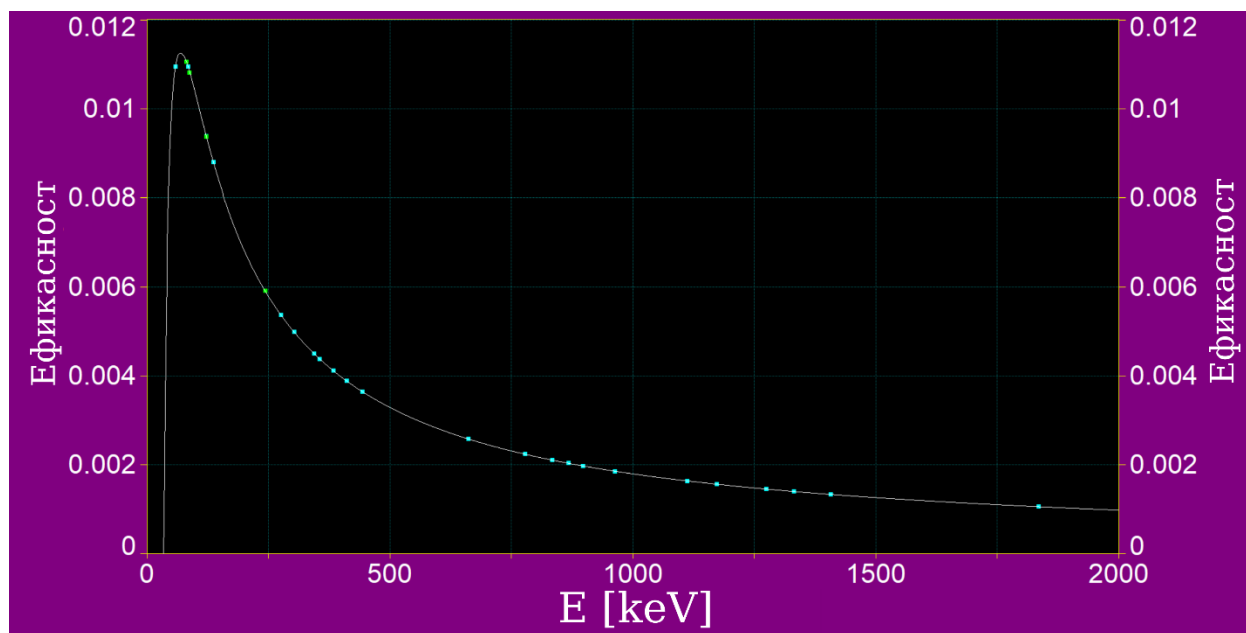
где  $A$  представља активност одређену преко гама пика одређене енергије,  $N$  представља одброј,  $t_m$  време аквизиције,  $p_\gamma$  је квантни принос гама пика а  $F$  корекциони фактор за конкретни фотопик.

#### *Полуемпиријски метод*

Ова метода се такође заснива на константној густини узорака. Користећи методологију развијену и описану у [Vranicar et al., 2021], односно претходном поглављу, коришћен је софтвер EFFTRAN и GEANT4 за добијање функција ефикасности детекције. Осим начина на који се долази до функције ефикасности (рзличитим процесима преко EFFTRAN и GEANT4 софтвера), метод израчунавања масене активности  $^{238}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  је идентичан. Резултати добијени у оквиру полуемпиријске методе, добијени су на основу података добијених мерењем узорака на детектору 1.



Како би се у софтверском пакету EFFTRAN добиле ефикасности за тражени узорак, у оквиру семиемпиријске методе, потребно је направити референтне криве ефикасности (*REC*). За детектор *ORTEC GMX-20190* ово је учињено фитовањем тачака експерименталне ефикасности у програму *TableCurve 2D* [*TableCurve, 2023*]. Поменути експерименталне ефикасности добијене су помоћу сета сертификованих тачкастих извора. *REC* је графички приказана на слици 5.24, док је функција фита приказана у једначини 5.9. Вредности појединих параметара у једначини 5.9 су следеће:  $a=5.1(4)$ ,  $b=-0.61(7)$ ,  $c=-24.9(17)$ ,  $d=0.039(4)$ ,  $e=67(4)$  и  $f=-75(3)$ . Сама функција у представља ефикасност детекције док је са  $x$  представљена енергија.



Слика 5.24. Референтна крива ефикасности за детектор *ORTEC GMX-20190*.

$$y = a + b \cdot \ln x + \frac{c}{\ln x} + d \cdot (\ln x)^2 + \frac{e}{(\ln x)^2} + f \cdot (\ln x)^3 + \frac{g}{(\ln x)^3} \quad (5.9)$$

На почетку анализе, претпоставило се да активност уранијума у измереним узорцима може да потиче од уранијума у различитим хемијским облицима – чистом U, UO<sub>2</sub> и U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> (претпоставка је да се нема претходног сазнања о пореклу или хемијском саставу узорака, а такође и да се тестира утицај различитих матрица на ефикасност детекције). Поред тога, применом GEANT4 пакета тестиран је утицај различитих масених садржаја уранијума у узорку на функцију ефикасности.

У узорку *1Б*, због његове густине од 0.81 g·cm<sup>-3</sup> и интензивне наранџасте боје, као и одсуства гама пикова који потичу од низа <sup>232</sup>Th, претпостављено је да је уранијум у овом узорку у облику жутог колача, односно U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> будући да је густина ове хемијске форме најмања од три наведене. Због вредности густине која је мања од самог земљишта, узето је да се узорак састоји од смеше земље која у садржи жути колач (густина ове земље узета је да буде густина узорка *2Б*) и ваздуха. Израчунато је да масени удео U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> у том земљишту износи 45.4 %. Густина земљишта је узета 1.4 g·cm<sup>-3</sup>.

У узорку 2Б, с обзиром на његову већу густину од  $2.25 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  и тамнију боју, претпостављено је да уранијум може бити присутан у различитим облицима – односно U,  $\text{UO}_2$  и  $\text{U}_3\text{O}_8$ . Као што је претходно наведено у итеративном методу, у узорку 2Б су примећени гама пикови од свих чланова низова  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$ . Унутар те методе се претпостављало да се узорак састоји од једног облика уранијума и земље. У оквиру полуемпиријске методе масени удели различитих конституената израчунавају се на основу разлике густине узорка 2Б и густине чисте матрице земљишта, која се узима као  $1.4 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ . Током сваког прорачуна претпостављено је да је сваки од конституената (U,  $\text{UO}_2$  и  $\text{U}_3\text{O}_8$ ) одговоран за додатну густину узорка, а на основу густина ова три састојка (19.0, 10.9 и  $8.3 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  респективно) и густине узорка, израчунато је да масени удели U,  $\text{UO}_2$  и  $\text{U}_3\text{O}_8$  износе 40.8 %, 43.4 % и 454 % респективно. Удели су рачунати у складу са следећом релацијом:

$$x \cdot \rho_{\text{земље}} + (1 - x) \cdot \rho_{(\text{U}, \text{UO}_2 \text{ или } \text{U}_3\text{O}_8)} = \rho_{\text{узорка}} \quad (5.10)$$

Решавањем релације 5.10 [Rikalo,2020] по x добијамо запремински удео одређеног конституента у узорку. Даљим множењем запреминског удела са запремином узорка а потом и густином одређеног конституента добијамо масени удео тог конституента у нашем узорку.

Као и у поглављу 5.1, и у овде је за потребе калибрације детектора коришћен сертификовани извор Чешког метролошког института типа CBSS-2.

Узимајући у обзир да одступања специфичних активности  $^{238}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  израчунатих на описан начин са овим избором матрица узорака нису занемарљива (даља дискусија ће бити представљена у оквиру резултата), указала се потреба за корекцијом претпостављених матрица узорка. Имајући ово у виду, хемијски састави узорака добијени у другој итерацији у итеративној методи су коришћени и примењени у даљем прорачуну помоћу EFFTRAN и GEANT4 софтвера.

#### Буџет мерне несигурности

Комбинована мерна несигурност за рачунату активност узорка преко ефикасности добијене EFFTRAN софтвером и Итеративним методом -  $u(A)$ , добијена је коришћењем релације:

$$u(A) = \sqrt{(\delta\varepsilon)^2 + (\delta N)^2 + (\delta p_\gamma)^2} \quad (5.11)$$

где  $\delta\varepsilon$  представља релативну несигурност фитоване функције ефикасности у комбинацији са релативном несигурношћу активности радиоактивног стандарда секундарног референтног материјала и несигурношћу уведеном процесом производње секундарног референтног материјала коју је дао произвођач (CBSS-2), коришћен у методи преноса ефикасности,  $\delta N$  је релативна несигурност одброја,  $\delta p_\gamma$  је грешка квантног приноса. Утицај времена  $t$  на комбиновану мерну несигурност је занемарљив. Укупна мерна несигурност  $u(A)$  за све енергије није прелазила 10% при нивоу поверења од  $2\sigma$ . Комбинована мерна несигурност за рачунату активност узорка преко ефикасности добијене GEANT4 софтвером је идентична као што је описано у поглављу 5.1 (релација 5.4).

## Резултати

## Итеративни метод - Узорак 1Б

Фотопик на 1001.03 keV се показао као најпоузданији за одређивање активности уранијума, где је требало одредити само корекционе факторе за права коинцидентна сумирања (TCS<sup>18</sup>). Поменути гама пик потиче од распада <sup>234m</sup>Pa, другог потомка <sup>238</sup>U.

Доприноси гама пику од 92.59 keV потичу од распада <sup>234</sup>Th (<sup>238</sup>U низ) и <sup>231</sup>Th (<sup>235</sup>U низ). У распаду <sup>234</sup>Th емитују се гама зраци 92.38 keV (2.31%) и 92.80 keV (2.1%), а уз емисију гама зрака, емитује се и рендгенско зрачење 92.28 (0.0171%) као последица распада <sup>234</sup>Th. Распад <sup>231</sup>Th је праћен емисијом гама зрака од 93.02 keV (0.047%) и X-зрака од 92.282 keV што узрокује интерференцију са фотонима емитованим распадом <sup>234</sup>Th. Неопходно је одузети допринос који потиче од чланова <sup>235</sup>U (<sup>231</sup>Th) од укупне површине пика. Овај допринос је израчунат преко релације:

$$N[92.59 \text{ keV}; {}^{231} \text{Th}] = A_{235\text{U}} \cdot t_m \cdot \varepsilon_{92.59} \cdot p_\gamma \quad (5.12)$$

Где је  $\varepsilon_{92.59}$  ефикасност детекције на 92.59 keV,  $p_\gamma$  комбинована вероватноћа емисије гама и рендгенских зрака и  $A_{235\text{U}}$  је активност <sup>235</sup>U. Постоји више метода за одређивање ове активности, једна од њих је описана у референци [Yücel et al, 2009]. Међутим, овде је узет другачији приступ и описан у релацији:

$$A_{235\text{U}} = \frac{0.007204\lambda_{235}}{0.992742\lambda_{235}} A_{238\text{U}}(1001 \text{ keV}) \quad (5.13)$$

Где су са 0.007204 и 0.992742 представљене изотопске заступљености <sup>235</sup>U и <sup>238</sup>U респективно, у природном уранијуму,  $\lambda_{235}$  и  $\lambda_{238}$  су њихове константе распада, а  $A_{238\text{U}}$  је активност <sup>238</sup>U.

<sup>238</sup>U низ доприноси пику на 63.29 keV са распадом <sup>234</sup>Th, <sup>234</sup>Pa и <sup>234m</sup>Pa. Распад <sup>234</sup>Th производи гама зраке од 62.86 keV (0.016%) и 63.29 keV (3.7%). Распади од <sup>234</sup>Pa и <sup>234m</sup>Pa дају гама зраке од 62.70 keV (0.0012% и 1.6% респективно). Интерференција је присутна због распада <sup>231</sup>Th, потомка <sup>235</sup>U. У овом распаду, емитује се гама зрак енергије 63.86 keV (0,023%), његов допринос је израчунат у наставку и потребно га је одузети од површине пика.

$$N[63.29 \text{ keV}; {}^{231} \text{Th}] = A_{235\text{U}} \cdot t_m \cdot \varepsilon_{63.29} \cdot p_\gamma \quad (5.14)$$

Где је  $A_{235\text{U}}$  је активност <sup>235</sup>U израчуната у релацији 6.7 а  $p_\gamma$  вероватноћа емисије (квантни принос) за гама зрак енергије 63.86 keV.

Активност <sup>235</sup>U се може израчунати коришћењем пикова на 143.76 keV, 163.33 keV и 185.72 keV. Доприноси пику од 143.76 keV у гама спектру потичу од распада <sup>235</sup>U и његових потомака <sup>223</sup>Ra и <sup>231</sup>Pa. Са распадом <sup>235</sup>U емитују се гаме на 142.40 keV (0.005%) и 143.76 keV (10.96%). У распаду

<sup>18</sup> TCS- True Coincidence Summing

$^{223}\text{Ra}$  и  $^{231}\text{Pa}$  емитују се гама зраци на 144.4 keV (0.015%) и 144.235 keV (0.0327%). Поред тога, са распадом  $^{234}\text{Pa}$ , потомка  $^{238}\text{U}$ , емитује се гама на 143.78 keV што узрокује сметње гама зрацима пореклом од  $^{235}\text{U}$  и његових потомака. Допринос  $^{234}\text{Pa}$  треба одузети од одброја да би се добио допринос ланца  $^{235}\text{U}$  из једначине 6.7. Допринос  $^{234}\text{Pa}$  се рачуна на следећи начин:

$$N[143.76 \text{ keV}; ^{234}\text{Pa}] = A_{238\text{U}} \cdot t_m \cdot \varepsilon_{143.76} \cdot p_\gamma \quad (5.15)$$

Где је  $A_{238\text{U}}$  је активност  $^{238}\text{U}$  добијена од сва три пика.

При распаду  $^{235}\text{U}$  и његовог потомка  $^{231}\text{Th}$ , емитују се гама зраци на 163.356 keV (5.08%) и 163.1 keV (0.154%), респективно. Поред тога, постоји мали допринос гама линије 164.94 keV која потиче од распада  $^{234}\text{Pa}$ . Њен допринос је израчунат у наставку (једначина 5.16) и треба га одузети из спектра од одброја фотопика на 163.33 keV.

$$N[163.33 \text{ keV}; ^{234}\text{Pa}] = A_{238\text{U}} \cdot t_m \cdot \varepsilon_{163.33} \cdot p_\gamma \quad (5.16)$$

Такође, при распаду  $^{235}\text{U}$  емитује се гама зрак на 185.72 keV (57.2%). При распаду  $^{234}\text{Pa}$ , емитује се фотопик на 186.15 keV што изазива интерференције. Допринос од  $^{234}\text{Pa}$  је израчунат у наставку (једначина 5.17) и треба га одузети од површине пика.

$$N[185.72 \text{ keV}; ^{234}\text{Pa}] = A_{238\text{U}} \cdot t_m \cdot \varepsilon_{185.72} \cdot p_\gamma \quad (5.17)$$

У Табели 5.8 представљене су активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  израчунате преко гама пикова који потичу од њихових потомака као и њихове отежано усредњене активности. Види се велика разлика између појединачних активности – рачунатих од раличитих пикова, што значи да је наша почетна претпоставка о конституентима узорка била погрешна. Неопходно је дефинисати нови састав узорка у другој итерацији да би се елиминисала ова неслагања.

**Табела 5.8.** Концентрација активности узорка *1Б*, у првој итерацији.

Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq kg <sup>-1</sup> ]	Усредњена активност [MBq kg <sup>-1</sup> ]
$^{238}\text{U}$	63.29	1.66±0.01	2.58±0.21
	92.59	2.66±0.17	
	1001.03	3.75±0.23	
$^{235}\text{U}$	143.76	0.11±0.01	0.119±0.003
	163.33	0.12±0.01	
	185.72	0.13±0.01	

За одређивање масе  $^{238}\text{U}$  и  $\text{U}_3\text{O}_8$  у узорку је коришћена активност израчуната преко гама пика на 1001.03 keV. Како је утицај матрице и густине најмањи на пику највеће енергије, активност рачуната из овог пика узета је као "тачна". Масе конституената рачунате су преко следећих једначина:

$$m'_{238\text{U}} = \frac{A_{238\text{U}}(1001 \text{ keV}) \cdot A_m(^{238}\text{U})}{\lambda_{238} \cdot N_A} = 6.24 \text{ g} \quad (5.18)$$

$$m_{\text{U}_3\text{O}_8} = \frac{m'_{238\text{U}}(3 \cdot A_m(^{238}\text{U}) + 8 \cdot A_m(^{16}\text{O}))}{3 \cdot A_m(^{238}\text{U})} = 7.35 \text{ g} \quad (5.19)$$

Ако сада искористимо масу  $\text{U}_3\text{O}_8$  дефинисане једначином (5.19) могуће је израчунати масу земљишта у узорку. *Узорак 1Б* у другој итерацији дефинисан је као 35.6% жутог колача и 64.4% сувог земљишта у библиотеци LabSOCS. Било је потребно поновити цео поступак који се састоји од одређивања ефикасности детектора помоћу софтвера LabSOCS, израчунавања фактора корекције за каскадна сумирања и прорачуна активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ . Резултати друге итерације приказани су у Табели 5.9. Активности одређене из различитих пикова сада имају подударне вредности и њихова одступања од отежане средње активности су унутар граница мерне несигурности.

**Табела 5.9.** Концентрација активности *узорка 1Б*, у другој итерацији.

Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq kg <sup>-1</sup> ]	Усредњена активност [MBq kg <sup>-1</sup> ]
$^{238}\text{U}$	63.29	3.56±0.22	3.59±0.08
	92.59	3.65±0.23	
	1001.03	3.59±0.23	
$^{235}\text{U}$	143.76	0.16±0.01	0.166±0.005
	163.33	0.16±0.01	
	185.72	0.17±0.01	

Користећи масене активности  $^{238}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  приказане у Табели 5.9, могу се израчунати масе  $^{238}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  у узорку, преко једначина 5.20 и 5.21, респективно.

$$m''_{238U} = \frac{A''_{238U} \cdot A_m(^{238}U)}{\lambda_{238} \cdot N_A} = 5.982 \text{ g} \quad (5.20)$$

$$m''_{235U} = \frac{A''_{235U} \cdot A_m(^{238}U)}{\lambda_{235} \cdot N_A} = 0.043 \text{ g} \quad (5.21)$$

#### Итеративни метод - Узорак 2Б

За разлику од узорка 1Б, у узорку 2Б постоје додатне сметње које потичу од распада из  $^{232}\text{Th}$  низа и преосталих чланова низа  $^{238}\text{U}$  који нису били присутни у узорку 1Б. Ове доприносе такође треба узети у обзир при израчунавању активности уранијума, одузимањем од одброја одговарајућих пикова у спектру. Да би се утврдио допринос ових радионуклида на тим пиковима, било је потребно прво утврдити њихову активност. Ови радионуклиди су присутни у узорку 2Б у свом природном облику па је претпостављено да су чланови  $^{232}\text{Th}$  низа и  $^{238}\text{U}$  низа који нису присутни у узорку 1Б у радиоактивној равнотежи. Активност чланова низа  $^{232}\text{Th}$  одређена је коришћењем референтних пикова  $^{228}\text{Ac}$  на 338.3 keV, 911.3 keV, и 969.9 keV. Активност  $^{228}\text{Ac}$  је одређена коришћењем отежане усредњене вредности ова три пика, а активност осталих радионуклида из низа  $^{232}\text{Th}$  је одређена на основу радиоактивне равнотеже између њих и  $^{228}\text{Ac}$ . Идентична техника је коришћена за одређивање активности радионуклида из ланца  $^{238}\text{U}$  (оних који нису присутни у првом узорку), помоћу три референтна пика  $^{214}\text{Bi}$  на 609.3 keV, 1120.3 keV, и 1764.5 keV.

Додатни доприноси су узети у обзир током прорачуна активности  $^{238}\text{U}$  уз помоћ пикова на 63.29 keV (распад  $^{232}\text{Th}$  који даје гама зраке на 63.81 keV) и 92.59 keV (распад  $^{228}\text{Ac}$  који производи гама зраке на 93.35 keV). Приликом рачунања активности  $^{235}\text{U}$  уз помоћ пика од 185.72 keV било је потребно додатно одузети доприносе од  $^{226}\text{Ra}$  (186.2 keV) и  $^{228}\text{Ac}$  (184.54 keV). На основу запажања добијених из гама спектра узорака – одсуство пострадонских гама пикова (углавном 295.2 keV, 351.9 keV и 609.3 keV) указује да постоји мали или никакав допринос  $^{226}\text{Ra}$  пику од 185.72 keV. Тај утицај је сматран занемарљивим.

У првој итерацији, узорак 2Б је дефинисан следећим конституентима – 45.47% жутог колача, 38.17% земље и 16.36% воде. Након утврђивања ефикасности детектора и фактора корекције, израчуната је активност узорка 2Б узимајући у обзир све ефекте интерференције. Израчунате активности у првој итерацији приказане су у Табели 5.10.

Табела 5.10. Концентрација активности узорка 2Б, у првој итерацији.

Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq kg <sup>-1</sup> ]	Усредњена активност [MBq kg <sup>-1</sup> ]
<sup>238</sup> U	63.29	4.92±0.31	5.96±0.11
	92.59	5.38±0.33	
	1001.03	6.63±0.41	
<sup>235</sup> U	143.76	0.25±0.02	0.26±0.06
	163.33	0.24±0.01	
	185.72	0.30±0.02	

Израчунате активности <sup>238</sup>U на основу различитих гама пикова нису биле међусобно усклађене тако да је било неопходно дефинисати нови састав узорка на основу активности одређене коришћењем пика од 1001.03 keV. Нова маса жутог колача одређена је једначинама (5.22) и (5.23) и на основу тога је одређен нови састав узорка за другу итерацију као: 63.33% жутог колача, 25.67% земље и 11% воде.

$$m'_{238U} = \frac{A_{238U}(1001 \text{ keV}) \cdot A_m(^{238}\text{U})}{\lambda_{238} \cdot N_A} = 26.47 \text{ g} \quad (5.22)$$

$$m_{U_3O_8} = \frac{m'_{238U}(3 \cdot A_m(^{238}\text{U}) + 8 \cdot A_m(^{16}\text{O}))}{3 \cdot A_m(^{238}\text{U})} = 31.21 \text{ g} \quad (5.23)$$

Понављајући претходно описан поступак, нове активности су срачунате у другој итерацији, и приказане су у Табели 5.11.

Табела 5.11. Концентрација активности узорка 2Б, у другој итерацији.

Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq kg <sup>-1</sup> ]	Усредњена активност [MBq kg <sup>-1</sup> ]
<sup>238</sup> U	63.29	6.61±0.41	6.65±0.12
	92.59	6.74±0.42	
	1001.03	6.65±0.41	
<sup>235</sup> U	143.76	0.32±0.02	0.315±0.008
	163.33	0.31±0.02	
	185.72	0.32±0.02	

Како су израчунате активности <sup>238</sup>U на основу различитих гама пикова међусобно добро усаглашене у оквиру мерне несигурности, користећи масене активности <sup>238</sup>U и <sup>235</sup>U приказане у Табели 5.11, могу се израчунати масе <sup>238</sup>U и <sup>235</sup>U у узорку, преко једначина 5.24 и 5.25, респективно.

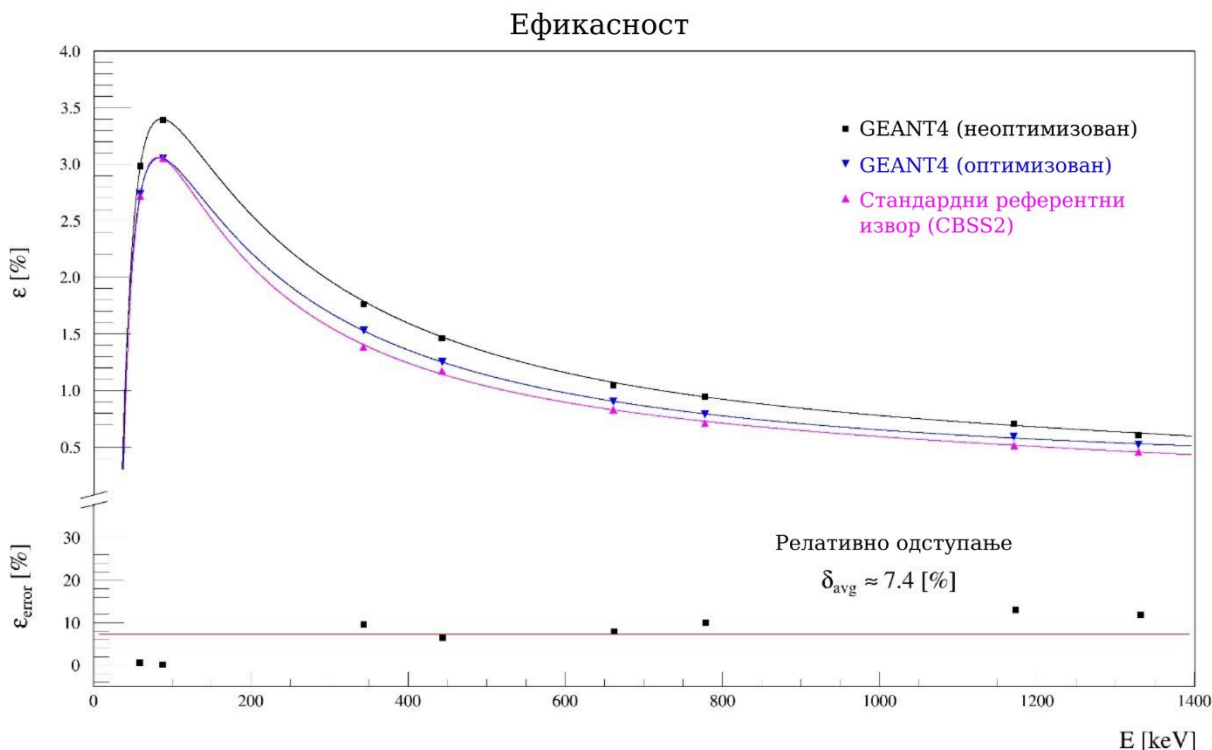
$$m''_{238U} = \frac{A''_{238U} \cdot A_m(^{238}U)}{\lambda_{238} \cdot N_A} = 26.54 \text{ g} \quad (5.24)$$

$$m''_{235U} = \frac{A''_{235U} \cdot A_m(^{238}U)}{\lambda_{235} \cdot N_A} = 0.195 \text{ g} \quad (5.25)$$

#### Полумитријски метод

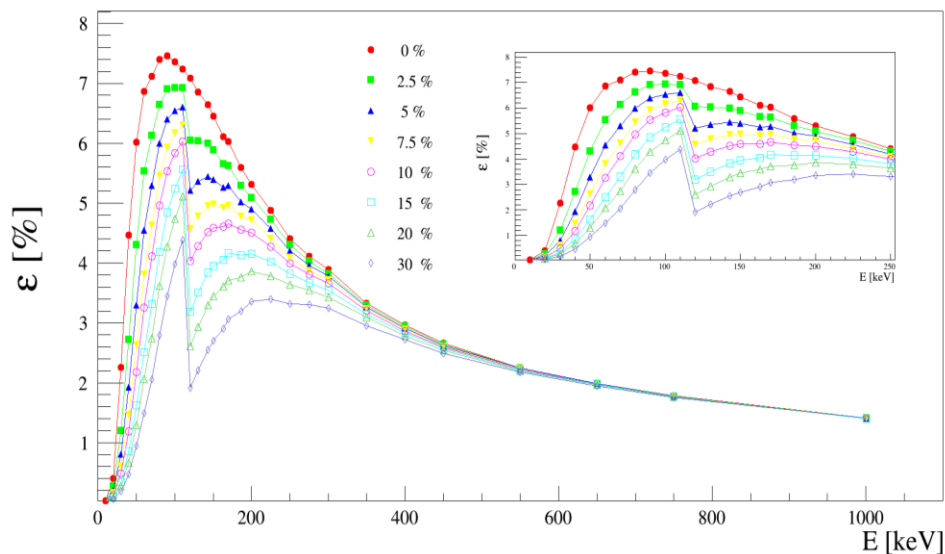
Да би се осигурало да су вредности ефикасности детекције добијене помоћу GEANT4 софтвера довољно добре, метод трансфера ефикасности је спроведен на следећи начин: коришћене су карактеристике произвођача детектора уз додатно подешавање геометрије (као што је дебљина мртвих слојева [Tsang et al.,2019], растојање кристала од прозора итд.) са циљем валидације резултата симулације. Измерене и симулиране криве ефикасности сертификованог референтног материјала CBSS 2 приказане су на слици 5.25. У просеку, одступање од експериментално добијене криве ефикасности од сертификованог стандардног опсега извора пада испод 8%. Прилагођене карактеристике детектора су затим коришћене за све даље прорачуне за испитиване узорке [Vranicar et al.,2021].





**Слика 5.25.** Експерименталне и симулиране криве ефикасности добијене помоћи стандардног референтног материјала CBSS 2.

На слици 5.26 приказани су резултати утицаја различитих масених удела уранијума у узорку на функцију ефикасности, коришћењем GEANT4 пакета. Да би се тестирао и видео утицај различитих масених удела у матрицама узорака на криве ефикасности детекције, симулиран је скуп произвољних вредности концентрације уранијума у оквиру GEANT4 кода. Вредности масених удела уранијума у матрицама узорака узети су од 0-30% у различитим корацима. Са слике 5.26 може се закључити да концентрација уранијума има јачи утицај у нискоенергетском спектру у односу на високоенергетски регион. Нагли пад вредности ефикасности који се може приметити на 115 keV представља К-ивицу уранијума.



Слика 5.26. Утицај различитих масених удела уранијума у матрици узорка на функцију ефикасности детекције.

Пад ефикасности се објашњава на следећи начин – када фотони ове енергије дођу до атома уранијума на путу до детектора, они избијају К-електрон из атомског омотача и бивају апсорбовани (то додатно изазива емитовање карактеристичног рендгенског зрачења уранијума). Услед ове појаве, знатно мањи број фотона енергије 115 keV стиже до детектора, услед чега долази до наглог пада функције ефикасности. Енергије које су укључене у анализу спроведену у овом истраживању у оквиру полумпиријске методе леже ван зоне К-ивице, тако да се може са сигурношћу претпоставити да коришћене ефикасности нису под утицајем овог феномена. Резултати прве апроксимације, односно да активност уранијума уочена у гама спектрима два узорка, потиче од уранијума у различитим хемијским облицима ( $U$ ,  $UO_2$ , и  $U_3O_8$ ), дати су у Табелама 5.12 и 5.13.

Табела 5.12 - Концентрације активности  $^{235}U$  и  $^{238}U$  за узорак *1B* ( $0.81 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) у првој апроксимацији

Матрица	Софтвер	Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq kg <sup>-1</sup> ]
$U_3O_8$	EFFTRAN	$^{238}U$	63.3	3.93±0.23
			1001.03	3.33±0.20
		$^{235}U$	143.8	0.18±0.01
			163.3	0.19±0.01
			185.7	0.19±0.01
	GEANT4	$^{238}U$	63.3	4.39±0.26
			1001.03	3.58±0.21
		$^{235}U$	143.8	0.19±0.01
			163.3	0.18±0.01
			185.7	0.18±0.01

Табела 5.13. Концентрације активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  за узорак 2Б ( $2.25 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) у првој апроксимацији.

Матрица	Софтвер	Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq kg <sup>-1</sup> ]
U	EFFTRAN	$^{238}\text{U}$	63.3	3.75±0.23
			1001.03	5.65±0.34
		$^{235}\text{U}$	143.8	0.24±0.01
			163.3	0.24±0.01
			185.7	0.27±0.02
	GEANT4	$^{238}\text{U}$	63.3	4.84±0.30
			143.8	0.24±0.01
		$^{235}\text{U}$	163.3	0.24±0.01
			185.7	0.24±0.01
			1001.03	6.09±0.37
UO <sub>2</sub>	EFFTRAN	$^{238}\text{U}$	63.3	3.55±0.22
			1001.03	5.67±0.35
		$^{235}\text{U}$	143.8	0.23±0.01
			163.3	0.23±0.01
			185.7	0.26±0.02
	GEANT4	$^{238}\text{U}$	63.3	4.56±0.28
			1001.03	6.07±0.38
		$^{235}\text{U}$	143.8	0.23±0.01
			163.3	0.23±0.01
			185.7	0.24±0.01
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	EFFTRAN	$^{238}\text{U}$	63.3	3.57±0.22
			1001.03	5.67±0.35
		$^{235}\text{U}$	143.8	0.23±0.01
			163.3	0.23±0.01
			185.7	0.26±0.02
	GEANT4	$^{238}\text{U}$	63.3	4.60±0.28
			1001.03	6.07±0.36
		$^{235}\text{U}$	143.8	0.23±0.01
			163.3	0.23±0.01
			185.7	0.24±0.01

У Табели 5.12 приказани су резултати прве апроксимације за концентрације активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  за узорак 1Б. Узимајући у обзир његову наранџасту боју и мању густину, претпостављено је да се уранијум у овом узорку налази у облику U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>. Види се да постоји значајна разлика између

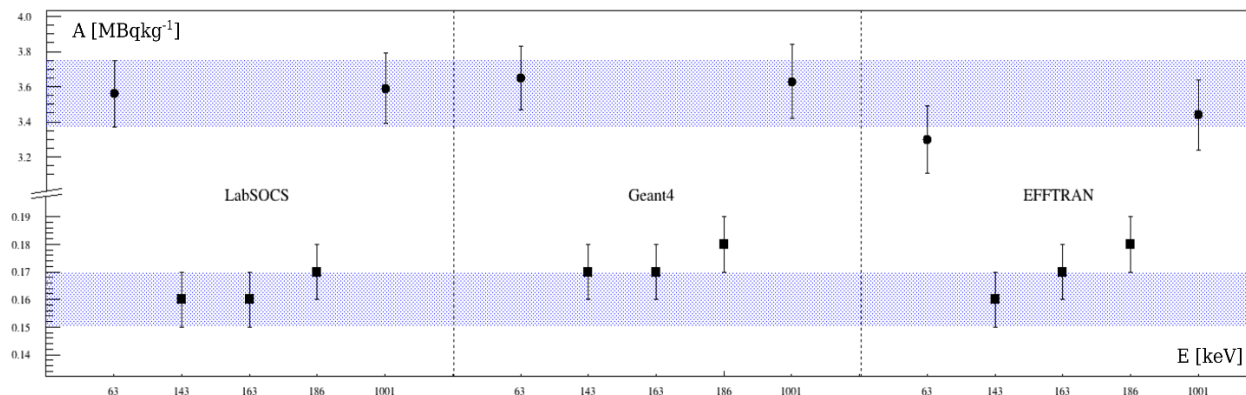
концентрација активности израчунатих за енергије 63.3 keV и 1001.03 keV, што указује да матрица узорка није добро дефинисана.

У Табели 5.13 приказани су резултати прве апроксимације за концентрације активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  за узорак 2Б. У овом случају, имајући у виду тамнију боју, већу густину као и присуство гама линија из низова  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$ , претпостављено је да активност уранијума у овом узорку може бити у облику U,  $\text{UO}_2$  и  $\text{U}_3\text{O}_8$ . У овом случају је такође присутна значајна разлика између концентрација активности израчунатих за енергије 63.3 keV и 1001.03 keV, као и разлика међу вредностима концентрације активности изотопа уранијума за различите матрице, што осликава утицај хемијске форме, а самим тим и концентрације уранијума у матрици узорка.

Будући да је уочена велика разлика у вредностима концентрације активности  $^{238}\text{U}$  рачунатим преко ниских и високих енергија, како за узорак 1Б тако и за узорак 2Б, морала је да се дефинише другачија матрица узорка. За ове потребе узете су матрице добијене другом итерацијом у итеративној методи, како би се тестирала и квантификовала одступања у масеним активностима  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  добијеним различитим методама. Ови резултати приказани су на сликама 5.27 и 5.28, као и Табелама 5.14 и 5.15.

**Табела 5.14.** Концентрације активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  за узорак 1Б ( $0.81 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) у другој апроксимацији.

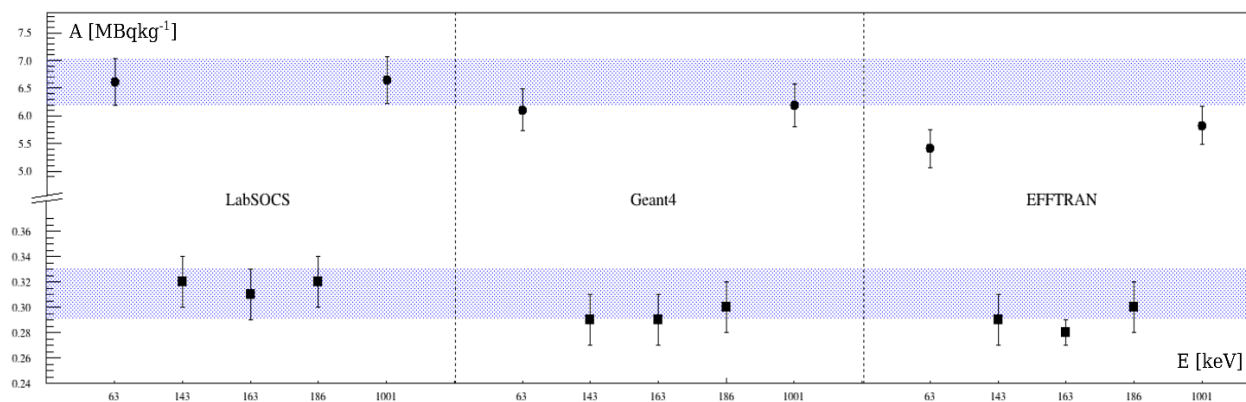
Софтвер	Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq kg <sup>-1</sup> ]
LabSOCS	$^{238}\text{U}$	63.3	3.56±0.19
		1001.03	3.59±0.20
	$^{235}\text{U}$	143.8	0.16±0.01
		163.3	0.16±0.01
EFFTRAN	$^{238}\text{U}$	185.7	0.17±0.01
		63.3	3.30±0.19
	$^{235}\text{U}$	1001.03	3.44±0.20
		143.8	0.16±0.01
GEANT4	$^{238}\text{U}$	163.3	0.17±0.01
		185.7	0.18±0.01
	$^{235}\text{U}$	63.3	3.65±0.18
		1001.03	3.63±0.21
$^{235}\text{U}$	143.8	0.17±0.01	
	163.3	0.17±0.01	
		185.7	0.18±0.01



Слика 5.27. Концентрације активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  за узорак 1B добијене итеративном и полумпиријском методом.

Табела 5.15. Концентрације активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  за узорак 2B ( $2.25 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) у другој апроксимацији.

Софтвер	Радионуклид	Енергија [keV]	Концентрација активности [MBq kg <sup>-1</sup> ]
LabSOCS	$^{238}\text{U}$	63.3	$6.61 \pm 0.41$
		1001.03	$6.65 \pm 0.42$
	$^{235}\text{U}$	143.8	$0.32 \pm 0.02$
		163.3	$0.31 \pm 0.02$
		185.7	$0.32 \pm 0.02$
EFFTRAN	$^{238}\text{U}$	63.3	$6.11 \pm 0.38$
		1001.03	$6.19 \pm 0.38$
	$^{235}\text{U}$	143.8	$0.29 \pm 0.02$
		163.3	$0.29 \pm 0.02$
		185.7	$0.30 \pm 0.02$
GEANT4	$^{238}\text{U}$	63.3	$5.41 \pm 0.34$
		1001.03	$5.83 \pm 0.35$
	$^{235}\text{U}$	143.8	$0.29 \pm 0.02$
		163.3	$0.28 \pm 0.01$
		185.7	$0.30 \pm 0.02$



Слика 5.28. Концентрације активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  за узорак 2B добијене итеративном и полуемпиријском методом.

Из Табела 5.14 и 5.15 се може видети да иако се израчунате активности  $^{238}\text{U}$  од 63.3 keV и 1001.03 keV од стране софтвера EFFTRAN и GEANT4 незнатно разликују од оних добијених итеративном методом за узорак 2B, ако се посматрају вредности израчунатих активности  $^{238}\text{U}$  преко 63.3 keV и 1001.03 keV од сваког софтвера појединачно, пронађена је добра сагласност између вредности активности за наведене енергије. Са слике 5.26 се може видети да софтвер EFFTRAN даје потцењене вредности концентрације активности, иако се, судећи по вредностима активности од 63.3 keV и 1001.03 keV, примећује да је дефинисана добра матрица узорка. У случају узорка 1B, уочено је добро слагање свих метода. Одступања између вредности активности нису већа од 15%.

#### Основни закључци утицаја матрице, односно састава узорка

За потребе одређивања специфичне активности  $^{238}\text{U}$ , коришћени су гама пикови на 63.3 keV ( $^{234}\text{Th}$ ) и 1001.03 keV ( $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ) уз додаток 92.6 keV гама пика ( $^{234}\text{Th}$ ) у итеративној методи, док су за специфичне активности  $^{235}\text{U}$ , коришћени гама пикови на 143.8 keV, 163.3 keV и 185.7 keV и информације о природној заступљености  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ . Узорци анализирани у оквиру овог истраживања пронађени су у некадашњем лежишту руде уранијума Маздреја у источној Србији, а дедукцијом се дошло до тога се они састоје од жутог колача помешаног са сувом или влажном земљом.

Добијени резултати су показали да је од велике важности добро "подесити" матрицу узорка како би се добили тачни резултати. Као што се види у Табелама 5.14 и 5.15 и сликама 5.27 и 5.28, све три методе дале су упоредиве резултате, са одступањем између резултата концентрације активности не већим од 15%. Иако се резултати EFFTRAN-а незнатно разликују од резултата итеративне методе и GEANT4 софтвера, треба нагласити да овај софтвер пружа резултате у краћем временском интервалу од поменута два. Имајући на уму речено, EFFTRAN представља добар алат за 'screening' методу, која даје брзе резултате концентрације активности са задовољавајућим нивоом поверења.

Генерални закључак би могао бити да је, уколико нам је потребан прецизан резултат, веома важно прилагодити матрицу узорка стварном саставу. Међутим, ако је битно да се у што краћем временском року добију резултати, онда се за процену концентрације активности анализираних узорка може користити и приближан састав узорка. Све три тестиране анализираних методе дале су упоредиве резултате унутар 15% разлике. Највећу разлику је дао EFFTRAN софтвер, али са друге

стране овај софтвер је лак за коришћење и резултати се могу добити брже него коришћењем других метода анализе представљених у овом истраживању.

Да би се извршила још детаљнија валидација добијених резултата, хемијски састав узорака треба мерити неком прецизнијом методом и то би могао бити следећи корак у будућем истраживању ове теме.

---

## 6. РЕЗУЛТАТИ ИСТРАЖИВАЊА – АНАЛИЗА НУКЛЕАРНИХ МАТЕРИЈАЛА

---

Иако се у рутинским гамаспектрометријским лабораторијама које се баве анализом узорака пореклом из животне средине (NORM) PC FRAM софтвер преваходно не користи, он као комерцијални софтвер своју примену налази у лабораторијама које се баве анализом нуклеарног материјала. Првобитно је био развијен за потребе анализе материјала који садржи плутонијум, међутим погодан је такође и за анализу уранијумских материјала.

На тржишту постоје и други комерцијални софтвери који се користе за анализу нуклеарног материјала као што су то MGA++ и MGAU пакети [MGA++,2023; Gunnick et al.,1994]. Они су веома погодни и једноставни за коришћење из разлога што се целокупна изотопска анализа уранијума и плутонијума своди на свега пар корака. Са друге стране ово је уједно и њихова мана, са становишта искунијих гамаспектрометриста, будући да они представљају својеврсну црну кутију ("*black-box*"), односно кориснику не дају слободу да утиче на ток анализе на било који начин. PC FRAM софтвер ово чини могућим, тиме што кориснику омогућава да анализу прилагоди потребама конкретног мерења. Ово се постиже другачијим одабиром или пак стварањем потпуно новог сета параметара чиме се дефинише тип детектора као и погодан енергетски регион за анализу, затим облик (врста) функције ефикасности, селекција фотопикова који се користе за калибрације енергије, облика и ефикасности као и многе друге опције унутар самог софтвера.

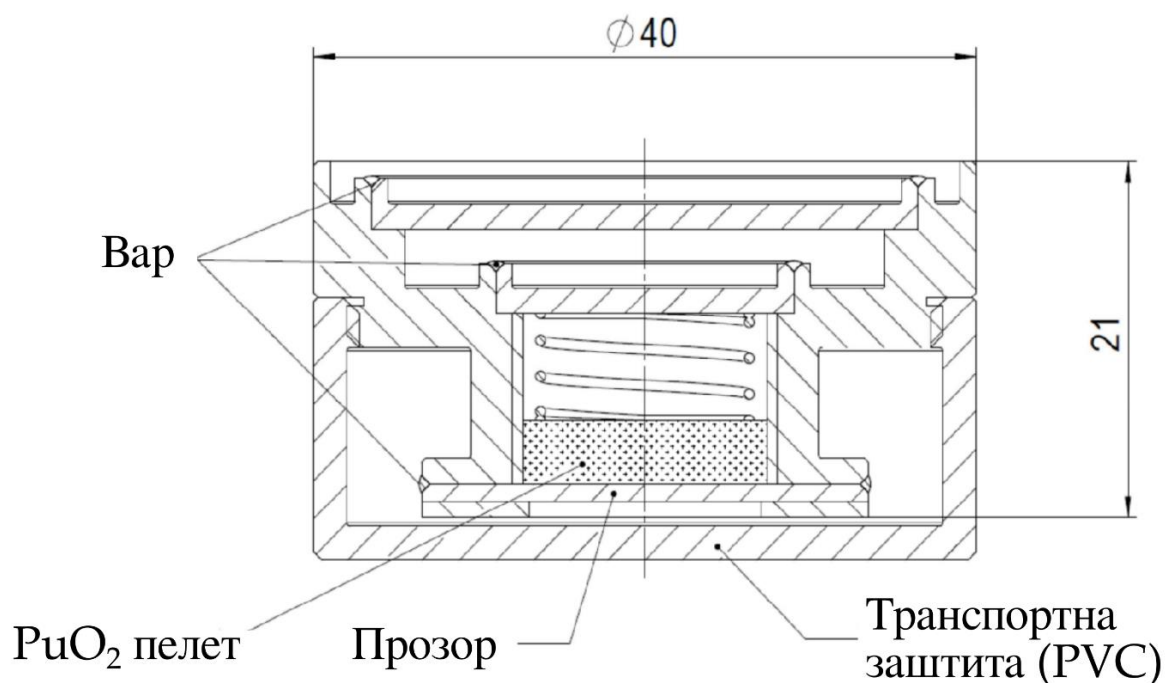
У оквиру овог поглавља урађено је тестирање PC FRAM софтвера, у погледу анализирања спектра различитих нуклеарних материјала. За ове потребе коришћени су спектри сертификованих стандардних материјала уранијума [CBNM\_U,1985] и плутонијума [CBNM\_Pu,1989] који су снимљени у *Joint Research Centre-Institute for Transuranium Elements* (ITU) у Карлсруеу, у оквиру заједничког рада на развоју недеструктивних метода мерења нуклеарних материјала. Плутонијумски спектри снимљени су у таквој конфигурацији да су се узорак и детектор налазили на фиксној удаљености од 10 cm са волфрамским колиматором, док су се између њих постављали атенуатори/паравани од различитих материјала и дебљина и то – у случају гвожђа (Fe), дебљина 0-16 mm, у случају кадмијума (Cd), дебљина 0-2 mm и у случају олова (Pb), дебљина 0-4 mm. За потребе прикупљања спектра користио се електрично хлађен HPGe преносни детектор, ознаке *microDetective*, произвођача ORTEC. Кристал детектора је пречника 50 mm и висине 30 mm, са *conversion gain* (појачањем) подешеним на 0.125 keV/channel, како би се поклопио са *gain*-ом (појачањем) унутар "*default*" PC FRAM сетовима параметара. [Zsigrai et al.,2019]. Спектри уранијума су снимани под сличним условима, само су се у овој инстанци користили атенуатори од Fe дебљина 0-16 mm. Спектри стандардних уранијумских материјала снимани су са електрично хлађеним HPGe преносним детектором, ознаке *Detective*, такође произвођача ORTEC. Кристал детектора је истих димензија као код *microDetective*, са енергетском резолуцијом  $\leq 2.0$  keV на 1332 keV и  $\leq 1.0$  keV на 122 keV. Појачање код овог детектора је фабрички подешено на 0.365 keV/channel и не може се мењати [Zsigrai et al.,2017]. У даљем тексту биће приказан део резултата анализе претходно поменутих спектра.



Анализирани су спектри од стандардних нуклеарних референтних материјала чији је изотопски састав у масеним процентима приказан у Табелама 6.1 и 6.2. Уранијумски и плутонијумски стандарди су волуминозни енкапсулирани извори, чији је шематски приказ дат на сликама 6.1 и 6.2 [TechRep\_U,2015; TechRep\_Pu,2015]. У случају уранијумских стандардних материјала, сваки извор садржи 200 g UO<sub>2</sub> унутар алуминијумског контејнера дебљине 2 mm.

**Табела 6.1.** Изотопски састав стандардних референтних СВNM материјала плутонијума датих са мерном несигурношћу од 2σ на дан 20.06.1986. [TechRep\_Pu,2015].

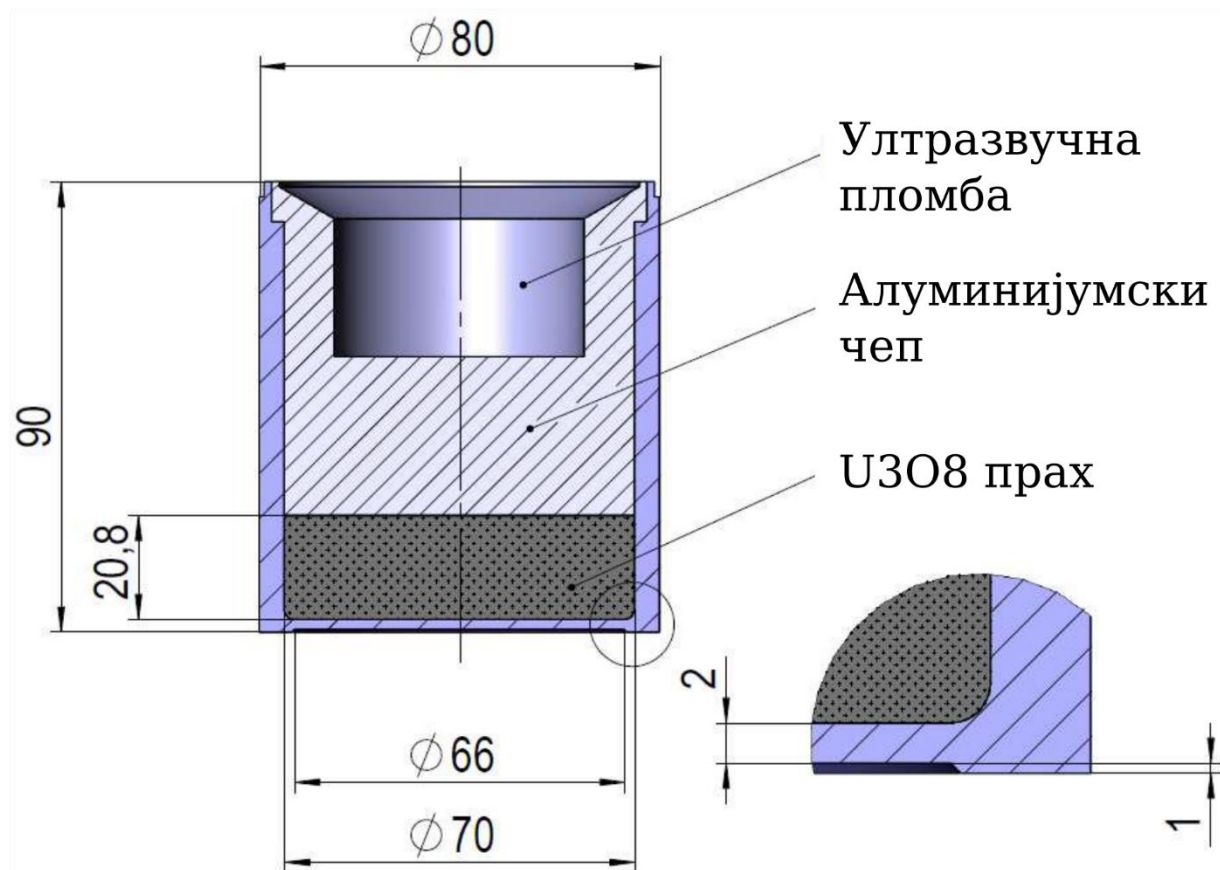
Референтни узорак	Изотоп [mass %]					
	<sup>238</sup> Pu	<sup>239</sup> Pu	<sup>240</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu	<sup>242</sup> Pu	<sup>241</sup> Am
СВNM Pu93	0.01170(3)	93.412(4)	6.313(4)	0.2235(4)	0.0395(3)	0.1047(21)
СВNM Pu84	0.0703(6)	84.338(8)	14.207(8)	1.0275(18)	0.357(1)	0.2173(22)
СВNM Pu70	0.8458(18)	73.319(10)	18.294(9)	5.463(3)	2.0772(23)	1.170(12)
СВNM Pu61	1.1969 (25)	62.525(28)	25.406(24)	6.679(9)	4.192(6)	1.445(14)



**Слика 6.1.** Шематски приказ изгледа стандардних референтних СВNM материјала плутонијума [TechRep\_Pu,2015].

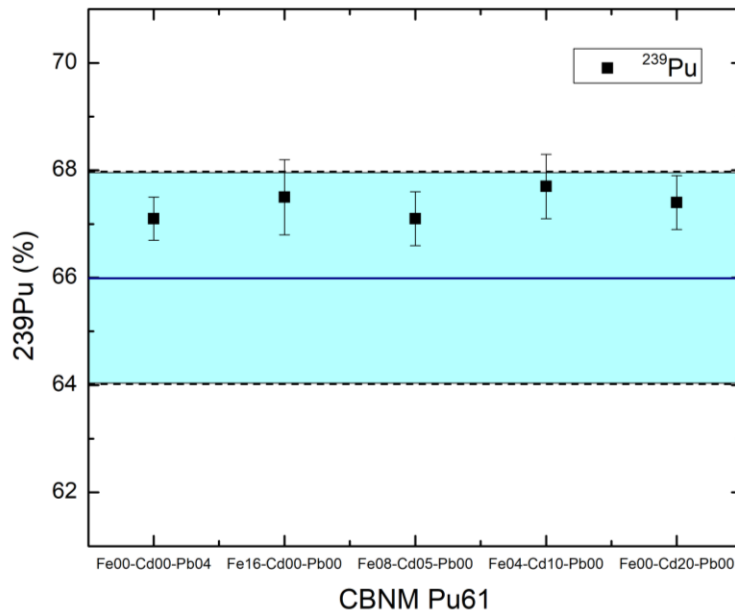
Табела 6.2. Изотопски састав стандардних референтних CBNM материјала уранијума датих са мерном несигурношћу од  $2\sigma$  [TechRep\_U,2015].

Референтни узорак	Изотоп [mass %]				
	$^{235}\text{U}$	$^{232}\text{U}$	$^{234}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{2238}\text{U}$
CBNM 031	0.3166(2)	$2.1(5) \cdot 10^{-10}$	0.0020(2)	0.0146(3)	99.6669(4)
CBNM 071	0.7119(5)	$<1 \cdot 10^{-11}$	0.0052(2)	$<0.00002$	99.2828(4)
CBNM 194	1.9420(14)	$3(3) \cdot 10^{-11}$	0.0171(2)	0.0003(1)	98.0406(18)
CBNM 295	2.9492(21)	$6(2) \cdot 10^{-11}$	0.0279(4)	0.0033(2)	97.0196(29)
CBNM 446	4.4623(32)	$3.7(3) \cdot 10^{-10}$	0.0359(3)	0.0068(2)	95.4950(32)

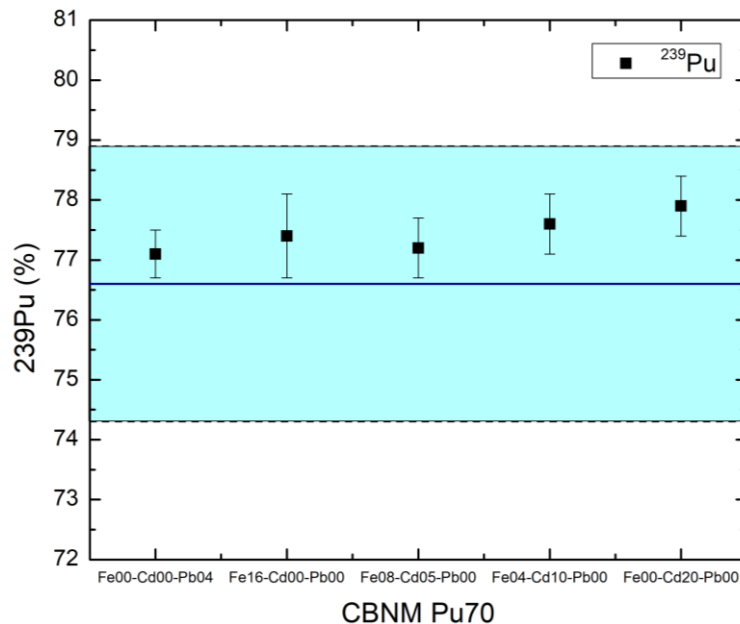


Слика 6.2. Шематски приказ изгледа стандардних референтних CBNM материјала уранијума. Висина пуњења односно дебљина материјала извора је 20.8 mm са све узорке сем CBNM 446 за који је висина пуњења 15.8 mm [TechRep\_U,2015].

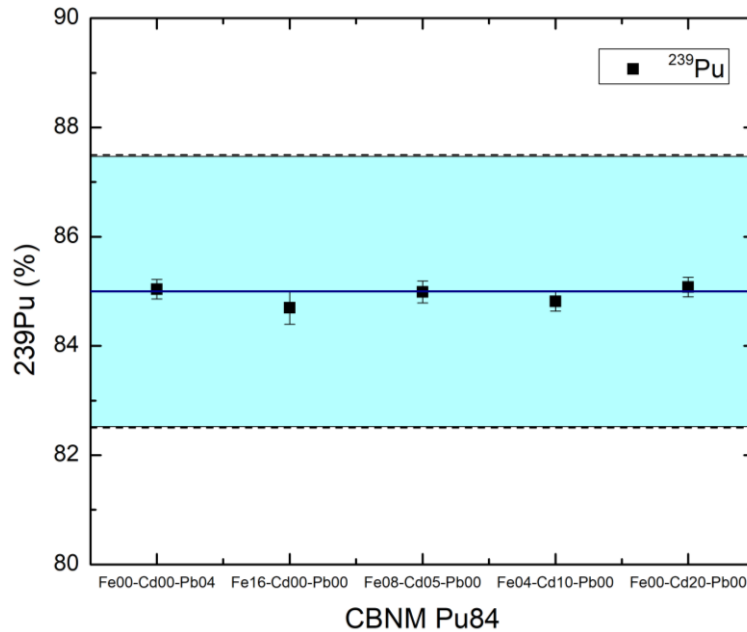
У наставку ће бити приказани резултати анализе спектра стандардних нуклеарних референтних материјала у PC FRAM софтверу. Анализирано је слагање масених удела које даје PC FRAM софтвер са референтном вредношћу масених удела конкретног радиоизотопа. У случају уранијумских спектра то је  $^{235}\text{U}$ , а у случају плутонијумских спектра је то масени удео  $^{239}\text{Pu}$ . Резултати у вези са плутонијумским стандардима дати су на сликама 6.3-6.6, док су резултати анализе уранијумских спектра дати на сликама 6.7-6.16.



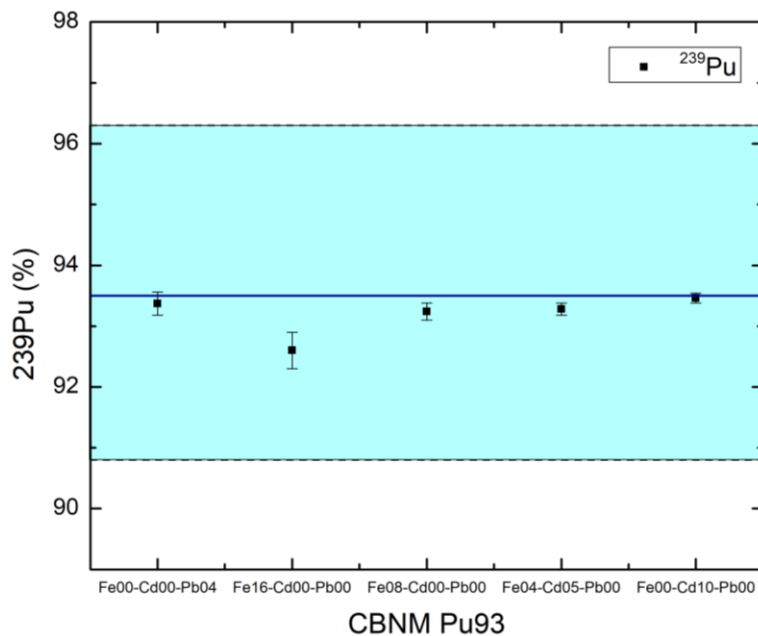
Слика 6.3. Масени удели  $^{239}\text{Pu}$  у материјалу CBNM Pu61 за различите комбинације паравана/атенуатора.



Слика 6.4. Масени удели  $^{239}\text{Pu}$  у материјалу CBNM Pu70 за различите комбинације паравана/атенуатора.



Слика 6.5. Масени удели  $^{239}\text{Pu}$  у материјалу CBNM Pu84 за различите комбинације паравана/атенуатора.



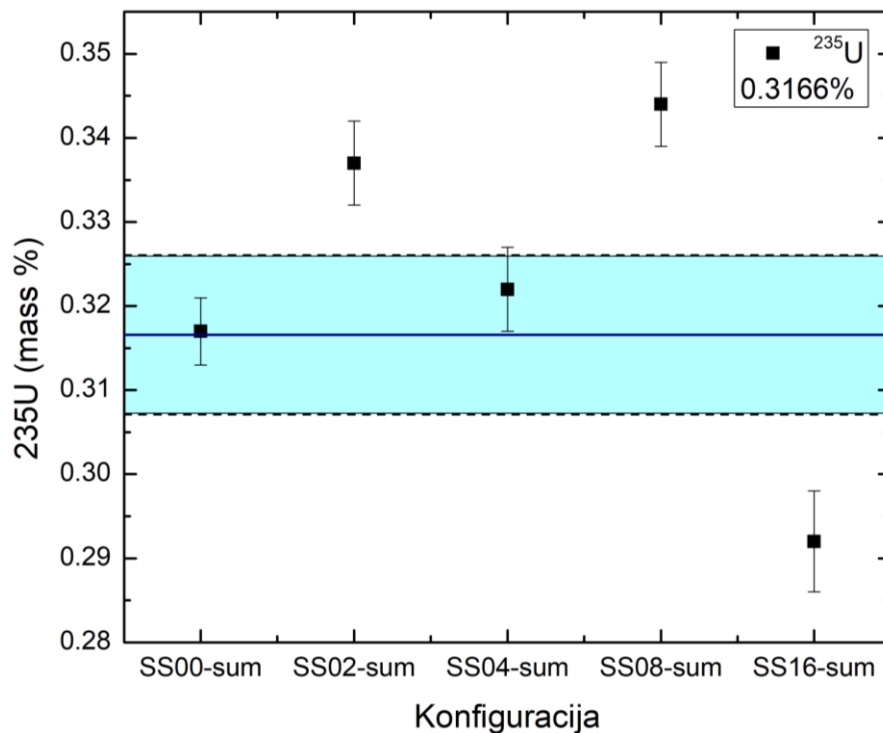
Слика 6.6. Масени удели  $^{239}\text{Pu}$  у материјалу CBNM Pu93 за различите комбинације паравана/атенуатора.

У случају плутонијумских спектра, односно њихове анализе, референтне вредности масених удела  $^{239}\text{Pu}$  приказане у Табели 6.1 морале су бити кориговане на распад и прилагођене начину на које PC FRAM софтвер рачуна масене уделе. PC FRAM избацује резултате тако да збир масених удела свих пријављених изотопа плутонијума даје 100%. Изотоп који са временом највише утиче на ове резултате је  $^{241}\text{Pu}$ , будући да се он распада са периодом полураспада од 14.35 година. Како су спектри снимани у јуну 2018. године, срачунато је колико је изотопа  $^{241}\text{Pu}$  остало нераспаднуто у

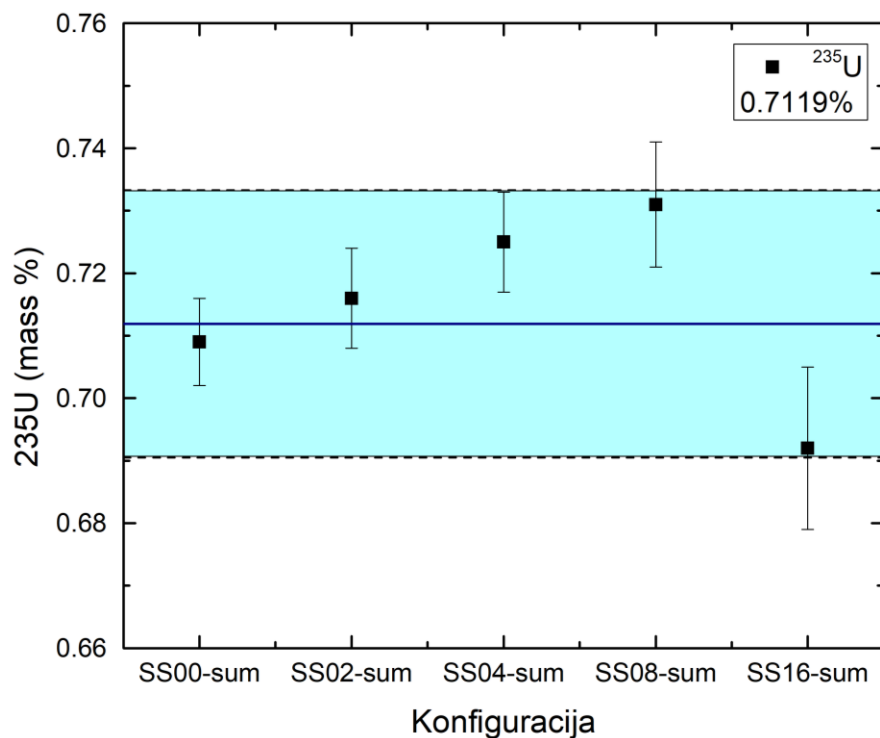
том моменту, те су масени удели осталих изотопа плутонијума нормирани тако да њихов збир опет даје 100%.

Мерне несигурности дате у Табели 6.1 су изразито мале, будући да су ове вредности добијене масеном спектрометријом. Као коридор грешке референтне вредности масеног удела  $^{239}\text{Pu}$ , услед тога је, на графицима приказаним на сликама 6.3-6.6 узето да буде 3% вредности, што је у складу са редом величине мерне несигурности у стандардним гамаспектрометријским мерењима. Са слика 6.3-6.6 може се закључити да су сви резултати које је дао софтвер PC FRAM у доброј сагласности са референтним вредностима, узимајући у обзир поменути коридор грешке мерене вредности од 3%.

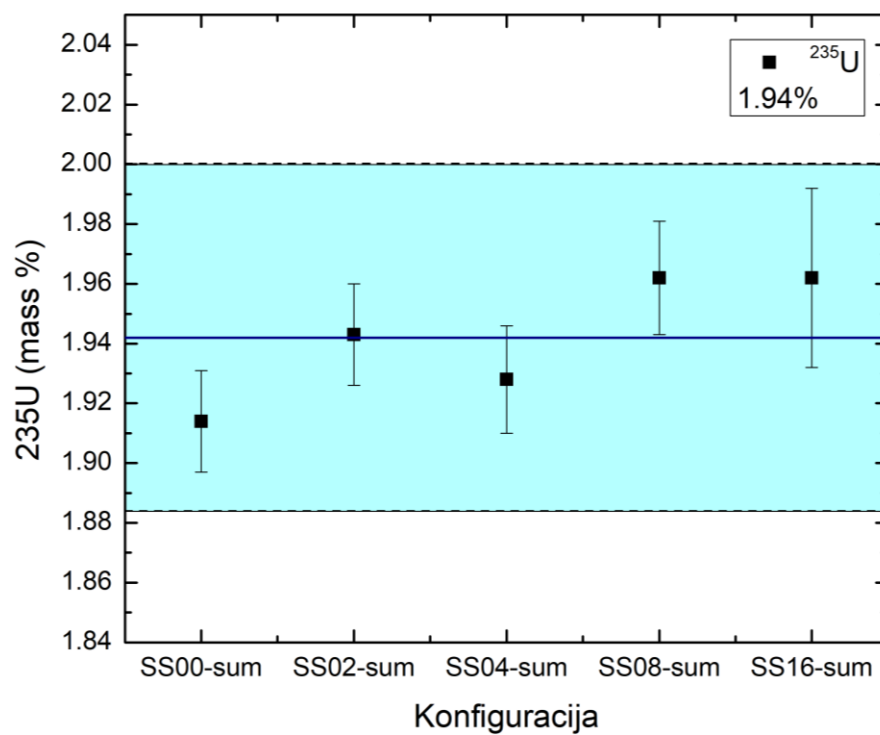
Сваки од ових плутонијумских извора при самом мерењу спектра није вађен из свог контејнера, будући да представља велику радиолошку опасност у смислу потенцијалне примљене дозе зрачења за оператера мерења, али и чињенице да је сам контејнер заварен. За потребе анализа су спектри референтних материјала снимани са различитим комбинацијама атенуатора/заштита од Cd, Fe и Pb у различитим дебљинама, како би се испитала могућност њихове примене као ефективне заштите од зрачења али и материјала контејнера. Кадмијум се користио како би атенуирао интензивно гама зрачење енергије 59.5 keV које потиче од распада  $^{241}\text{Am}$ , који настаје од  $^{241}\text{Pu}$ , будући да интензитет зрачења који потиче само од овог радиозотопа може да буде већи од интензитета зрачења који потиче од свих изотопа плутонијума заједно. Ово је логичан корак, узимајући у обзир да ово може значајно да утиче на тачност PC FRAM анализе. У случају спектра CBNM Pu93 материјала, одсутна је комбинација атенуатора где се налази дебљина Cd од 20 mm, јер се у овом материјалу налази врло мало  $^{241}\text{Pu}$  што последично значи да немамо толико интензивну линију од  $^{241}\text{Am}$ .



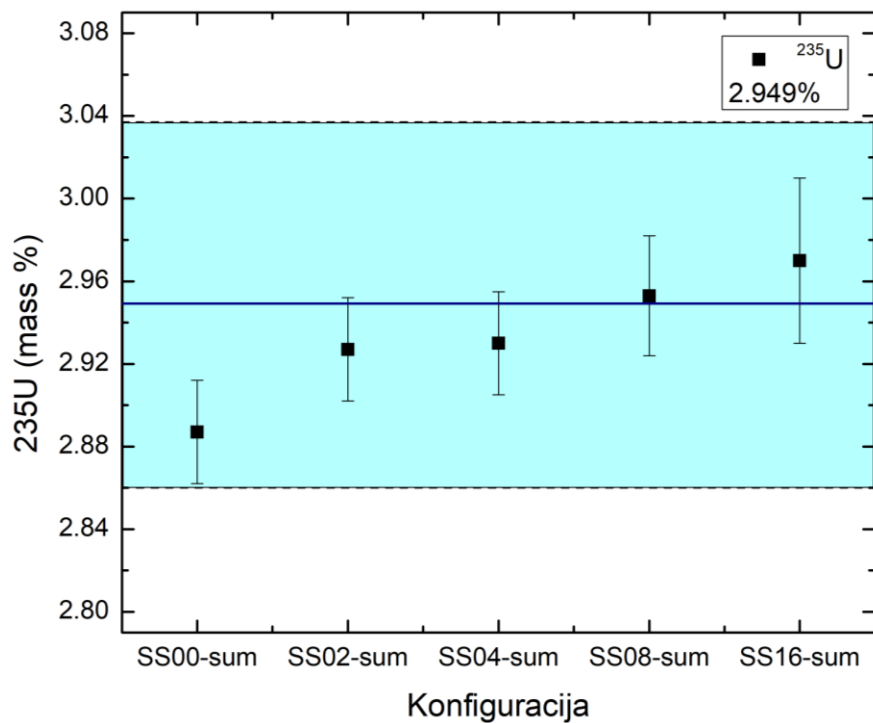
Слика 6.7. Масени удели  $^{235}\text{U}$  у материјалу CBNM 031 за различите дебљине Fe атенуатора, сниманом на фиксној удаљености од 5 cm од детектора.



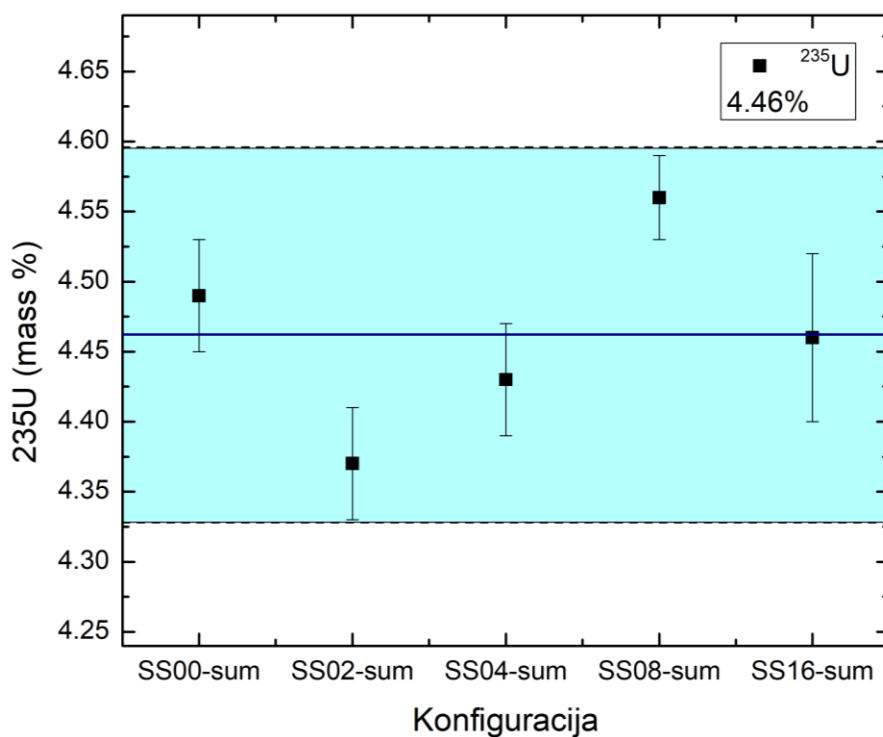
Слика 6.8. Масени удели  $^{235}\text{U}$  у материјалу CBNM 071 за различите дебљине Fe атенуатора, сниманом на фиксној удаљености од 5 cm од детектора.



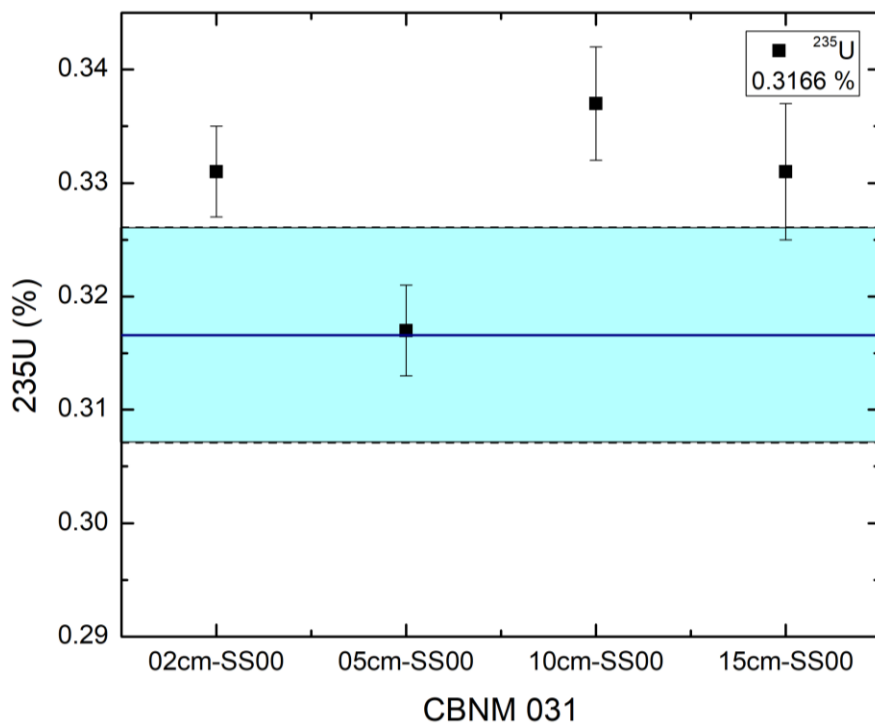
Слика 6.9. Масени удели  $^{235}\text{U}$  у материјалу CBNM 194 за различите дебљине Fe атенуатора, сниманом на фиксној удаљености од 5 cm од детектора.



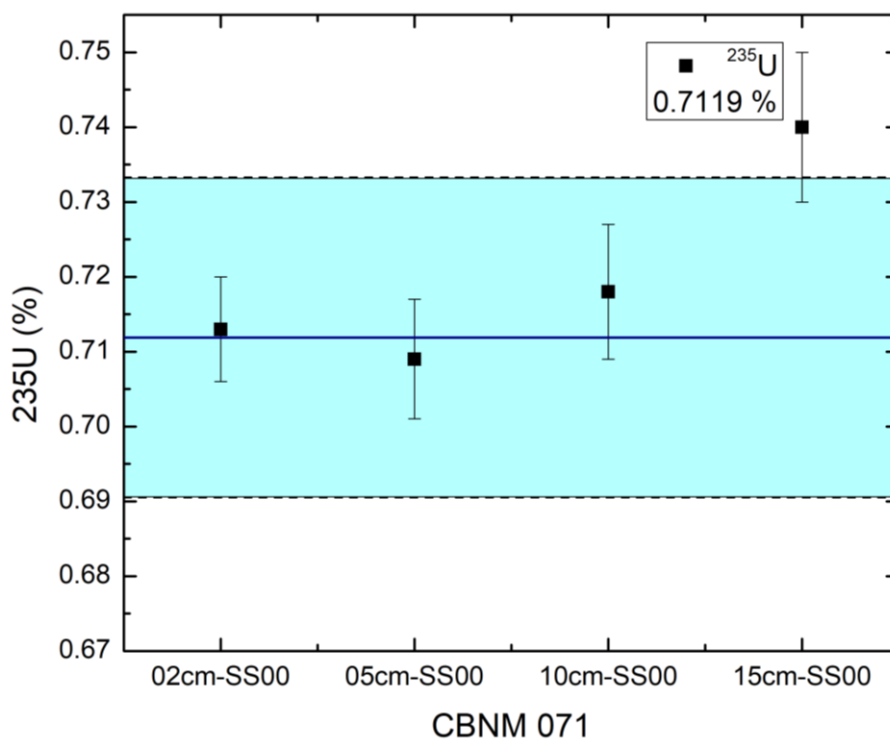
Слика 6.10. Масени удели  $^{235}\text{U}$  у материјалу CBNM 295 за различите дебљине Fe атенуатора, сниманом на фиксној удаљености од 5 cm од детектора.



Слика 6.11. Масени удели  $^{235}\text{U}$  у материјалу CBNM 446 за различите дебљине Fe атенуатора, сниманом на фиксној удаљености од 5 cm од детектора.

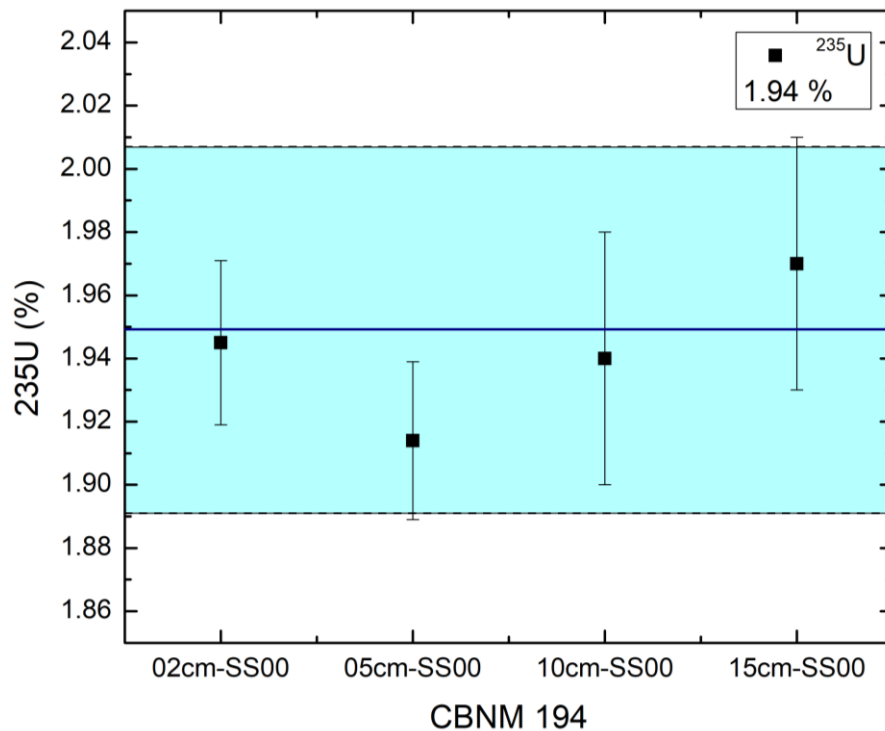


Слика 6.12. Масени удели  $^{235}\text{U}$  у материјалу CBNM 031 сниманом на различитим удаљеностима од детектора у одсуству атенуатора.

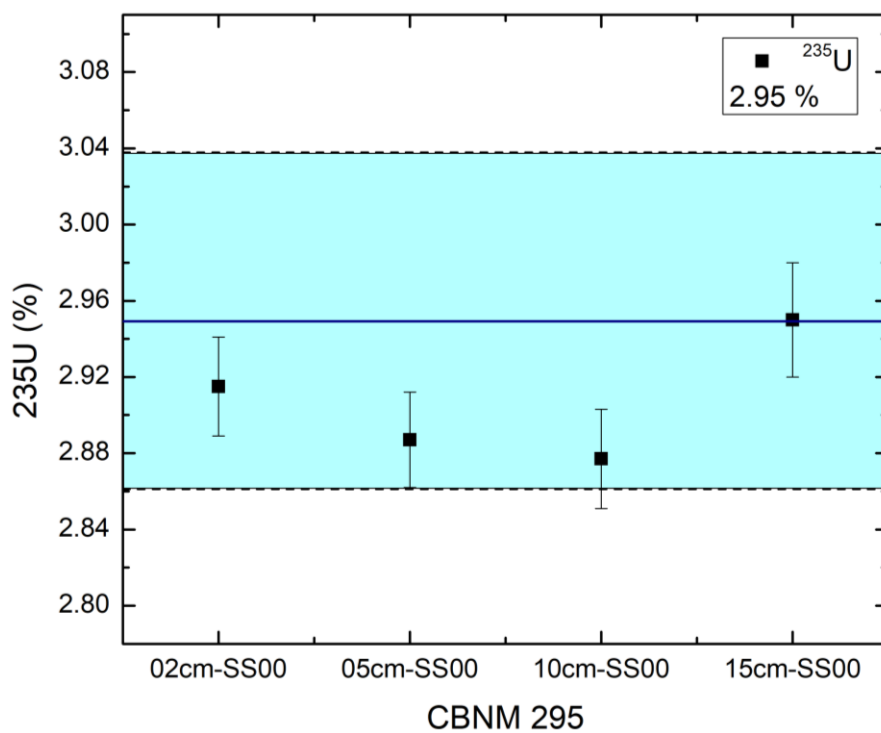


Слика 6.13. Масени удели  $^{235}\text{U}$  у материјалу CBNM 071 сниманом на различитим удаљеностима од детектора у одсуству атенуатора.

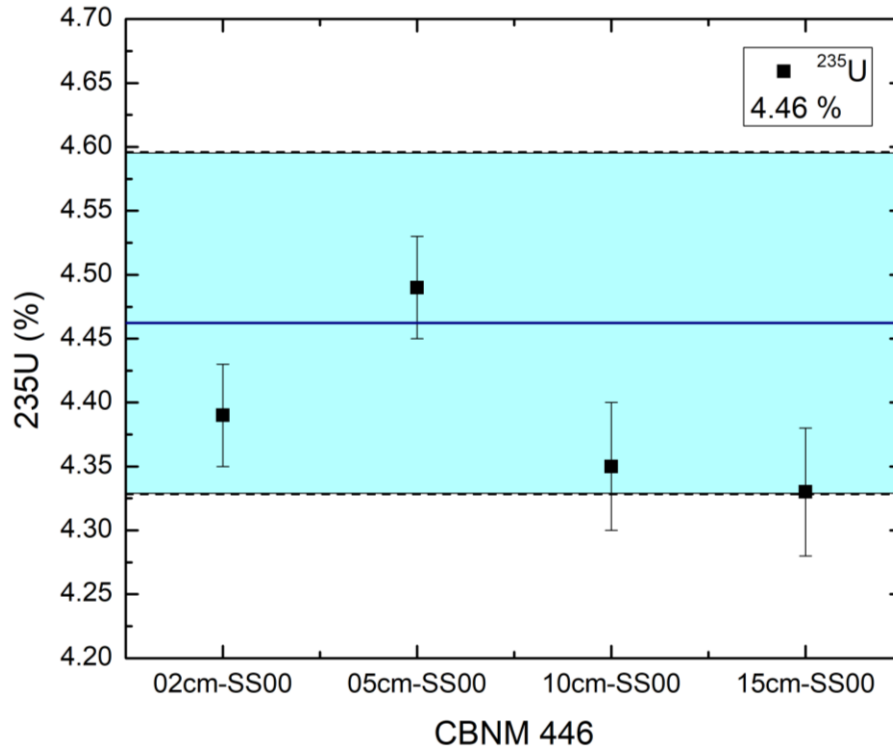




Слика 6.14. Масени удели  $^{235}\text{U}$  у материјалу CBNM 194 сниманом на различитим удаљеностима од детектора у одсуству атенуатора.



Слика 6.15. Масени удели  $^{235}\text{U}$  у материјалу CBNM 295 сниманом на различитим удаљеностима од детектора у одсуству атенуатора.



**Слика 6.16.** Масени удели  $^{235}\text{U}$  у материјалу CBNM 446 сниманом на различитим удаљеностима од детектора у одсуству атенуатора.

На сликама 6.7-6.11 приказани су резултати мерења која су вршена на фиксној удаљености од *ORTEC Detective* преносног детектора, док се на сликама 6.12-6.16 налазе резултати мерења уранијумских референтних материјала на различитим удаљеностима од поменутог детектора али у овом случају без атенуатора.

#### *Основни закључци анализе нуклеарних материјала*

Мерне несигурности дате у Табели 6.2 су изразито мале, будући да су и ове вредности добијене масеном спектрометријом. Као коридор грешке референтне вредности масеног удела  $^{235}\text{U}$ , услед тога је, на графицима приказаним на сликама 6.7-6.16 узето да буде такође 3% вредности као и у претходном случају, што је у складу са редом величине мерне несигурности у стандардним гамаспектрометријским мерењима. Са слика 6.7-6.16 може се закључити да су сви резултати које је дао софтвер PC FRAM у доброј сагласности са референтним вредностима, узимајући у обзир поменути коридор грешке мерене вредности од 3%, са изузетком резултата за референтни материјал CBNM 031 у обе инстанце, односно и у мерењима на фиксној удаљености од детектора и у оним на различитој удаљености без атенуатора. Ово представља прихватљив резултат, будући да је материјал CBNM 031 по дефиницији осиромашен уранијум, што за последицу има мањи интензитет гама линија које се користе за анализу садржаја  $^{235}\text{U}$  односно које потичу од распада истог. То доводи до слабије статистике бројања под овим пиковима у спектру, и последично умањује тачност резултата са већом мерном несигурношћу.

---

## ЗАКЉУЧАК

---

Гама спектрометрија је поуздана метода радо коришћена у нуклеарној форензици, самим тим је и један од фаворита основног аналитичког сета за иницијалне кораке у истрази нуклеарних и других радиоактивних материјала изван регулаторне контроле. Поред свих предности које недеструктивна техника попут гама спектрометрије доноси, ипак има и недостатака који се некада у рутинским мерењима могу занемарити, али када је потребна што боља прецизност добијених резултата онда се посебна пажња мора посветити сваком сегменту од самог мерења па до анализе добијених спектра. Како би се предупредиле ове потешкоће, доступан је читав низ софтверских пакета који уз адекватну примену могу у многоструко побољшати прецизност добијених резултата. У оквиру ове докторске дисертације приказано је колико и на који начин нам различити математички алати (софтвери за трансфер ефикасности, симулације и комерцијални софтвер за анализу нуклеарних материјала) могу помоћи у превазилажењу проблема у вези са недовољно добро дефинисаним саставом узорка који се анализира као и разноликости облика – геометрија узорака који се на терену могу пронаћи, посебно у ситуацијама када је неопходно да такав узорак не буде оштећен на било који начин. Наиме, у нуклеарној форензици, гама спектрометрија се третира као недеструктивна техника и то јој је основна предност у односу на читав сет доступних других прецизнијих аналитичких техника које су по својој природи деструктивне. Обзиром да се узорци који су предмет нуклеарнофорензичке анализе третирају и као доказни материјал у криминалној истрази руковање оваквим узорцима није ни мало тривијално и захтева посебну пажњу како би се очувао ланац одговорности (*Chain of custody*).

Основни закључци који произилазе из спроведених истраживања у оквиру ове докторске дисертације подељени су у неколико целина. Први део експерименталних истраживања, поглавље 5, посвећен је анализи радиоактивних узорака различите, не-цилиндричне геометрије и различитог састава. За потребе анализе и превазилажења проблема рутинских гамаспектрометријских мерења нецилиндричних узорака коришћена су два софтвера за математичке калкулације (трансфер ефикасности) Angle и EFFTRAN у поређењу са симулационом методом (GEANT4). Циљ је био да се што је могуће прецизније одреди концентрација активности, за различите геометрије узорака, уз тестирање применљивости поменутих софтвера. Добијена су фина слагања уз пажљиве апроксимације геометрије на цилиндричну код софтвера који раде на принципу трансфера ефикасности. Добијени резултати указују да се поменути математички алати могу искористити у било којој гама спектрометријској лабораторији па се тако могу анализирати и узорци који садрже у себи уранијум без употребе неког од софтвера специјално дизајнираних за ту намену (попут MGAU). Ово је значајно са аспекта економичности јер случајеви анализе узорака за потребе нуклеарно форензичке истраге нису тако чести и самим тим није економично имати посебно, специјално посвећене алате за анализу. Слични тестови су урађени и у другом делу са радиоактивним материјалима који су имали састав значајно другачији од стандардног референтног материјала који је коришћен за калибрацију детектора. У овом случају коришћен је и итеративни поступак за предвиђање састава самих узорака, а спектри су анализирани уз помоћ EFFTRAN софтвера и GEANT4 симулационог алата. У другом делу експерименталних истраживања, поглавље 6, посебна пажња је посвећена нуклеарним материјалима. Због немогућности мерења истих у нашој

гамаспектрометријској лабораторији у Новом Саду, у овом случају су кроз научно-истраживачку сарадњу са *JRC Karlsruhe* добијени снимљени спектри референтних узорка нуклеарних материјала. Наш задатак је био да "сирове" гама спектре обрадимо у софтверу намењеном за анализу нуклеарних материјала PC FRAM. У овом делу посебна пажња је посвећена специфичностима самих мерења материјала који у себи садрже значајне концентрације уранијума односно плутонијума. Закључак овог дела истраживања је да употреба PC FRAM софтвера за анализу нуклеарног материјала није тривијална и да сам начин мерења и заштита око узорака која ће се користити у многима могу да утичу на добијене резултате, а са друге стране значајни су и са аспекта заштите како детектора тако и особља које овим узорцима рукује.

У даљим корацима истраживања на ову тему могу се тестирати и узорци који припадају групи нуклеарних материјала у различитим облицима у којима се могу наћи и поређење добијених резултата са резултатима неког од комерцијално доступних софтвера намењених искључиво за анализу гама спектра нуклеарног материјала (MGAU, PC FRAM...).

Кроз целокупну докторску дисертацију дат је преглед нуклеарне форензике као научне дисциплине, као и њеног места у оквиру националне и међународне нуклеарне безбедности. Поред тога показано је на који начин се рутинска гамаспектрометријска мерења могу искористити за мерење специфичних материјала за потребе нуклеарне форензике уз очување састава и облика самог узорка који се мери. Бројна истраживања у овој области, као и практичне имплементације гама спектрометрије као недеструктивне технике нуклеарне форензике, показују да је ово изузетно значајан и користан алат и да се пажљивом анализом спектра може утицати на прецизност и тачност добијених резултата. Свакако неке друге, хемијске технике које се користе могу дати много прецизније вредности, али су оне по својој природи деструктивне (најчешће је потребно растворити малу количину узорка) што често може да угрози остале кораке криминалне истраге. Зато се недеструктивним методама увек даје предност.

---

## ПРИЛОГ

### ИНТЕРЕСАНТНЕ ПРИМЕНЕ НУКЛЕАРНОФОРЕНЗИЧКИХ ЗАКЉУЧИВАЊА

---

*Spectral flavor of the month* представља међународну виртуелну вежбу анализе спектара. Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет учествује у овој вежби претходних пар година. У вежби тренутно учествује преко 60 институција из 25 земаља, али се број институција константно повећава. Прва вежба је послата учесницима јула 2020. године и од тада се на сваких пар месеци шаље нова. Циљ ове вежбе је усавршавање вештина анализе спектара, независно од мерне опреме и софтвера како би се одржала и унапредила експертиза из дате области. Обзиром да су сценарији у директној вези са потенцијалним догађајима нуклеарне форензике, у овом делу ћемо обрадити пар интересантних гама спектара као пример специфичности анализе. Одабрали смо спектре са медицинским радиоизотопима и спектре са нуклеарним материјалима. Медицински радиоизотопи као и индустријски су посебно битни у земљама попут Србије које се декларишу као не-нуклеарне, док су нуклеарни материјали приказани због самих специфичности анализе спектара као демонстративни пример. Виртуелне вежбе садрже хипотетички сценарио, спектре (који су у неким случајевима реални а некад снимљени за потребе вежбе), питања на која треба дати одговор, и одговоре (слика П.1). Бенефити ове вежбе су:

- Надограђује се на већ постојећа знања и вештине.
- Поспешује међуљудску и међуорганизацијску сарадњу.
- Не захтева поседовање додатних софтверских пакета.
- Представља својеврстан тренинг у области гамаспектрометрије за ново особље, али са нагласком да циљ вежбе није обучавање већ првенствено 'увежбавање' практичних вештина.
- Вежба није заснована на специфичном инструменту или софтверу који се користи за анализу, већ на знање из области физике које је потребно за анализу спектара.



Слика П.1. Шематски приказ тока једне вежбе.

У не-нуклеарним земљама, као што је Србија, материјали који се могу наћи ван регулаторне контроле (MORC материјали) су превасходно медицински и индустријски радиоизотопи (Табела 1.2) као и NORM. У даљем тексту биће приказани резултати и анализа сценарија који се тиче радиоактивних извора (медицински извори) као и нуклеарних материјала, за које су обрађени сценарији који садрже засебно уранијум а затим плутонијум.

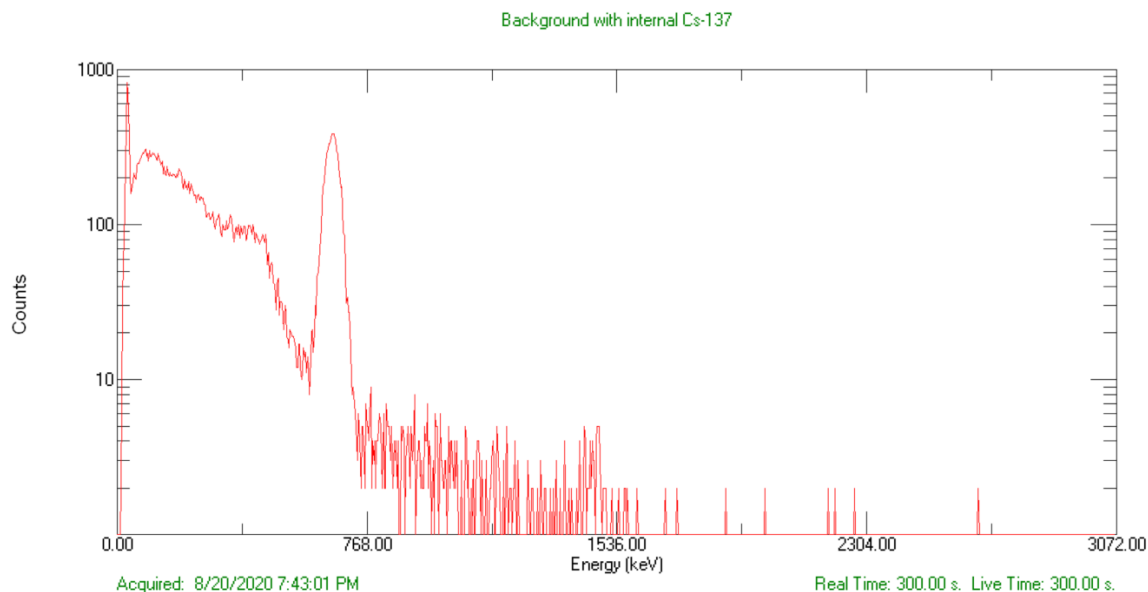
### Медицински изотопи

Радиоизотопи се у медицини користе превасходно на нуклеарној медицини и на радиоизотопској терапији.

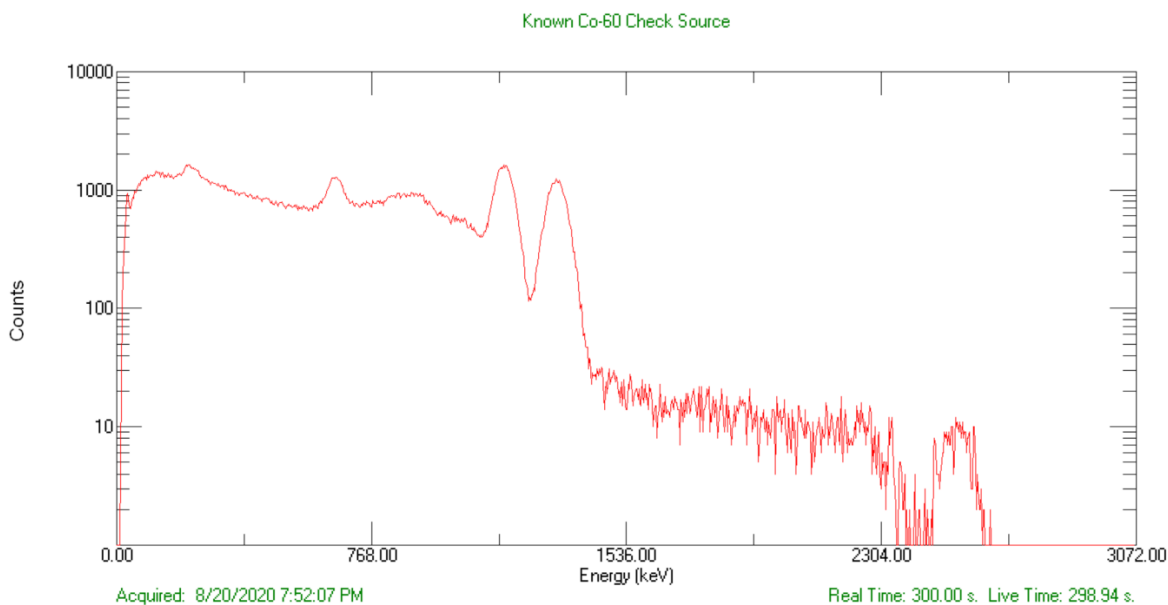
Овај сценарио се састоји од четири засебна хипотетичка случаја. Укључује неколико радионуклида који се најчешће користе у медицинској дијагностици и начине на које се они најчешће могу пронаћи код/у особи или током комерцијалне испоруке. За добијање спектра у сва четири случаја коришћен је сцинтилациони NaI детектор "IdentiFINDER" који у себи садржи интерни  $^{137}\text{Cs}$  калибрациони извор.

#### Први случај

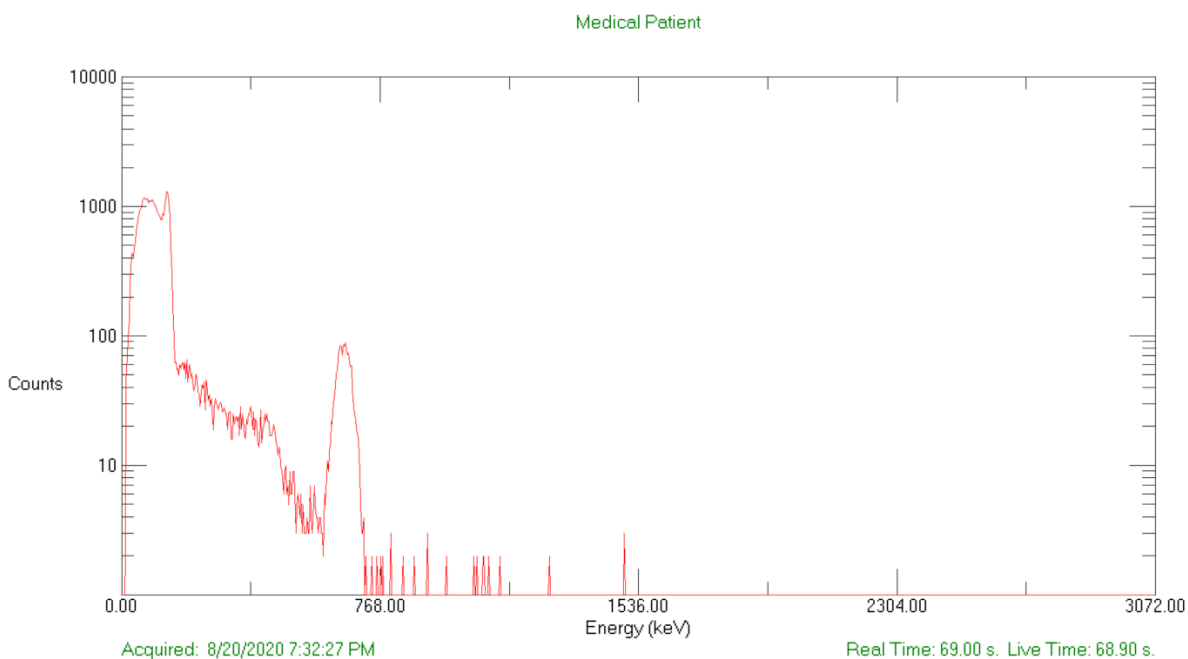
Непознати спектар снимљен је на удаљености од 60 cm од пацијента који је два дана раније био на дијагностичкој процедури која укључује примену  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ . Фонски спектар, снимљен на истом локалитету без пацијента је приказан на слици П.2, на ком се јасно види присуство пика на енергији 662 keV које потиче од интерног  $^{137}\text{Cs}$  калибрационог стандарда. Спектар од  $^{60}\text{Co}$  који служи за додатну проверу, снимљен истим детектором на удаљености од 1 cm од извора, приказан је на слици П.3. У овом моменту се поставља питање да ли је могуће потврдити присуство  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  у спектру непознатог пацијента који је дат на слици П.4.



Слика П.2. Фонски спектар за први случај.



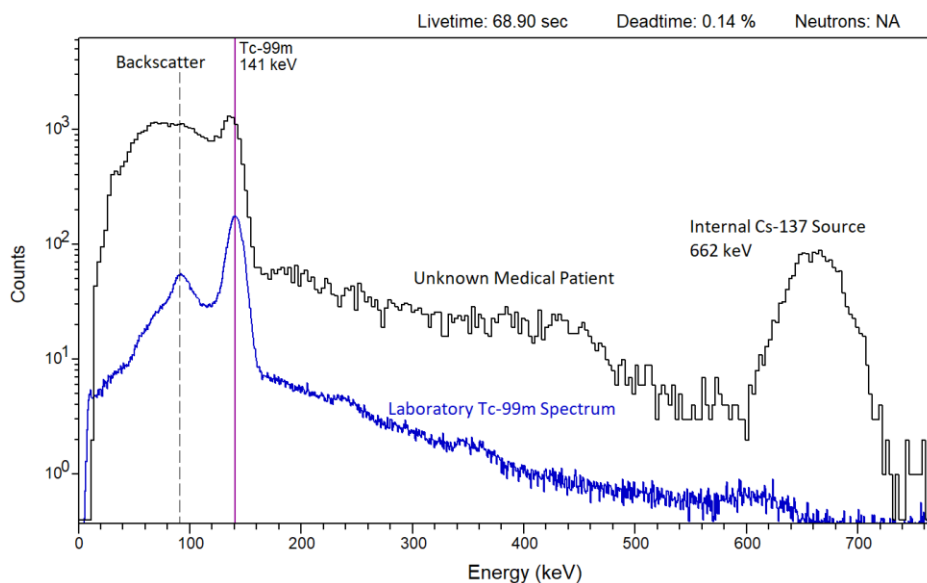
Слика П.3. Спектар  $^{60}\text{Co}$  за додатну проверу калибрације.



Слика П.4. Спектар за анализу, од непознатог пацијента.

Најкоректнији одговор би био да може, међутим не са потпуном сигурношћу, будући да је  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  практично моноенергетски гама емитер на енергији 140.5 keV и нема других фотопикова који би се могли користити за потврду. Како у спектру не видимо друге пикове, присуство осталих медицинских радионуклида може бити искључено.

Ради повећања тачности анализе, спектар пореклом од непознатог пацијента је преклопљен са спектром чистог  $^{99m}\text{Tc}$  снимљеног у лабораторијским условима са истим детектором (слика П.5). Може се уочити благо енергетско померање пика од интереса који се налази на 137 keV. Енергетска померања ове амплитуде су уобичајена појава за NaI преносне детекторе. Мерење непознатог спектра је одвијено у *in vivo* условима ( $^{99m}\text{Tc}$  се налази дистрибуиран унутар људског тела), те се значајна количина гама зрачења расејава и у спектру појављује на нижим енергијама. На лабораторијском спектру, који је приказан плавом линијом, јасно се види *backscatter*<sup>19</sup> пик на 91 keV. Унутар људског тела, механизам расејања зрачења је знатно сложенији, те се овај пик у непознатом спектру може видети као "раширен" односно не толико јасно видљив.

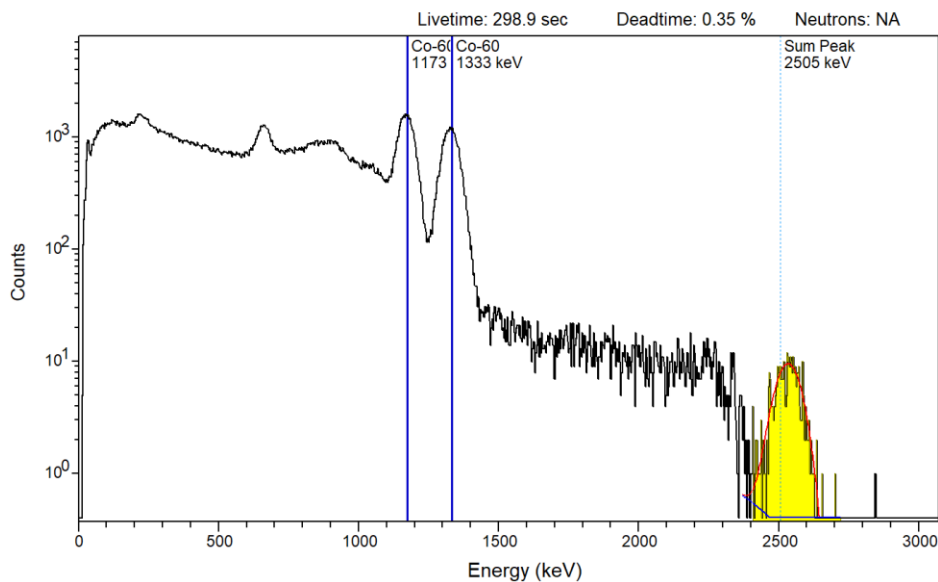


Слика П.5. Поређење *in vivo* спектра (непознатог) и спектра снимљеног у лабораторијским условима.

На спектру  $^{60}\text{Co}$  за додатну проверу калибрације може се уочити и додатни "артефакт" пик на 2506 keV (слика П.6). Он се потиче од каскадног сумирања два фотопика од  $^{60}\text{Co}$  на енергијама 1173.2 keV и 1332.5 keV који се емитују у брзој секвенци (каскади). Како се у току мерења извор налази на малој удаљености од детектора, постоји одређена вероватноћа да ће оба поменута гама зрака бити детектована истовремено, те ће се у спектру појавити сумирани фотопик чија је енергија у ствари збир претходне две (2505.7 keV). Ово је честа појава која се уочава у спектрима  $^{60}\text{Co}$  као и  $^{133}\text{Ba}$ , када се каскадно сумирани фотопик примећује на енергији 437.02 keV.

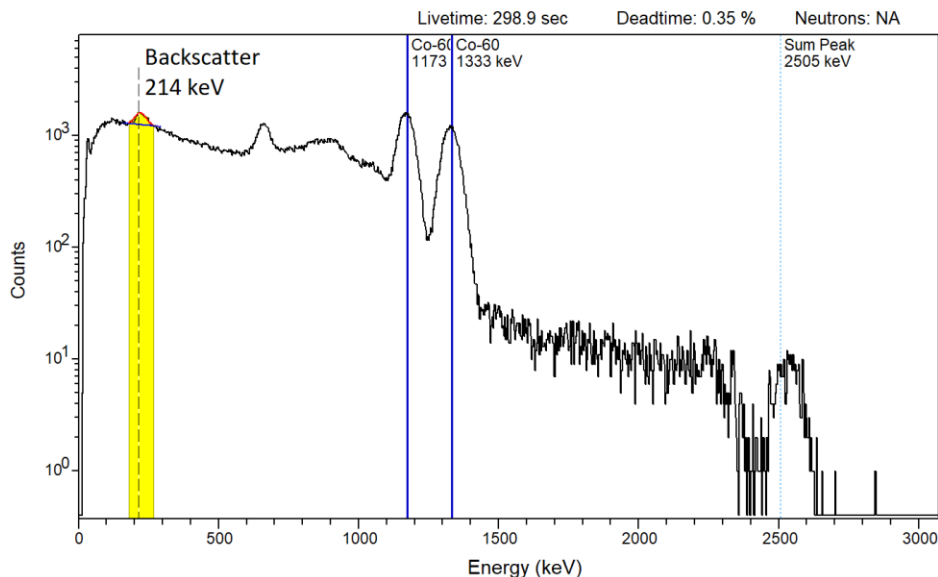
<sup>19</sup> Backscatter пик – пик који настаје услед интеракције упадног зрачења са материјалом који окружује кристал детектора, па се потом расејава ка кристалу и бива детектовано на нижим енергијама. Максимална енергија пика ове природе износи 250 keV, независно од енергије упадног фотона [Knoll,2010].





Слика П.6. Спектар  $^{60}\text{Co}$  са обележеним каскадно сумираним фотопиком.

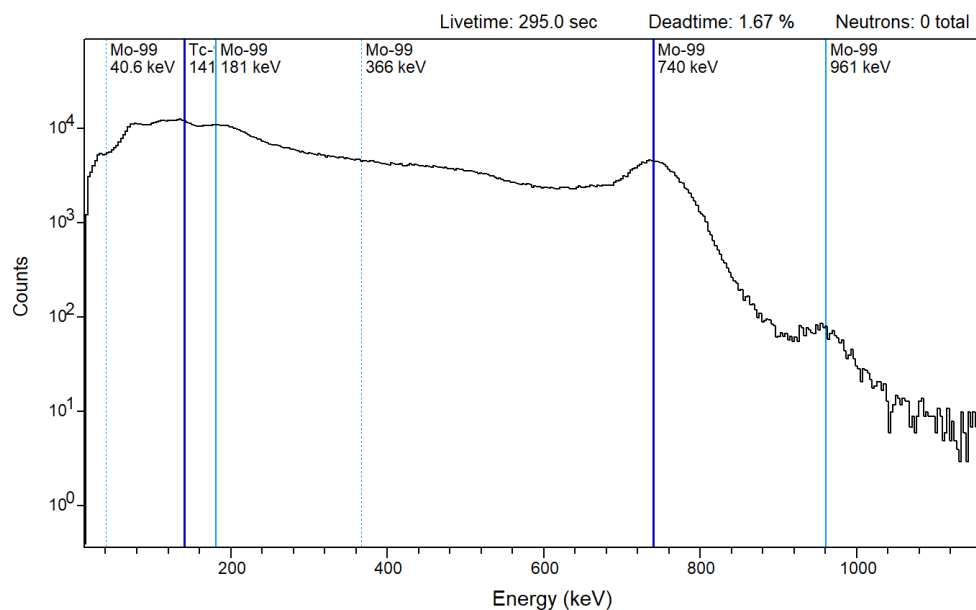
На спектру  $^{60}\text{Co}$  за додатну проверу калибрације се такође види и артефакт фотопик на енергији 225 keV. Овај фотопик представља комбиновани пик који се састоји од *backscatter* пика на 210 keV пореклом од гама зрака на 1173.2 keV и *backscatter* пика на 214 keV који настаје од гама зрака енергије 1332.5 keV. Центроида пика је померена ка вишим енергијама будући да је просечна вредност угла расејања незнатно мања од  $180^\circ$  (слика П.7).



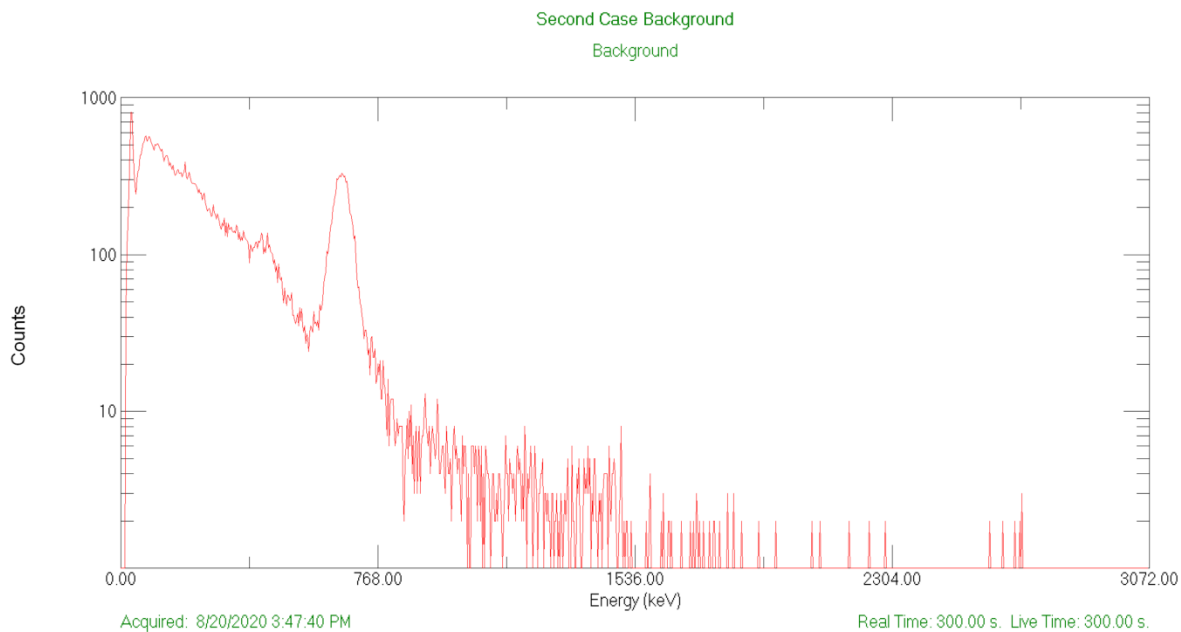
Слика П.7. Спектар  $^{60}\text{Co}$  са обележеним комбинованим *backscatter* фотопиком.

*Други случај*

Непознати спектар је сакупљен снимањем скупа пошиљки на којима стоји ознака "<sup>99m</sup>Tc генератори" (слика П.8). Ови пакети били су на камиону за доставу у зони за пријем терета на великом аеродрому. Због заштите, <sup>99m</sup>Tc је једва видљив. Такође је приложен и фонски спектар (слика П.9).

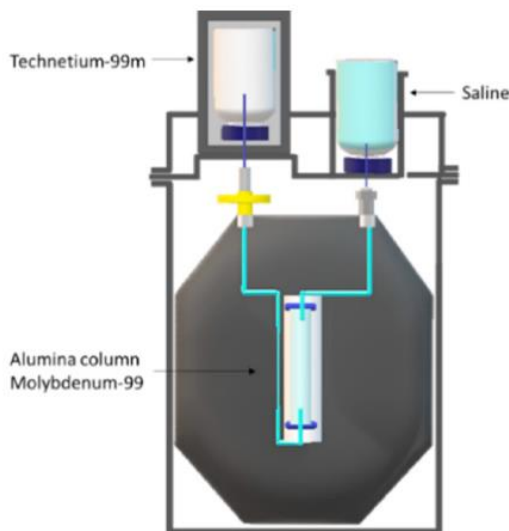


**Слика П.8.** Непознати спектар пошиљки са ознаком "<sup>99m</sup>Tc генератори".



**Слика П.9.** Фонски спектар за *други случај*.

Поставља се питање који радионуклид ствара пикове у непознатом спектру на енергијама 740 keV и 960 keV? Анализом спектра утврдило се да је то  $^{99}\text{Mo}$ . Овај радионуклид има период полураспада од 66 h и представља радиоизотоп предак у  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  генератору.  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  има период полураспада од само 6 сати што није погодно за транспорт. Болнице које користе  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  за дијагностичке процедуре обично добијају нови генератор једном недељно, тако да је транспорт уобичајен и на утврђеним рутама, а међународне пошिल्ке су уобичајене. Већина комерцијалних генератора користи колонску хроматографију, у којој је  $^{99}\text{Mo}$  у облику молибдата имобилисан на глиници. Продукт распада, изомер  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , је слабије везан и екстрахује се физиолошким раствором (слика П.10).



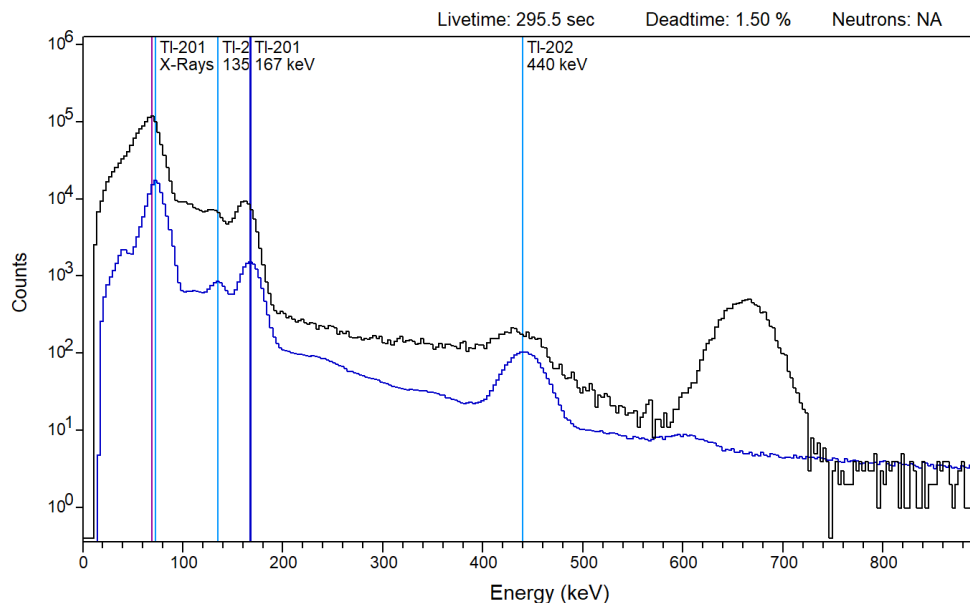
Слика П.10. Шематски приказ  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  генератора.

### Трећи случај

Непознати спектар добијен је снимањем пацијента који је недавно подлегао дијагностичкој процедури где се користио  $^{201}\text{Tl}$ . Спектар је сниман детектором на 15 cm удаљености од пацијента.

Поставља се питање да ли се може потврдити присуство  $^{201}\text{Tl}$  у непознатом спектру од пацијента? Одговор је, наравно, да може. Постоје два гама пика пореклом од  $^{201}\text{Tl}$ , укључујући јак пик на 167.43 keV и слабији на 135.34 keV. Постоје и нераздвојени рендгенски зраци Hg видљиви близу 70 keV. Спектар је приказан испод (слика П.11), а лабораторијско мерење  $^{201}\text{Tl}$  је обележено плавом бојом ради поређења. Примећује се благо померање појачања.

Треба напоменути да се  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  понекад аплицира заједно са  $^{201}\text{Tl}$  у дијагностичкој процедури, и у том случају ће бити видљив јачи пик близу 140 keV. Такође треба напоменути да је пик на 70 keV прилично близу пика  $^{241}\text{Am}$  на 59.5 keV, а благи помак појачања може резултовати погрешном идентификацијом  $^{241}\text{Am}$  или чак плутонијума.



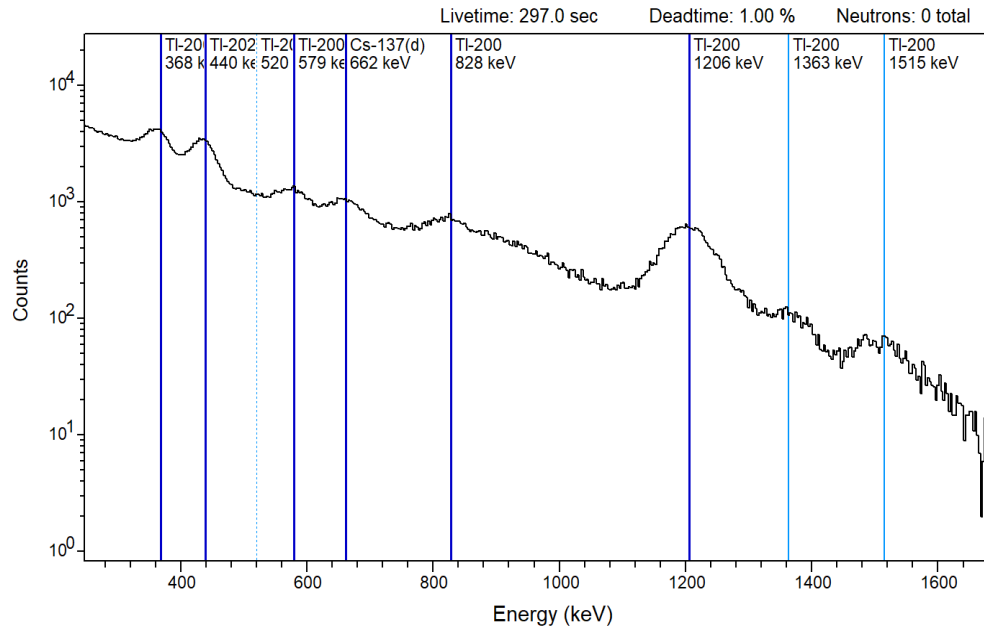
**Слика П.11.** Непознати спектар пацијента после дијагностичке процедуре  $^{201}\text{Tl}$  (црна боја) и лабораторијски спектар  $^{201}\text{Tl}$  (плава боја).

#### Четврти случај

Непознати спектар је сакупљен од скупа пакета обележених као " $^{201}\text{Tl}$ " (слика П.12). Ови пакети су били на истом камиону за доставу као и и они у другом случају. Због заштите, сам  $^{201}\text{Tl}$  није видљив, а видљиве су само нечистоће. Изненађујуће, инструмент идентификује  $^{131}\text{I}$ . Референтни спектар  $^{131}\text{I}$  је такође дат за поређење (слика П.13).

Поставља се питање који радионуклид генерише гама зраке на енергијама 368 keV и 1206 keV видљиве у непознатом спектру? Анализом истог је утврђено да је то  $^{200}\text{Tl}$ . Он представља неизбежну нечистоћу у медицинским изворима  $^{201}\text{Tl}$ , са периодом полураспада од 1.09 дана. Такође, у спектру се уочава пик на 440 keV. Он потиче од  $^{202}\text{Tl}$ . Слично, и он представља неизбежну нечистоћу у медицинским изворима  $^{201}\text{Tl}$ . Има период полураспада од 12.2 дана. Често се може приметити у *in vivo* спектрима пацијената којима је аплициран  $^{201}\text{Tl}$ , чак и по нестанку  $^{201}\text{Tl}$  из организма, јер исти има период полураспада од 3.06 дана. У одређеним ситуацијама може бити погрешно идентификован као плутонијум.

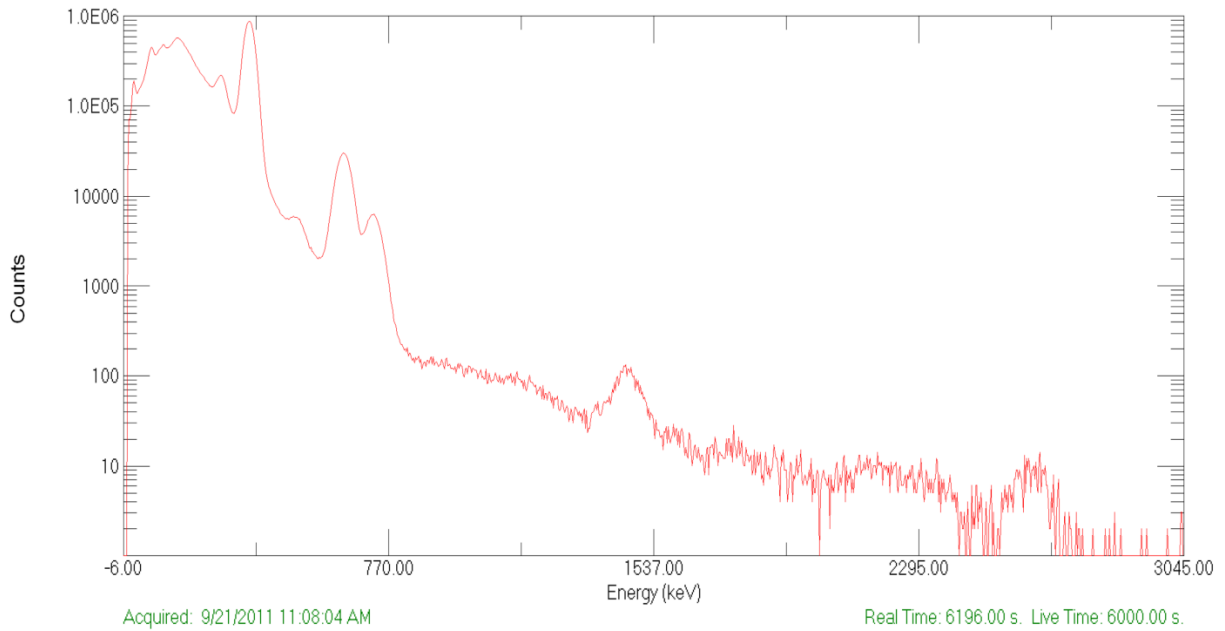
Најчешћи процес којим настаје  $^{201}\text{Tl}$  је протонско бомбардовање, путем реакције  $^{203}\text{Tl}(p,3n)^{201}\text{Pb}$  праћене захватом електрона или распадом емисијом позитрона да би се добио  $^{201}\text{Tl}$ . Неки преносиви генератори су дизајнирани тако да садрже  $^{201}\text{Pb}$ , али у овом случају период полураспада  $^{201}\text{Pb}$  од 9.33 h представља ограничење и ови генератори су ретки. У већини случајева, екстраховани производ талијум-хлорида се отпрема даље. Нечистоћа  $^{200}\text{Tl}$  долази од  $^{203}\text{Tl}(p,4n)^{200}\text{Pb}$  реакције праћене емисијом позитрона. Нечистоћа  $^{202}\text{Tl}$  долази од  $^{203}\text{Tl}(p,2n)^{202}\text{Pb}$  реакције праћене захватом електрона.



Слика П.12. Непознати спектар пакета са ознаком  $^{201}\text{Tl}$  .

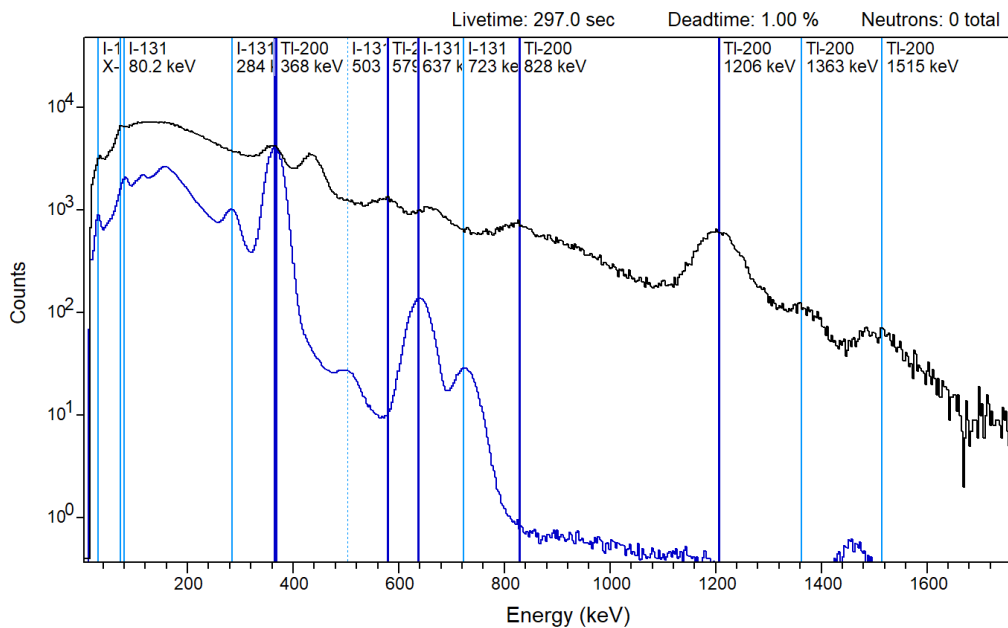
Fourth Case I131 Example

Description: PeakEasy Library File: I-131, IdentIFINDER (Nat).



Слика П.13. Референтни спектар  $^{131}\text{I}$ .

Такође, постављено је питање да ли се може доказати или искључити присуство  $^{131}\text{I}$ , имајући у виду дат непознати спектар? Присуство  $^{131}\text{I}$  је мало вероватно, али се не може дефинитивно искључити на основу датих података.  $^{131}\text{I}$  производи пик на 364.49 keV који је по енергији близу пику  $^{200}\text{Tl}$  на 367.94 keV. Други пикови из хипотетичког  $^{131}\text{I}$  били би слабији и можда се не би могли приметити ако је присутна само мала количина. Слика П.14 испод приказује непознати спектар црном бојом и лабораторијски  $^{131}\text{I}$  спектар плавом бојом. Треба нагласити да се нечистоћа у виду  $^{131}\text{I}$  не може наћи у медицинским изворима  $^{201}\text{Tl}$ , јер имају потпуно различито порекло.  $^{201}\text{Tl}$  се добија унутар циклотрона протонским бомбардовањем, а  $^{131}\text{I}$  настаје унутар реактора као физиони продукт.



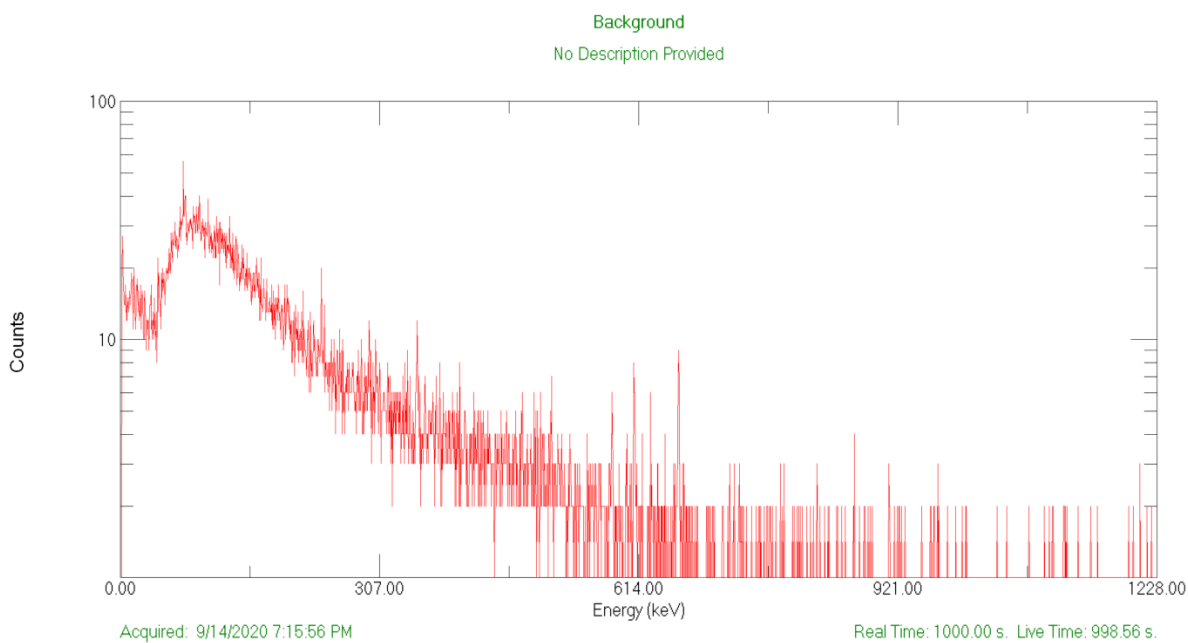
Слика П.14. Непознати спектар (црна боја) и лабораторијски  $^{131}\text{I}$  спектар (плава боја).

### Нуклеарни материјали – уранијум

Ова вежба укључује спектре четири уранијумска материјала различитих степена обогаћења. Сваки узорак је стар преко 10 година. Детектор са којим је вршена аквизиција спектра је планарни HPGe детектор добре енергетске резолуције произвођача *CANBERRA*, где је хлађење реализовано течним азотом. У експерименталној поставци, кућиште детектора је бочно окружено слојевитом заштитом од калаја и олова. Детектор поседује танак берилијумски прозор. Експериментална поставка мерења приказана је на слици П.15. Фонски спектар за поменута мерења приказан је на слици П.16.

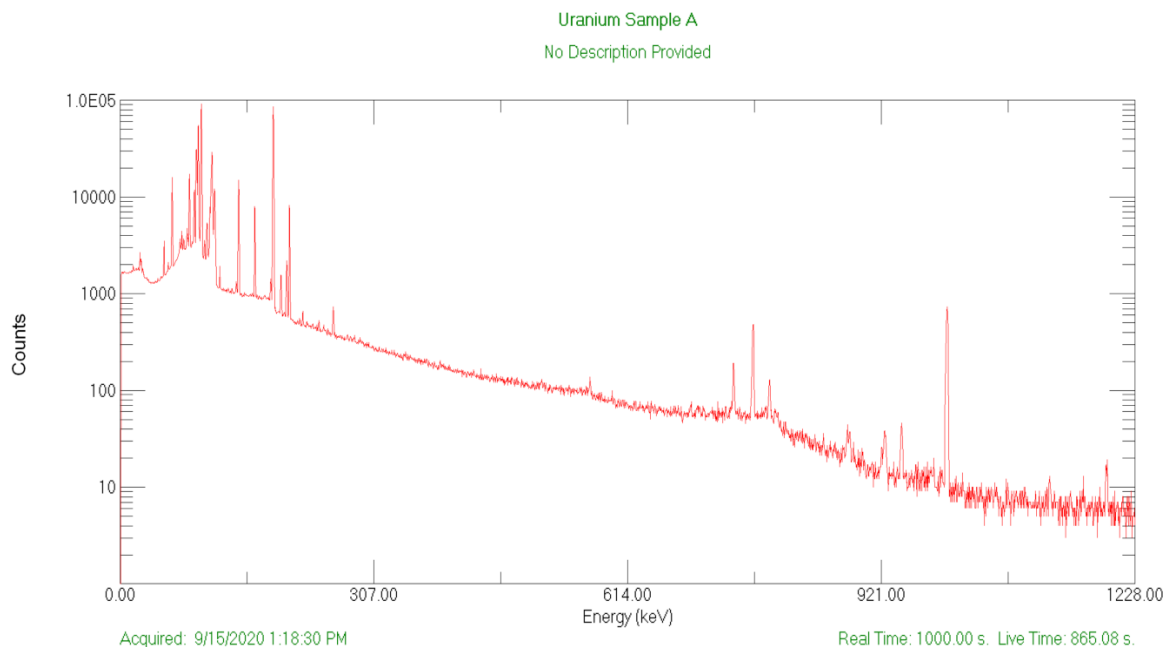


Слика П.15. Поставка мерења уранијумских материјала.



Слика П.16. Фонски спектар коришћен у анализи сва четири уранијумска материјала.

Први захтев је био да се размотри спектар уранијумског узорка А (слика П.17), и одреди најинтензивнији пик који потиче од низа  $^{238}\text{U}$ , видљив у високоенергетској области, у енергетском опсегу 700-1100 keV, као и који је пик из низа  $^{238}\text{U}$  видљив у опсегу 250-260 keV.



Слика П.17. Спектар уранијумског узорка А

У опсегу 700-1100 keV најинтензивнији пик је на енергији 1001.03 keV који потиче од распада  $^{234m}\text{Pa}$ , са квантним приносом од 0.0084, док је у опсегу 250-260 keV најинтензивнији пик на 258.23 keV, такође пореклом од  $^{234m}\text{Pa}$  који има квантни принос 0.00072. Иако је ово пик слабог интензитета, веома је користан при мерењима за одређивање изотопског састава, јер помаже у формирању криве ефикасности у овој енергетској области.

Друго питање је било да ли се примећује фотопик близу енергије од 63 keV. Да ли је то пик од  $^{241}\text{Am}$  са помереном енергетском калибрацијом, или је то такође пик пореклом из низа  $^{238}\text{U}$ ? То је пик на енергији 63.29 keV који потиче од распада  $^{234}\text{Th}$ , са квантним приносом од 0.037. У спектру уранијумског узорка А се не примећује присуство  $^{241}\text{Am}$ .

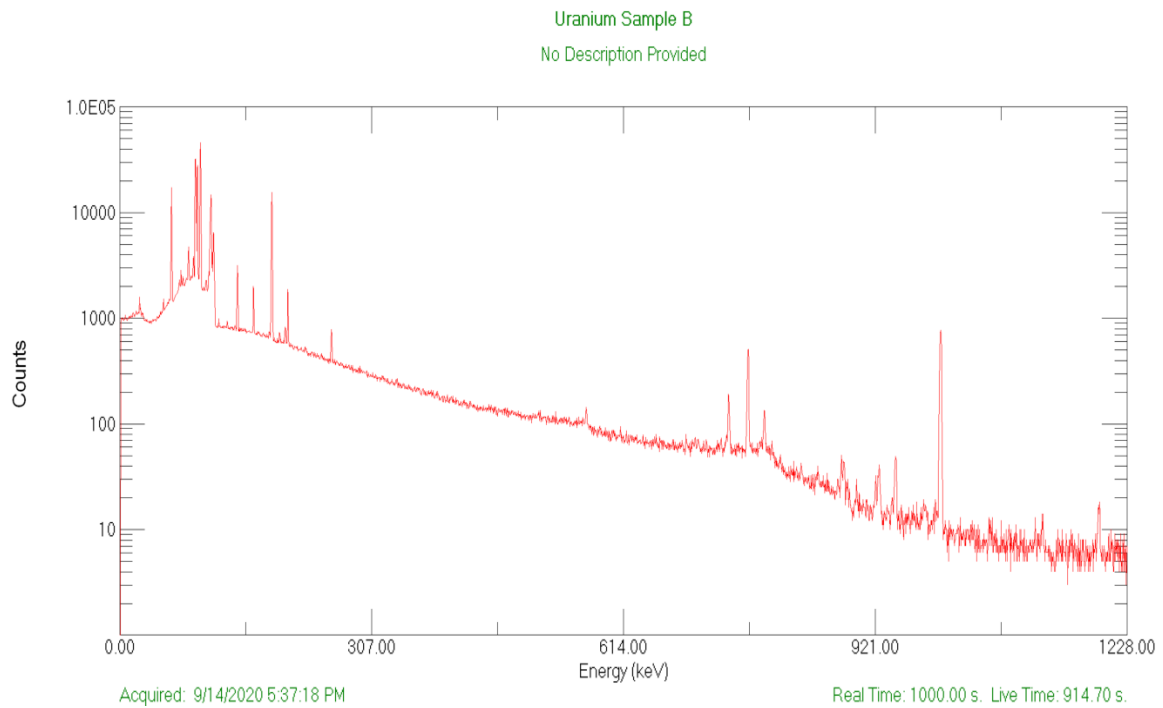
Треће питање се односило на спектар уранијумског узорка А и било је потребно одредити најинтензивнији пик пореклом од низа  $^{235}\text{U}$  у енергетском опсегу 140-220 keV. Ово је пик на 185.72 keV, са квантним приносом од 0.57. Он уједно представља и највидљивији индикатор присуства  $^{235}\text{U}$ .

У питањима 4-5 ради се упоредна анализа спектра уранијумских узорка А, В, С и D (Слике П.17-П.20). Анализе су рађене помоћу PC FRAM и MGAU софтвера.

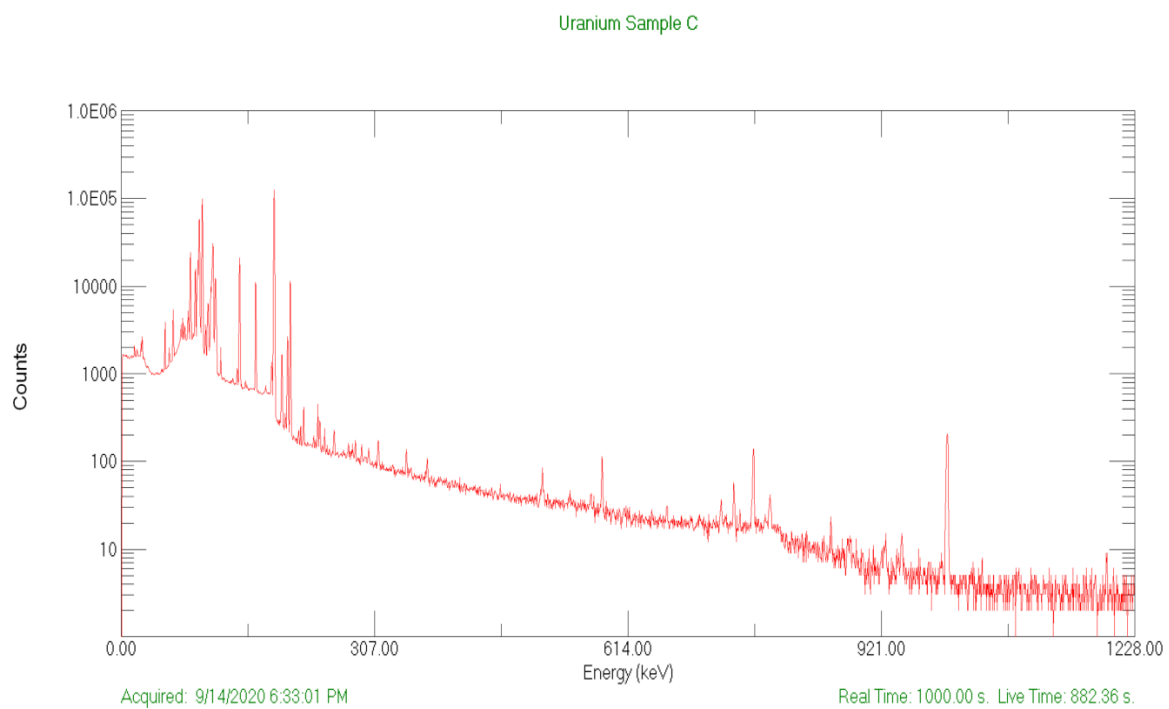
Четврто питање је било поређати четири уранијумска узорка ("уранијумски узорак А", "уранијумски узорак В", "уранијумски узорак С" и "уранијумски узорак D") по растућој вредности односа  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ .

1. Најнижи однос (најмањи масени удео  $^{235}\text{U}$ ) - уранијумски узорак D
2. уранијумски узорак В
3. уранијумски узорак А
4. Највиши однос (највећи масени удео  $^{235}\text{U}$ ) - уранијумски узорак С

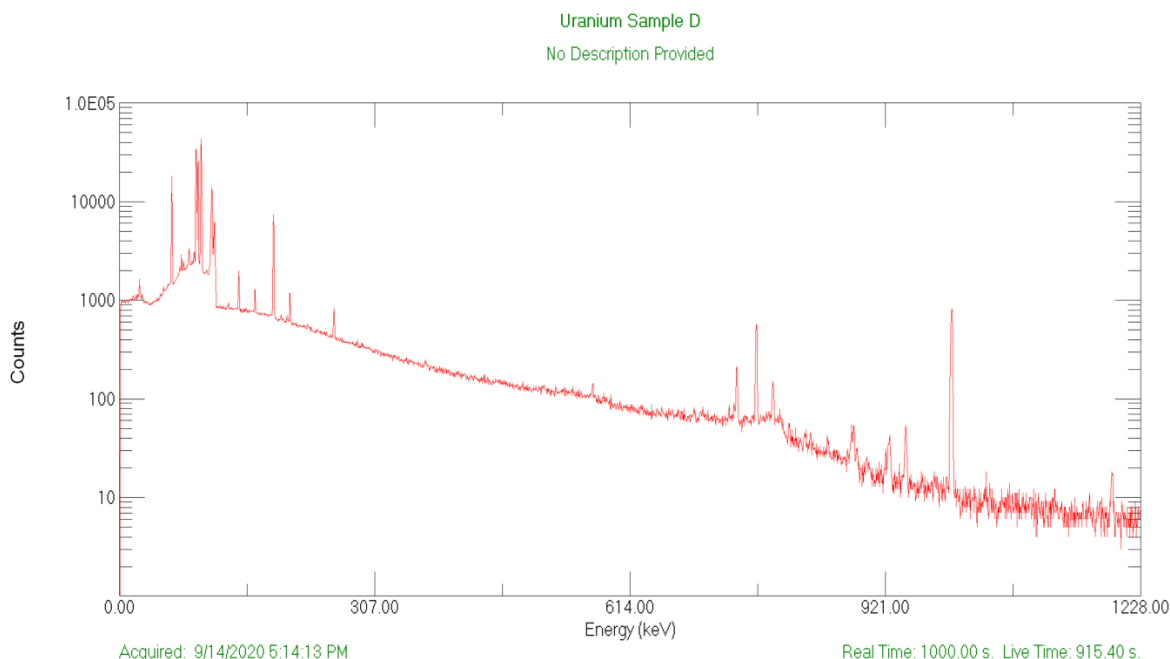




Слика П.18. Спектар уранијумског узорка В.



Слика П.19. Спектар уранијумског узорка С.



Слика П.20. Спектар уранијумског узорка D.

Пето питање је било да се употребом алата као што су PC FRAM и MGAU софтвер, процени степен обогаћења (масени удео  $^{235}\text{U}$ ) у сваком од узорака.

1. Уранијумски узорак А - PC FRAM: **(4.439±0.019) %**, MGAU: **(4.44±0.03) % (Ниско обогаћен- LEU)**
2. Уранијумски узорак В - PC FRAM: **(0.67±0.05) %**, MGAU: **(0.707±0.015) % (Природни U)**
3. Уранијумски узорак С - PC FRAM: **(19.98±0.11) %**, MGAU: **(20.14±0.13) %**
4. Уранијумски узорак D - PC FRAM: **(0.340±0.009) %**, MGAU: **(0.322±0.017) % (Осиромашен-DEU)**

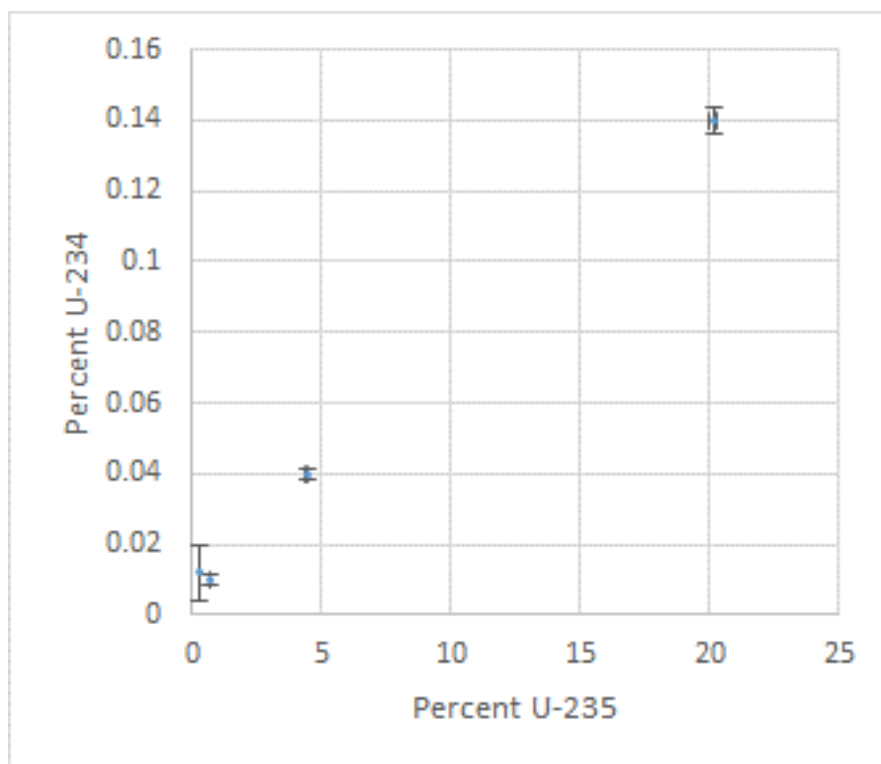
Шесто питање је било зашто је старост узорка важна? Ако је узорак уранијума веома свеж (хемијска сепарација се десила пре мање од 30 дана), да ли бисте очекивали да ће то утицати на прираштај изотопског обогаћења путем гама спектрометрије? У распаду  $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Th}$  производе се само два слаба гама зрака на 49.6 и 113.5 keV који обично нису видљиви при мерењу. Активност  $^{238}\text{U}$  се одређује користећи гама зрак пореклом из распада  $^{234\text{m}}\text{Pa} \rightarrow ^{234}\text{U}$ . Ако је узорак уранијума недавно рафинисан, онда активност  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  (период полураспада 1.17 min) и његовог претка  $^{234}\text{Th}$  период полураспада 24.1 дан) неће достићи секуларну радиоактивну равнотежу са  $^{238}\text{U}$ . На пример, после 30 дана активност  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  ће достићи само 58% активности  $^{238}\text{U}$ . Уколико се не примене корекције на за "старост", маса  $^{238}\text{U}$  ће бити потцењена, а самим тим ће и обогаћивање бити прецењено.

Седмо питање је било да ли се у спектру било ког од уранијумских узорака примећују повишене концентрације  $^{208}\text{Tl}$ ? Уколико је за неки од узорака то тачно, да ли се у истом узорку примећују повишени нивои  $^{228}\text{Ac}$ ? Да, у спектру уранијумског узорка С се примећују повишени нивои  $^{208}\text{Tl}$ , али не и повишени нивои  $^{228}\text{Ac}$ . Фотопикови  $^{208}\text{Tl}$  су видљиви изнад нивоа фона у уранијумском узорку С на 510.77, 583.19 и 860.56 keV.  $^{228}\text{Ac}$  производи такође интензивне пикове, од којих је најинтензивнији на 911.2 keV, али се исти не види у спектру овог узорка.

Осмо питање је било да ли резултати из претходног питања индикују постојање низа  $^{232}\text{Th}$  или  $^{232}\text{U}$  у том узорку? Резултати су индикативни на присуство низа  $^{232}\text{U}$ . Ланац  $^{232}\text{U}$  укључује  $^{208}\text{Tl}$  али не и  $^{228}\text{Ac}$ . Са друге стране низ  $^{232}\text{Th}$  ( $^{232}\text{Th} \rightarrow ^{228}\text{Ra} \rightarrow ^{228}\text{Ac} \rightarrow ^{228}\text{Th} \rightarrow \dots$ ) укључује и  $^{208}\text{Tl}$  и  $^{228}\text{Ac}$ . Репроцесуирани обogaћени уранијум обично садржи повишене нивое  $^{232}\text{U}$ .  $^{232}\text{U}$  се не јавља природно, већ се синтетички производи у реактору путем неколико различитих канала. Ако се уранијумско гориво поново обogaћује након уклањања из реактора, лакша фракција  $^{232}\text{U}$  ће тежити да се концентрише заједно са  $^{235}\text{U}$ . Поновна обрада такође може контаминирати опрему тако да будуће производне серије уранијума такође постану контаминиране са  $^{232}\text{U}$ .

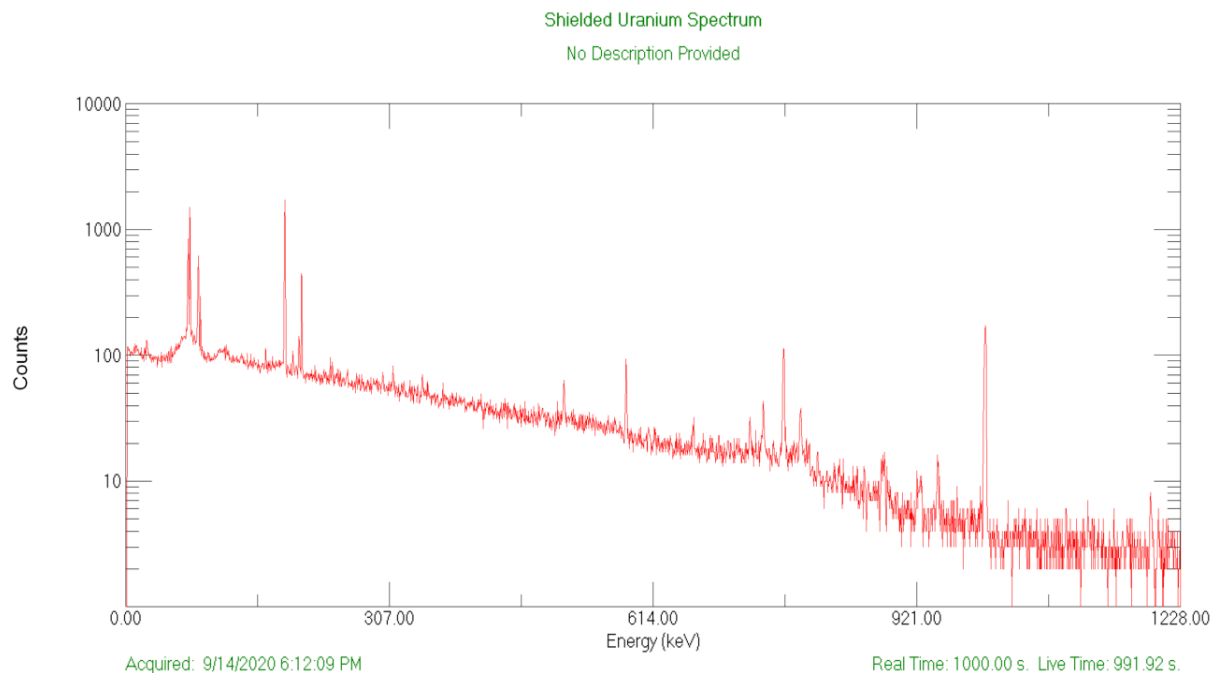
Ова вежба није укључила изотоп  $^{233}\text{U}$ , још један синтетички изотоп, али треба напоменути да произведени  $^{233}\text{U}$  такође обично садржи високе нивое  $^{232}\text{U}$ .

Девето питање је било од ког радиоизотопа потичу гама пикови на 53.2 keV и 120.9 keV? Да ли је присуство овог изотопа корелисано са обogaћењем? Поменути пикови потичу од  $^{234}\text{U}$ , и његово присуство у оквиру датих подата јесте повезано са степеном обogaћења уранијумског материјала (слика П.21). Ово је генерално тачно за обogaћен уранијум, али различите специфичности процеса обogaћења утичу на поменути корелацију. Резултати масених удела  $^{234}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  добијени су коришћењем PC FRAM софтвера.



Слика П.21. Процентуални масени удео  $^{234}\text{U}$  у функцији масеног удела  $^{235}\text{U}$  у узорцима А, В, С и D.

Десето питање је било да се размотри спектар уранијумског узорка са заштитом (слика П.22). Ово је спектар једног од четири претходно поменути уранијумска узорка, али снимљен преко оловне заштите око узорка, дебљине 4 mm. Спектар ког узорка је у питању?

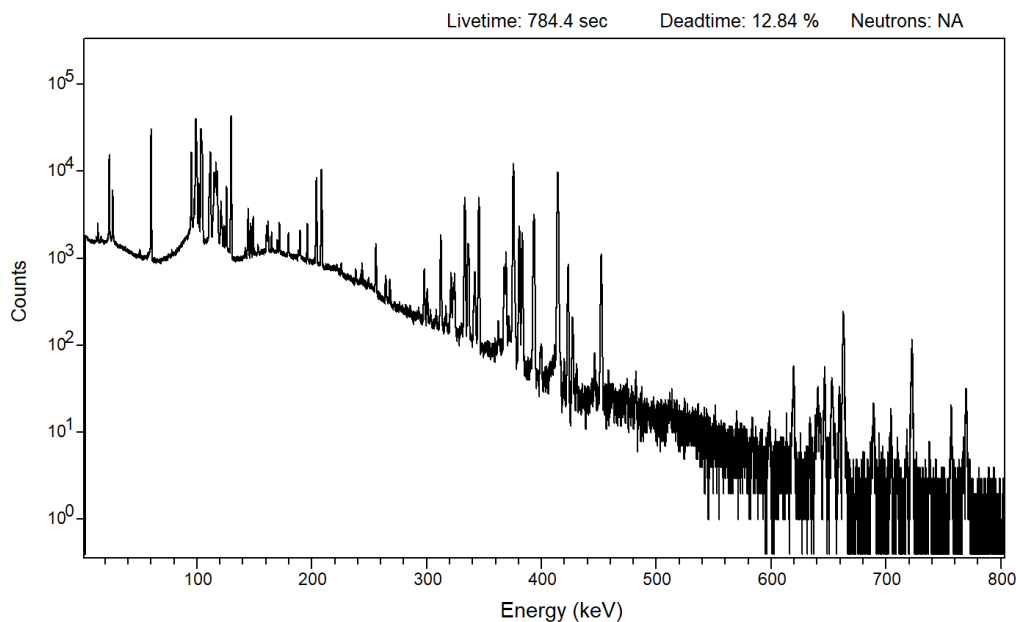


Слика П.22. Спектар уранијумског узорка окруженог оловном заштитом дебљине 4 mm.

У питању је спектар уранијумског узорка С, будући да се једино у њему појављују повишени нивои  $^{208}\text{Tl}$ . Ово је најједноставнији начин да се одреди о ком се узорку ради, будући да није потребно коришћење комерцијалних софтверских пакета PC FRAM или MGAU. Треба приметити да присуство  $^{208}\text{Tl}$  без присуства  $^{228}\text{Ac}$  може бити користан индикатор да се ради о обогаћеном уранијуму унутар заштите или  $^{233}\text{U}$ . Међутим, обогаћени уранијум који није био унутар реактора не мора имати ове карактеристике.

### Нуклеарни материјали – плутонијум

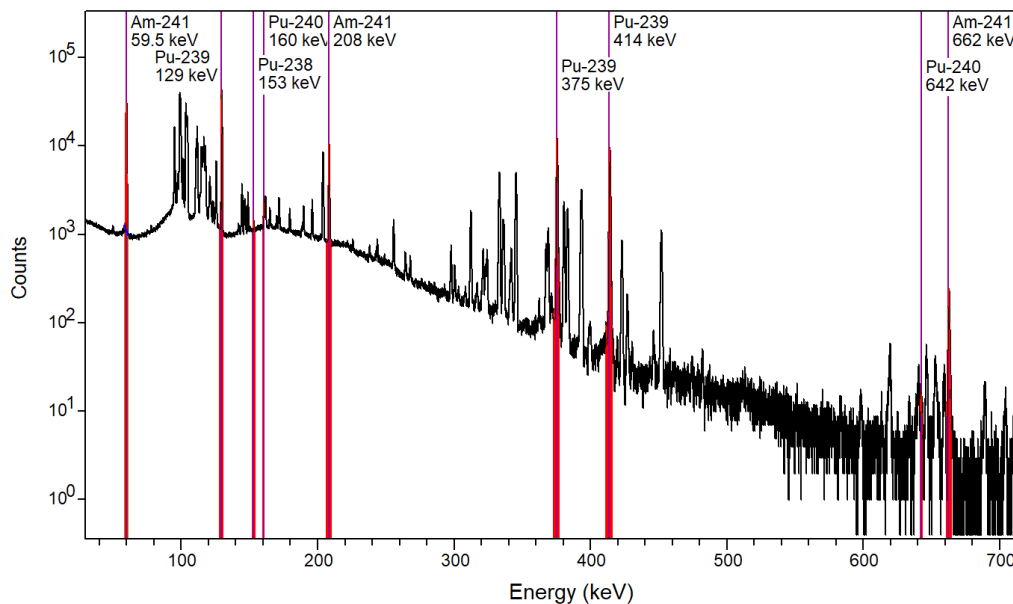
Ова вежба укључује анализе спектра плутонијума и још три материјала који су погрешно идентификовани као плутонијум користећи NaI сцинтилациони детектор. Првих шест питања односи се на анализу спектра плутонијумског материјала (слика П.23) снимљеног HPGe детектором планарног типа и високе енергетске резолуције.



Слика П.23. HPGe спектар материјала који садржи плутонијум.

Прво питање је било да се идентификују три фотопика који потичу од  $^{239}\text{Pu}$ .

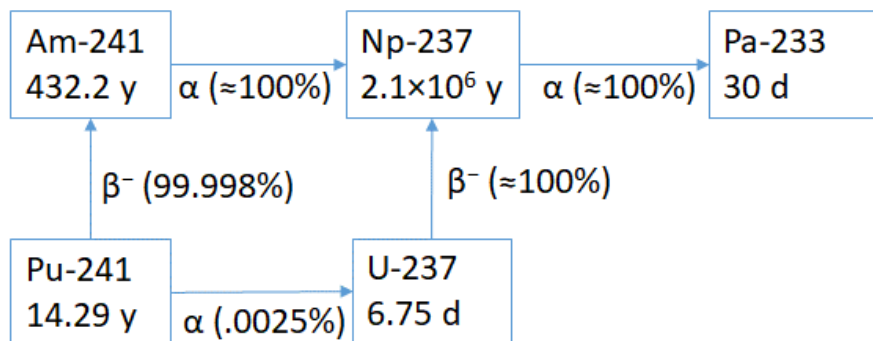
Три најинтензивнија фотопика који потичу од алфа распада  $^{239}\text{Pu}$  се налазе на енергијама 129.30 keV, 375.05 keV и 413.71 keV. Такође, постоје и многи други пикови као, на пример, на енергијама од 103.06, 116.26, 144.20, 161.45, 171.39, 195.68, 203.54, 332.84, 345.01, 380.17, 393.14, 422.60, 451.48 и 645.90 keV (слика 8.24). у спектру са слике П.24 се такође могу видети и X-зраци од уранијума, који настаје распадом плутонијума, на енергијама 94.65, 98.43, 110.42 и 111.30 keV.



Слика П.24. HPGe спектар плутонијумског материјала са обележеним гама линијама.

Друго питање је било да се идентификују три фотопика који потичу од  $^{241}\text{Pu}$  и/или  $^{241}\text{Am}$ .

Три фотопика се налазе на енергијама 59.54 keV, 208.00 keV и 662.40 keV. Последњи од три поменута пика (662.4 keV), често се преклапа са гама линијом  $^{137}\text{Cs}$  на 661.66 keV, који веома лако може бити присутан у плутонијумском материјалу. Поред поменута три, могу се видети и следећи фотопикови: 102.98, 125.30, 148.57 и 722.01 keV. Многе гама линије које се налазе испод 371 keV имају доприносе како од алфа распада  $^{241}\text{Am}$  тако и од алфа распада  $^{237}\text{U}$ , који је праћен бета распадом  $^{241}\text{Pu}$  (слика П.25). Пикови на 662.4 keV и 772 keV потичу искључиво од  $^{241}\text{Am}$ . Фотопик који потиче само од распада  $^{241}\text{Pu}$  налази се на енергији 148.57 keV.



Слика П.25. Шематски приказ ланца  $^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ .

И треће питање је укључивало идентификацију, у овом случају два фотопика који потичу од  $^{240}\text{Pu}$ .

То су гама линије на енергијама 160.31 keV и 642.35 keV. Такође, постоји гама линија од  $^{240}\text{Pu}$  на енергији 104.23 keV који је део мултиплета (групе преклапајућих пикова, 4 и више).

Такође, четврто питање је било везано за идентификацију макар једног фотопика који потиче од  $^{238}\text{Pu}$ .

У спектру са слике П.24 примећује се пик на енергији 152.72 keV који потиче од распада  $^{238}\text{Pu}$ . Поред њега, може се уочити и пик на енергији 766.38 keV као и веома слаб пик на енергији 99.85 keV који је део мултиплета.

У склопу петог питања је дат спектар плутонијумског материјала у ком су видљиви флуоресцентни X-зраци на 23 keV и 26 keV. Они потичу од филтера који је коришћен за смањење интензитета фотопика на 59.54 keV. Утврдити да ли је овај филтер вероватније направљен од кадмијума (Cd), калаја (Sn) или олова (Pb).

У питању је филтер од кадмијума (Табела П.1). Сва три елемента се често користе као филтери. Максималне енергије које се виде у спектру су веома сличне енергијама X-зрака од Cd, али не и од Sn или Pb.  $K\alpha_1$  и  $K\alpha_2$  X-зраци се појављују као један пик близу 23 keV. Вредности енергија карактеристичних X-зрака ова три елемента приказана су у Табели П.1.

Табела П.1. Енергије карактеристичних X-зрака Cd, Sn и Pb.

Елемент	Прелаз		
	$K_{\alpha 1}$ [keV]	$K_{\alpha 2}$ [keV]	$K_{\beta 1}$ [keV]
<b>Cd</b>	23.17	22.98	26.10
<b>Sn</b>	25.27	25.04	28.49
<b>Pb</b>	74.97	72.81	89.94

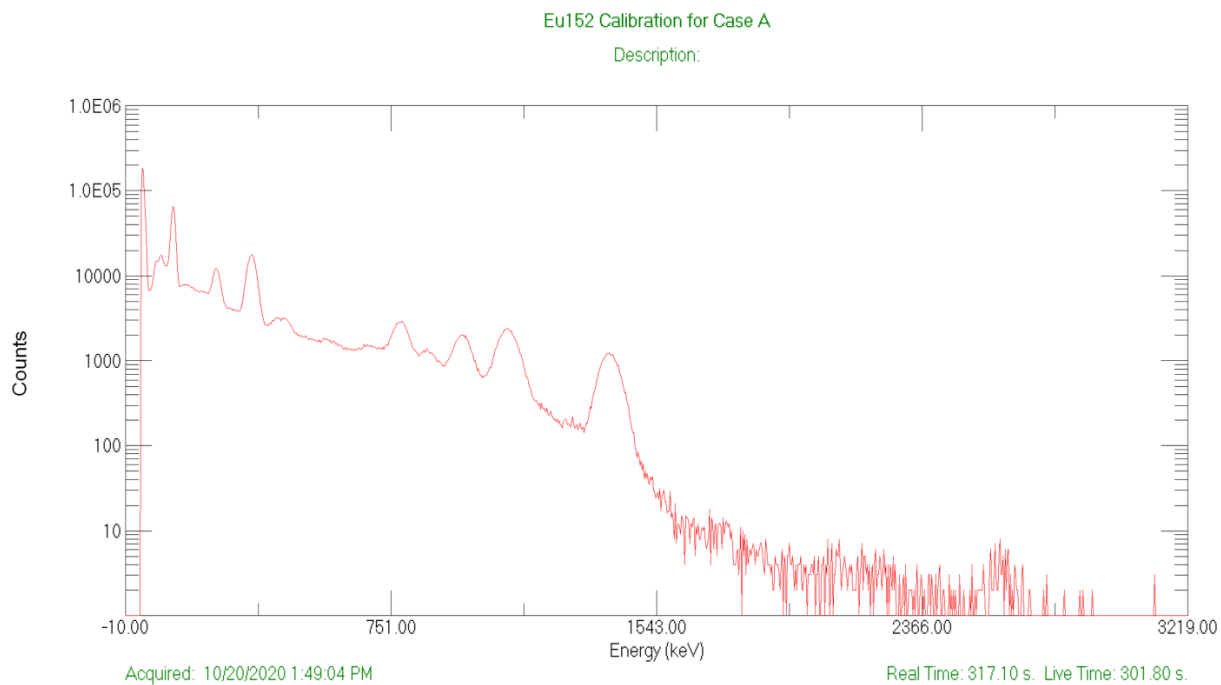
Шесто питање је подразумевало коришћење софтвера PC FRAM или MGAU, како би се проценио изотопски састав плутонијумског материјала из спектра са слике П.23. Одредити да ли је масени удео  $^{240}\text{Pu}$  већи или мањи од 10%.

За анализу је коришћен софтвер PC FRAM а резултати су дати у масеним %:

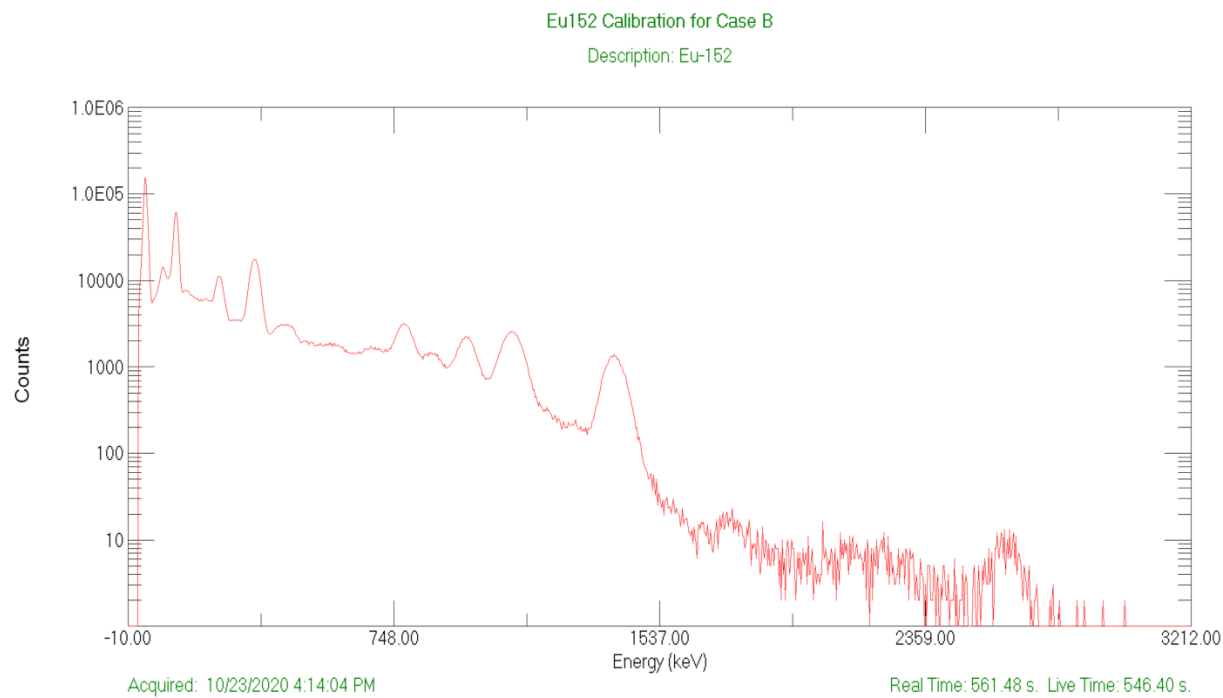
- $^{238}\text{Pu}$   $0.0097 \pm 0.0006$
- $^{239}\text{Pu}$   $93.802 \pm 0.122$
- $^{240}\text{Pu}$   **$6.104 \pm 0.122$**
- $^{241}\text{Pu}$   $0.0584 \pm 0.0004$
- $\%^{241}\text{Am}/^{\text{tot}}\text{Pu}$   $0.358 \pm 0.003$

Видимо да је масени удео  $^{240}\text{Pu}$  мањи од 10%. Имајући у виду резултате можемо закључити да се ради о "*weapons-grade*" плутонијуму, који има релативно мали удео  $^{240}\text{Pu}$  наспрам "*reactor-grade*" плутонијума.

Наредна питања су у вези са анализом спектра четири узорка, под називом "*Case A*", "*Case B*", "*Case C*", и "*Case D*", прикупљених NaI детекторима. Ови детектори немају интерни калибрациони стандард. За анализу спектра *Case A* и *Case B* приложени су калибрациони спектри  $^{152}\text{Eu}$  (слике П.26-П.27), јер су дати спектри прикупљени инструментим који нема линеарну криву енергетске калибрације, док то за анализу спектра *Case C* и *Case D* то није потребно, будући да су снимани са инструментом чија је калибрациона крива линеарна. Такође, приложени су и фонски спектри са сва четири случаја (слике П.28-П.31).

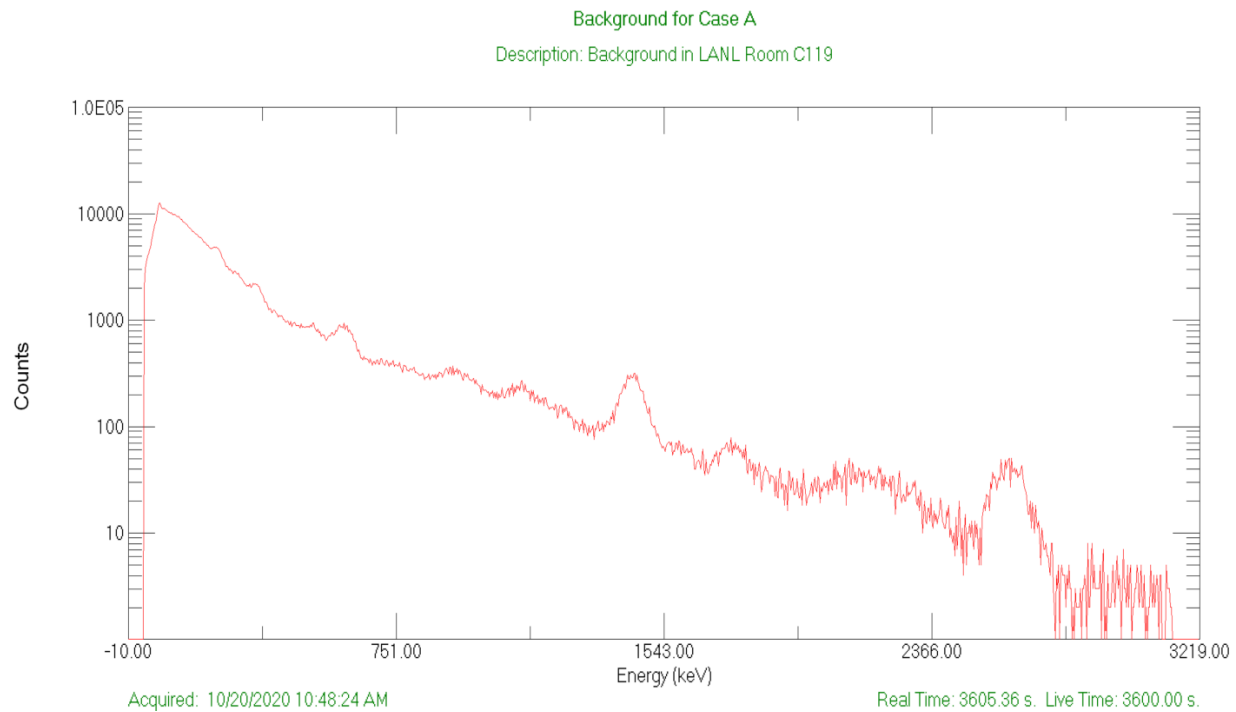


**Слика П.26.**  $^{152}\text{Eu}$  калибрациони спектар за узорак *Case A*.

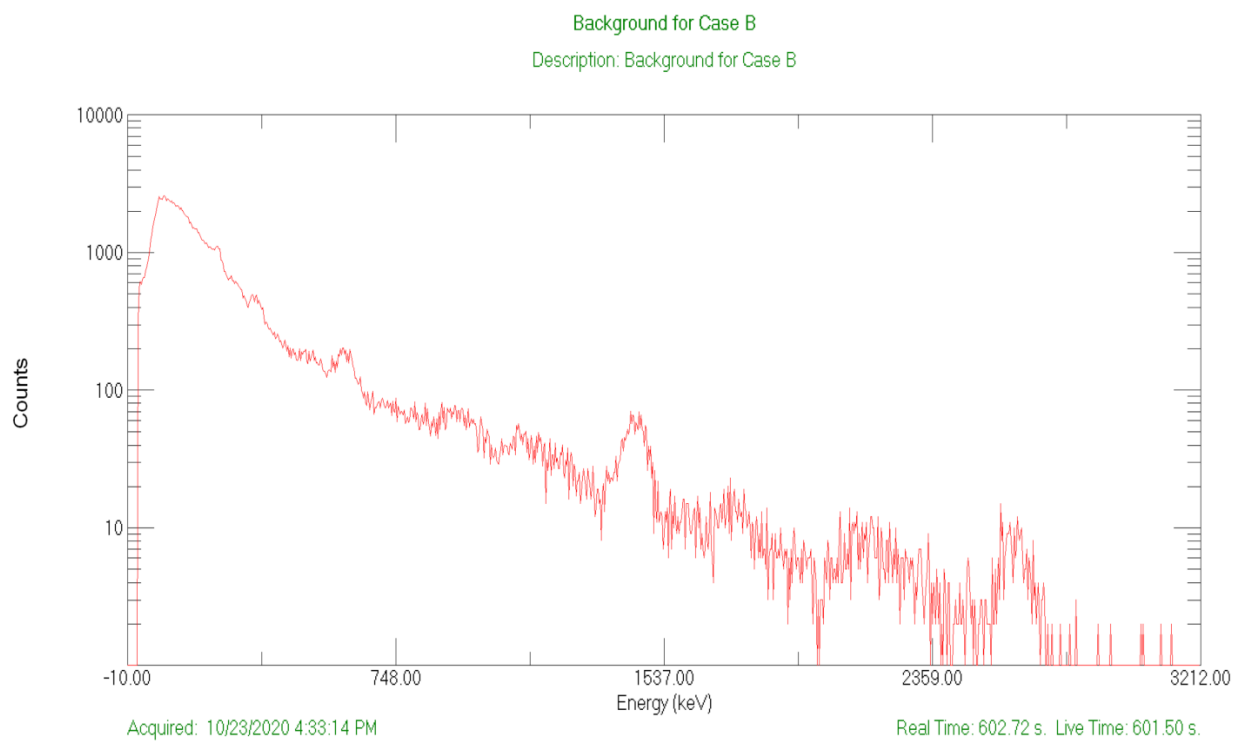


**Слика П.27.**  $^{152}\text{Eu}$  калибрациони спектар за узорак *Case B*.

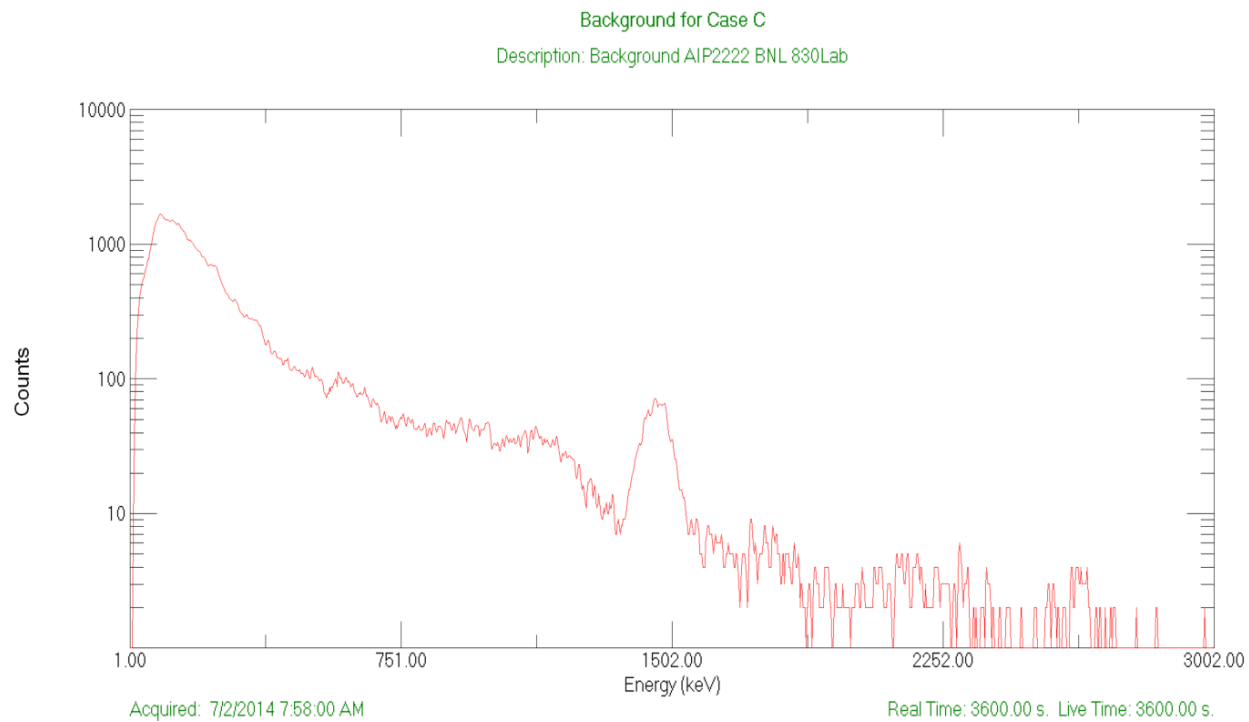




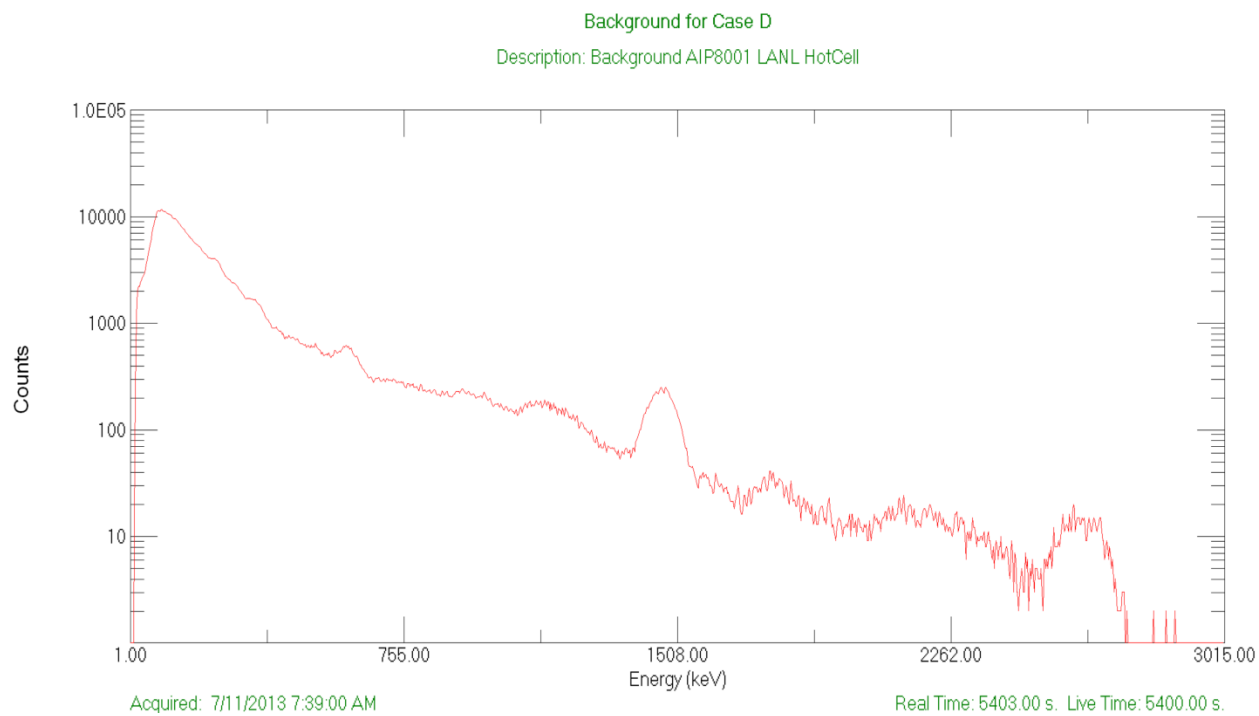
Слика П.28. Фонски спектар за узорак *Case A*.



Слика П.29. Фонски спектар за узорак *Case B*.

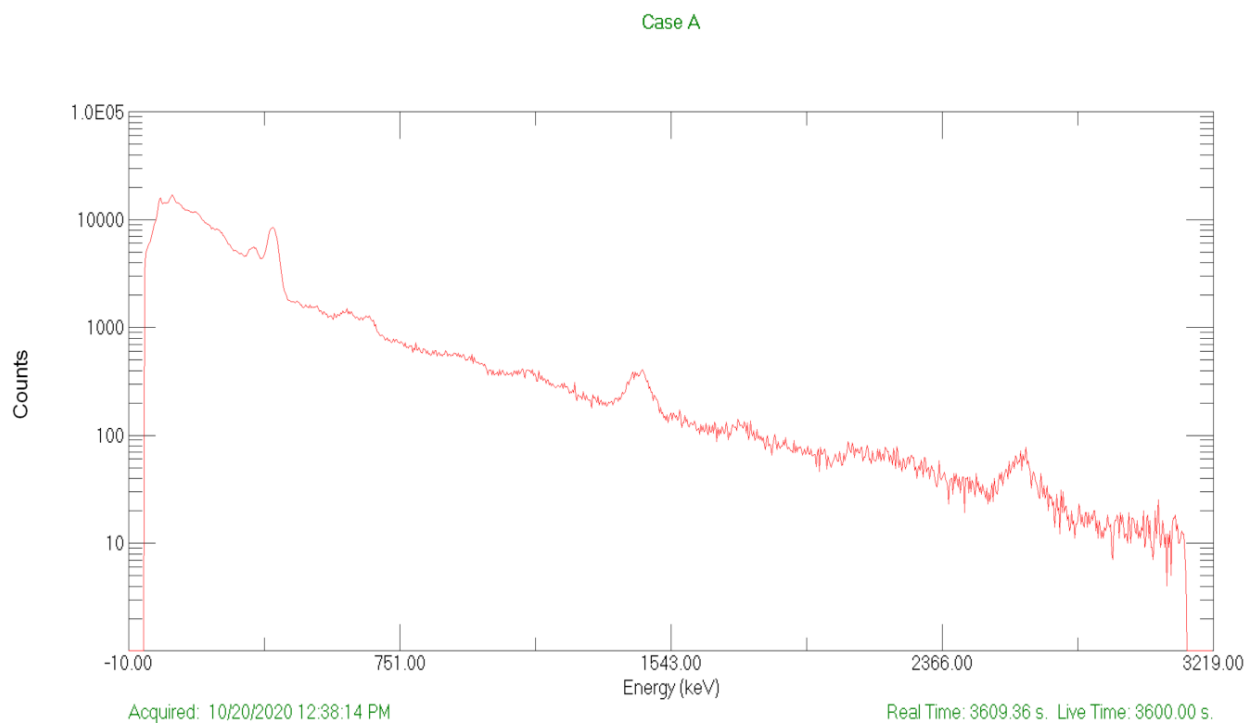


Слика П.30. Фонски спектар за узорак *Case C*.

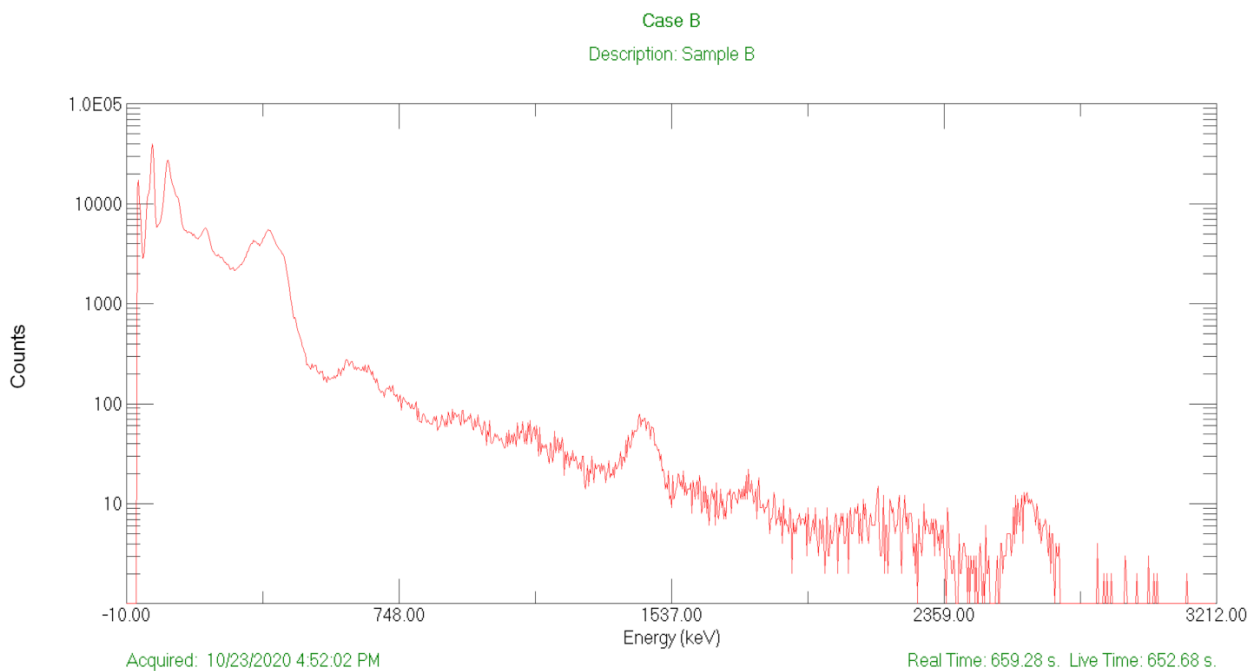


Слика П.31. Фонски спектар за узорак *Case D*.

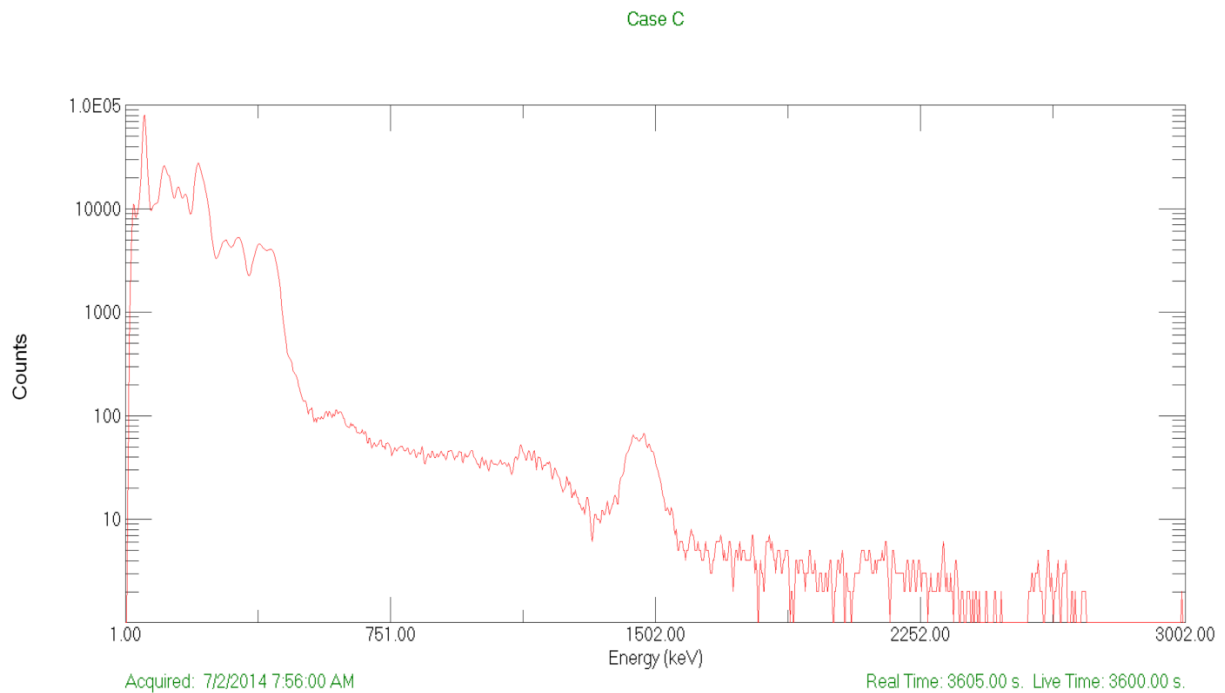
Спектри материјала *Case A*, *Case B*, *Case C*, и *Case D* дати су на сликама 8.32-8.35.



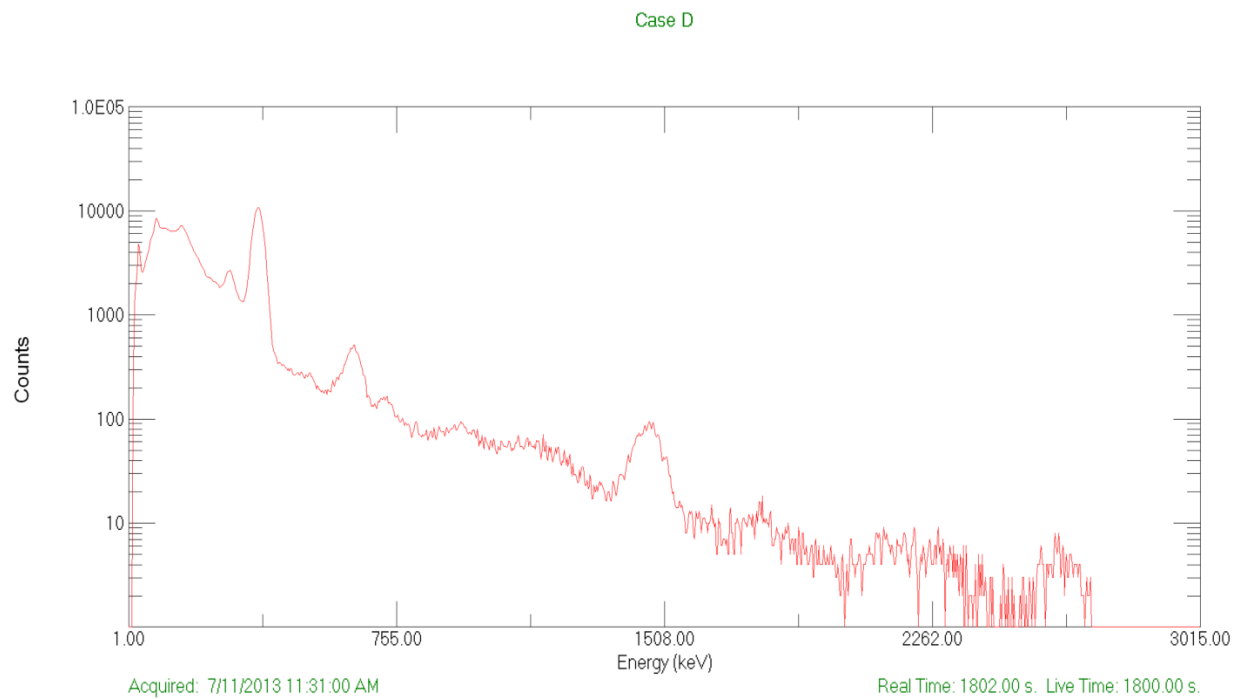
Слика П.32. Спектар за узорак *Case A*.



Слика П.33. Спектар за узорак *Case B*.



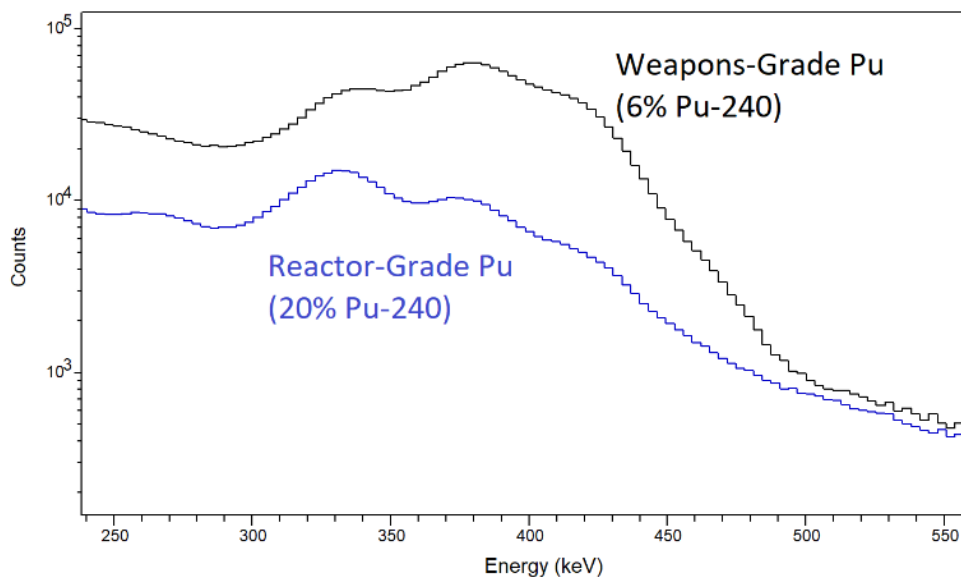
**Слика П.34.** Спектар за узорак *Case C*.



**Слика П.35.** Спектар за узорак *Case D*.

Седмо питање је било да се одреди који је од спектара узорака приказаних на сликама 8.32-8.35 заправо плутонијумски спектар.

Узорак *Case B* је стварно плутонијум, док су остала три случаја погрешно идентификована као плутонијум. Артефакт у спектру *Case B* у облику "троструке грбе" у околини 400 keV је карактеристични траг плутонијума који је препознатљив у спектрима NaI детектора. Облик ове грбе је различит код плутонијума за израду оружја и за реакторе ("*weapons-grade*" и "*reactor-grade*" плутонијум), а такође се мења са старошћу материјала (слика П.36).



Слика П.36. Изгледи дела спектара плутонијумских материјала са различитим уделом  $^{240}\text{Pu}$ .

Осмо, девето и десето питање подразумевало је идентификацију радионуклида у спектрима остала три узорка, уз напомену да се у свим случајевима ради радиоактивним изворима који се користе у медицини или индустрији. Имати на уму да видљиви фотопикови у спектрима могу водити порекло од дугоживеће нечистоће у извору, а не иницијалног радионуклида.

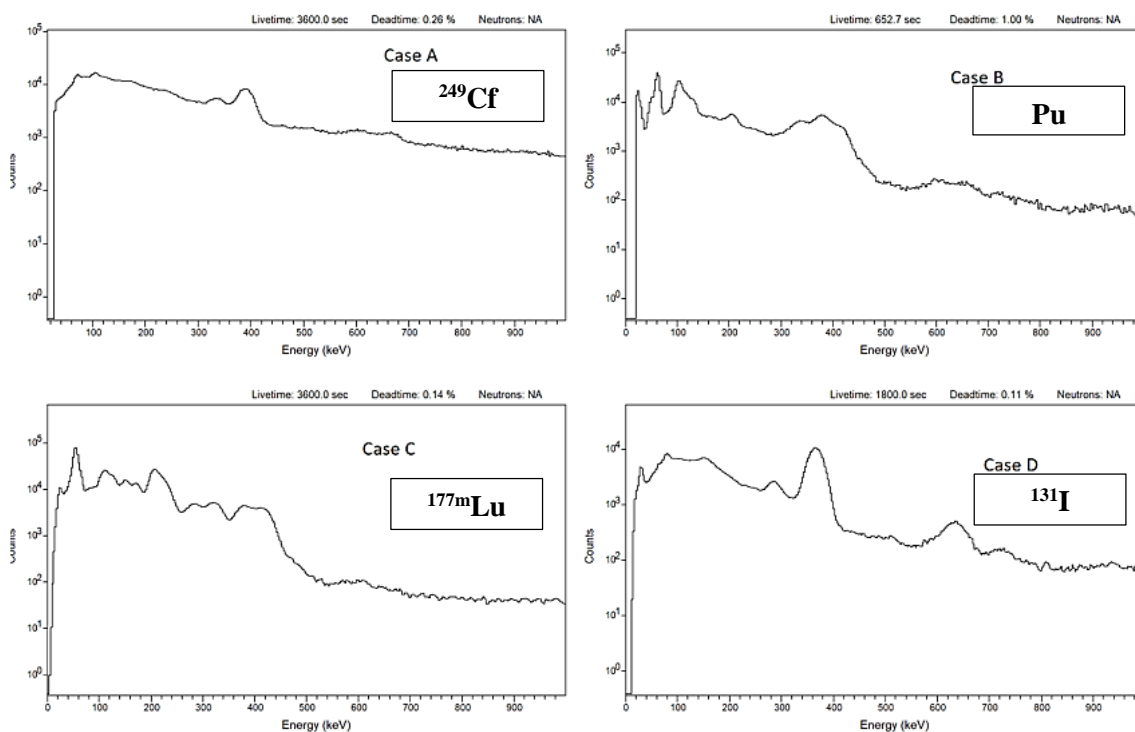
*Case A* представља спектар  $^{249}\text{Cf}$ . Ово је дугоживећа нечистоћа (период полураспада 350.5 година) видљива у индустријским или медицинским изворима  $^{252}\text{Cf}$  (период полураспада 2.6 година). Брахиотерапијске игле са  $^{252}\text{Cf}$  се у данашње време више не користе, али су некада биле у редовној употреби.  $^{252}\text{Cf}$  је још увек уобичајен као индустријски или истраживачки извор неутрона. Извори повучени из употребе остају радиоактивни услед нечистоће  $^{249}\text{Cf}$  и понекад могу бити погрешно идентификовани као плутонијум. У спектру су видљиви  $^{251}\text{Cf}$ , као и продукт фисије  $^{137}\text{Cs}$ . Такође се претпоставља да је присутна нечистоћа  $^{250}\text{Cf}$  (период полураспада 13 година), која ће наставити да емитује неутроне дуго након што се  $^{252}\text{Cf}$  у потпуности распадне.

*Case C* представља спектар  $^{177\text{m}}\text{Lu}$ . Он је дугоживећа метастабилна нечистоћа (период полураспада 161 дан) која се налази у медицинским изворима  $^{177}\text{Lu}$  (период полураспада 6.7 дана). Употреба  $^{177}\text{Lu}$  за терапију канцерогених тумора расте широм света, углавном за лечење неуроендокриних тумора. Као резултат тога, активирани су многи радијациони аларми, изазваних дугоживећим  $^{177\text{m}}\text{Lu}$  у

токовима медицинског отпада и код људи који су примили ову терапију. Веома су честе погрешне идентификације  $^{177\text{m}}\text{Lu}$  као плутонијума. Међутим, за разлику од плутонијума,  $^{177\text{m}}\text{Lu}$  не емитује неутроне.

*Case D* представља спектар  $^{131}\text{I}$ . Овде се ради о једном од најзаступљенијих медицинских радиоизотопа, најчешће коришћеним за терапију хипертироидизма или канцера тироидне жлезде.  $^{131}\text{I}$  се, такође, често погрешно идентификује као плутонијум и не емитује неутроне.

На слици П.37 су приказани идентификовани спектри четири помињана узорка.



Слика П.37. Идентификовани спектри узорка *Case A*, *Case B*, *Case C*, и *Case D*.

---

## ЛИТЕРАТУРА

---

[AAAS,2007] Nuclear Forensics-Role, State of the Art, Program Needs, Joint Working Group of the American Physical Society and the American Association for the Advancement of Science (2007), ISBN 978-0-87168-720-3.

[Agostinelli et al.,2003] Agostinelli S et al 2003 Geant 4—a simulation toolkit, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 506 (2003), pp. 250-303, DOI: 10.1016/S0168-9002(03)01368-8.

[Angle 4,2016] A.N.G.L.E. 4, Efficiency Calculations for Semiconductor and Scintillation Detectors, User Guide, 2016.

[Apostol,2016] A. I. Apostol, Applications of gamma spectrometry and particle accelerators in the field of nuclear forensics, IFIN-HH, Bucharest, Romania, Doctoral thesis, 2016.

[Apostol et al.,2016] Apostol et al., Isotopic composition analysis and age dating of uranium samples by high resolution gamma ray spectrometry, Nuclear Instruments and Methods in Physics, Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms вол. 383 (2016) , pp. 103-108, DOI: 10.1016/j.nimb.2016.06.013.

[Carson et al.,2009] J.M. Carson et al., Explosive Properties of Reactor-Grade Plutonium, Science and Global Security 17 (2009), pp. 170-185.

[CBNM\_Pu,1989] CBNM Nuclear Reference Material 271, Certificate of Analysis, Commission of the European Communities, Joint Research Centre, Central Bureau for Nuclear Measurements, Geel, 1989.

[CBNM\_U,1985] EC Certified Nuclear Reference Material 171, Certificate of Analysis, Commission of the European Communities, Joint Research Centre, Central Bureau for Nuclear Measurements, Geel, 1985.

[CPPNM,2022] The Convention on the Physical Protection of Nuclear Material – CPPNM, Доступно на: <https://www.iaea.org/publications/documents/conventions/convention-physical-protection-nuclear-material-and-its-amendment>, (приступљено 27.11.2022.)

[CTBTO,2022] Comprehensive Test Ban Treaty – CTBT, Доступно на: <https://www.ctbto.org/>, (приступљено 25.11.2022.)

[Djordjevic, Milosevic,2012] I. Djordjevic, M. Milošević, Numerical Calibration of Ge Detector for Coincidence Summing Effect Determination, Proceedings of 56th Conference ETRAN, Zlatibor, Serbia, 2012, NT1.5:1-4 (in serbian).

[Dobson,2005] J. L. Dobson, The characterization and position resolution of a planar germanium strip detector, PhD Thesis, University of Liverpool, 2005.

[Dowdall et al.,2004] Dowdall M. et al., Simultaneous determination of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{238}\text{U}$  in soil and environmental materials by gamma-spectrometry in absence of radium progeny equilibrium, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol. 261, (2004), pp. 513-521, DOI: 10.1023/B:JRNC.0000037091.19952.d3.

[Ebaid,2009] Y.Y. Ebaid, Use of gamma-ray spectrometry for uranium isotopic analysis in environmental samples, ISSN 1221-146X, Rom. Journ. Phys., vol. 55 (2009), pp. 69-74.

[Fedchenko,2015] The new nuclear forensics analysis of nuclear materials for security purposes, Edited by Vitaly Fedchenko, Stockholm International Research Peace Institute (SIPRI), 2015, ISBN 978-0-19-873664-6.

- [*FRAM OM,2003*] FRAM Software User's Manual, Los Alamos National Laboratory, 2020.
- [*Garrett et al.,2014*] B.C. Garrett et al., The Nuclear Forensics International Technical Working Group (ITWG) An Overview, 2014.
- [*Genie OM,2006*] Genie™ 2000 Spectroscopy Software – Operations manual, CANBERRA Industries, 2006.
- [*Genie,2016*] Genie 2000 Gamma Analysis Software Data Sheet, Mirion technologies, 2016.
- [*GICNT,2018*] Global initiative to combat nuclear terrorism, Доступно на: <https://www.state.gov/wp-content/uploads/2018/11/Global-Initiative-To-Combat-Nuclear-Terrorism.pdf>, (приступљено 22.11.2022.).
- [*Gilmore, 2008*] G.R. Gilmore, Practical Gamma-ray Spectroscopy (2<sup>nd</sup> edition), John Wiley and Sons Ltd, 2008, ISBN 978-0-470-86196-7.
- [*Gunnick et al.,1994*] R. Gunnick et al., MGAU: A new analysis code for measuring U-235 enrichments in arbitrary samples, IAEA-SM-333/88, IAEA Symposium on International Safeguards, Vienna, 1994.
- [*IAEA CRS,2005*] IAEA Safety Standards - Categorization of Radioactive Sources, IAEA Safety Standards Series No. RS-G-1.9, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2005.
- [*IAEA ITDB,2022*] Incident and Trafficking Database (ITDB), Доступно на: <https://www.iaea.org/resources/databases/itdb>, (приступљено 12.12.2022.).
- [*IAEA No. 2-G,2015*] Nuclear Forensics in Support of Investigations, IAEA Nuclear Security Series No. 2-G (Rev.1), Implementing guide, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2015.
- [*IAEA No.2,2006*] Nuclear Forensics Support, IAEA Nuclear Security Series No. 2, Reference manual, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2006.
- [*IAEA No.20,2013*] Objective and Essential Elements of a State's Nuclear Security Regime, IAEA Nuclear Security Series No. 20, Vienna, 2013.
- [*IAEA NT,2019*] Nuclear Terrorism: Identifying and Combating the Risks, Доступно на: <https://www.iaea.org/newscenter/statements/nuclear-terrorism-identifying-and-combating-risks>, (приступљено 09.12.2022.).
- [*IAEA SRS,2013*] IAEA booklet on Safety and Security of sealed radioactive sources, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2013
- [*IAEA SS,2012*] IAEA Safety Standards – Control of orphan sources and other radioactive material in the metal recycling and production industries, IAEA Safety Standards Series No. SSG-17, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2012
- [*IAEA\_Gloss,2002*] IAEA Safeguards Glossary 2001 edition, International Nuclear Verification Series No. 3, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2002, ISBN 92-0-138602-8.
- [*ITDB,2021*] The Incident and Trafficking Database (ITDB) Programme, European Regional Transport Security Series (2021), Доступно на: <https://www.internationaltransportsecurity.org/ertss-2021/wp-content/uploads/sites/3/2021/04/20210427-ITDB-for-ERTSS-workshop.pdf>, (приступљено 12.12.2022.).
- [*ITDBfact,2020*] IAEA INCIDENT AND TRAFFICKING DATABASE (ITDB), Incidents of nuclear and other radioactive material out of regulatory control 2020 Fact Sheet, Доступно на: <https://www.iaea.org/sites/default/files/20/02/itdb-factsheet-2020.pdf>, (приступљено 12.12.2022.).



[*ITDBfact,2022*] Incident and Trafficking Database (ITDB) factsheet 2022, Доступно на: <https://www.iaea.org/sites/default/files/22/01/itdb-factsheet.pdf>, (приступљено 12.12.2022.).

[*ITWG,2011*] NUCLEAR FORENSICS INTERNATIONAL TECHNICAL WORKING GROUP, Proposed Framework for National Nuclear Forensics Libraries and International Directories, PNNL-SA-70589, Pacific Northwest National Laboratories, Richland, Washington, 2011.

[*ITWG\_GsIf,2016*] Nuclear Forensics International Technical Working Group (ITWG) Guideline: In-field applications of high resolution gamma spectrometry for the analysis of special nuclear material.", Lawrence Livermore National Laboratory, 2016.

[*ITWG\_GsLa,2016*] Nuclear Forensics International Technical Working Group (ITWG) Guideline: "Laboratory applications of high-resolution gamma spectrometry for the analysis of special nuclear material", Lawrence Livermore National Laboratory, 2016.

[*ITWG\_GsOv,2016*] Nuclear Forensics International Technical Working Group (ITWG) Guideline: "High-resolution gamma spectrometry – General overview", Lawrence Livermore National Laboratory, 2016.

[*J. Zsigrai et al.,2019*] J. Zsigrai et al., Performance of FRAM isotopic analysis of shielded plutonium with electrically cooled gamma-spectrometers, in Proceedings of the 41st ESARDA Annual Meeting, 2019, pp. 546-559.

[*Jokovic et al.,2009*] D. Joković et al., Monte Carlo simulations of the response of a plastic scintillator and an HPGe spectrometer in coincidence, Applied Radiation and Isotopes 67 (2009), DOI 10.1016/j.apradiso.2009.01.024.

[*Jovanovic et al.,1997*] S. Jovanovic et al, Angle: A PC code for semiconductor detector efficiency calculations, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 218 (1997), pp. 13-20.

[*Kaminski et al.,2014*] S. Kaminski et al., Uncertainty of gamma-ray spectrometry measurement of environmental samples due to uncertainties in matrix composition, density and sample geometry, Appl. Radiat. Isot. 94 (2014), DOI:10.1016/j.apradiso.2014.08.008.

[*Kaste et al.,2006*] J.M. Kaste et al., Determining  $^{234}\text{Th}$  and  $^{238}\text{U}$  in rocks, soils, and sediments via the doublet gamma at 92.5 keV, The Analyst 131 (2006), pp. 757-763.

[*Kennedy et al.,1946*] J. W. Kennedy et al., Properties of Element 94, Physical Review. 70, (1946), pp. 555–556, DOI 10.1103/PhysRev.70.555.

[*Knoll,2010*] G. F. Knoll, Radiation detection and measurement (4<sup>th</sup> ed.), John Wiley and Sons Ltd, 2010, ISBN: 978-0-470-13148-0.

[*Kolotov et al,1996*] V. Kolotov et al., Estimation of true coincidence corrections for voluminous sources, Journal of radioanalytical and nuclear chemistry 210 (1996), pp. 183-196. DOI: 10.1007/bf02055417.

[*Kristo et al., 2004*] M.J. Kristo et al., Model Action Plan for Nuclear Forensics and Nuclear Attribution, Rep. UCLR-TR-202675, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA 2004.

[*KrivZak,2019*] Кривични законик: 85/2005-30, 88/2005-51 (исправка), 107/2005-171 (исправка), 72/2009-53, 111/2009-36, 121/2012-3, 104/2013-3, 108/2014-3, 94/2016-7, 35/2019-3 <https://www.pravno-informacioni-sistem.rs/SlGlasnikPortal/eli/rep/sgrs/skupstina/zakon/2005/85/6/reg>, (приступљено 03.12.2022.).

[*Krmar et al.,2013*] M. Krmar et al, A method to estimate a contribution of Ge(n,n') reaction to the low-energy part of gamma spectra of HPGe detectors, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research,

Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 709 (2013) pp. 8–11, DOI: /10.1016/j.nima.2012.12.122.

[*Litvienko,2022*] Информације о случају тровања Александра Литвиенка, Доступно на: [https://en.wikipedia.org/wiki/Poisoning\\_of\\_Alexander\\_Litvinenko](https://en.wikipedia.org/wiki/Poisoning_of_Alexander_Litvinenko), (приступљено 05.12.2022.).

[*Lloyd, Clayton,1973*] R. C. Lloyd, E. D. Clayton, The Criticality of High Burnup Plutonium, Nuclear Science and Engineering, 52:1 (1973) , pp. 73-75, DOI: 10.13182/NSE73-A23289.

[*Mayer et al.,2005*] K. Mayer et al., Nuclear Forensics—A Methodology Providing Clues on the Origin of Illicitly Trafficked Nuclear Materials, The Analyst, The Royal Society of Chemistry 130 (2005), pp. 433–441, DOI: 10.1039/b412922a.

[*Mayer et al.,2007*] K. Mayer, M. Wallenius, T. Fanghänel, Nuclear forensic science—From cradle to maturity, Journal of Alloys and Compounds, 444–445 (2007), pp. 50-56, DOI: 10.1016/j.jallcom.2007.01.164.,

[*McNaught, Wilkinson, 1997*] A. D. McNaught, A. Wilkinson, International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC), Compendium of Chemical Terminology, 2nd edition (Blackwell Scientific Publications: Oxford, 1997).

[*MGA++ , 2023*] MGA++ Software User\_s Manual, Software Version 1, EG&G ORTEC. Доступно на: <https://www.ortec-online.com/-/media/ametekortec/brochures/m/mga.pdf?la=en&revision=c93ff7fa-5632-42b9-ab42-a11a73490c31>, (приступљено 05.02.2023.).

[*Milosevic et al.,2014*] M. Milošević, Merenje aktivnosti uranijuma, Zbornik 58. konferencije za elektroniku, telekomunikacije, računarstvo, automatiku i nuklearnu tehniku (in Serbian) proc. 58th ETRAN Conference, Vrnjačka Banja, 2014, ISBN 978-86- 80509-69-3.

[*Moody et al.,2015*] K. J. Moody, I. D. Hutcheon, P. M. Grant, Nuclear Forensic Analysis-Second Edition, CRC Press, 2015, ISBN 978-1-4398-8061-6.

[*Mrdja et al.,2019*] D. Mrdja et al., Optimization of the HPGe detector passive shields by Monte-Carlo simulations, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 929 (2019), pp. 76-83, DOI: 10.1016/J.NIMA.2019.03.041.

[*Murray,1987*] Murray, A., et al., (1987) Analysis for naturally occurring radionuclides at environmental concentrations by gamma spectrometry, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 115.2: 263-288. <https://doi.org/10.1007/bf02037443>

[*NF\_ITWG,2022*] Nuclear forensic international technical working group, Доступно на: <http://www.nf-itwg.org/>, (приступљено 23.11.2022.)

[*Nikolic et al.,2014*] J. Nikolic, Calculation of HPGe efficiency for environmental samples: comparison of EFFTRAN and GEANT4, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 763 (2014) pp. 347–353, DOI: 10.1016/J.NIMA.2014.06.044.

[*NNFL,2018*] Development of a National Nuclear Forensics Library: A System for the Identification of Nuclear or Other Radioactive Material out of Regulatory Control, IAEA Nuclear Security series, Vienna, 2018.

[*NPT,2022*] Treaty on the Nonproliferation of Nuclear Weapons – NPT, Доступно на: <https://www.un.org/disarmament/wmd/nuclear/npt/>, (приступљено 25.11.2022.).

[NSM,2001] Подаци о физико-хемијским особинама германијума, Доступно на: <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/Ge/>, (приступљено 02.02.2023.).

[NSS,2018] Arms Control Association – Nuclear Security Summit at glance, Доступно на: <https://www.armscontrol.org/factsheets/NuclearSecuritySummit>, (приступљено 02.12.2022.).

[NTC,2022] Nuclear Terrorism Convention - NTC , Доступно на: [https://en.wikipedia.org/wiki/Nuclear\\_Terrorism\\_Convention](https://en.wikipedia.org/wiki/Nuclear_Terrorism_Convention), (приступљено 29.11.2022.).

[NTI,2008] Treaty on the Prohibition of the Emplacement of Nuclear Weapons and Other Weapons of Mass Destruction on the Seabed and Ocean Floor and in the Subsoil Thereof , Доступно на: <https://www.nti.org/education-center/treaties-and-regimes/treaty-prohibition-emplacement-nuclear-weapons-and-other-weapons-mass-destruction-seabed-and-ocean-floor-and-subsoil-thereof-seabed-treaty/>, (приступљено 29.11.2022.)

[NucIncidents,2022] List of crimes involving radioactive substances, Доступно на: [https://www.chemeurope.com/en/encyclopedia/List\\_of\\_crimes\\_involving\\_radioactive\\_substances.html](https://www.chemeurope.com/en/encyclopedia/List_of_crimes_involving_radioactive_substances.html), (приступљено 05.12.2022.).

[Olszewski et al.,2016] G. Olszewski et al., The radiological impact of phosphogypsum stockpile in Wislinka (northern Poland) on the Martwa Wisła river water, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 307 (2016), pp. 653–660, DOI:10.1007/s10967-015-4191-5.

[ORTEC FRAM.,2022] ORTEC FRAM Plutonium and Uranium Isotopic Analysis Software V6.1, ORTEC /Ametec,2022

[OST,2021] Treaty on Principles Governing the Activities of States in the Exploration and Use of Outer Space, including the Moon and Other Celestial Bodies- The Outer Space Treaty , Доступно на: [https://treaties.unoda.org/t/outer\\_space](https://treaties.unoda.org/t/outer_space), (приступљено 30.11.2022.).

[PSI,2003] Aaron Dunne, The Proliferation Security Initiative - Legal Considerations and Operational Realities, SIPRI Policy Paper No. 36, 2003.

[PSI,2018] M.B. Nikitin, Proliferation Security Initiative (PSI), Congressional Research Service (CRS) Report, 2018.

[PSI,2022] US Department of State - The Proliferation Security Initiative, Доступно на: <https://www.state.gov/proliferation-security-initiative/>, (приступљено 20.11.2022.).

[Ramebäck et al.,2008] Rameback, H. et al., Basic characterization of  $^{233}\text{U}$ : determination of age and  $^{232}\text{U}$  content using sector field ICP-MS, gamma spectrometry and alpha spectrometry, Nuclear Instruments and Methods in Physics, Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 266, (2008), pp. 807–12, DOI: 10.1016/j.nimb.2008.01.008.

[REDinfo,2022] U.S. Department of Health & Human Services - Radiological Exposure Device, Доступно на: [https://emergency.cdc.gov/radiation/pdf/infographic\\_radiological\\_exposure\\_device.pdf](https://emergency.cdc.gov/radiation/pdf/infographic_radiological_exposure_device.pdf), (приступљено 12.12.2022.).

[REMM,2022] U.S. Department of Health & Human Services - Radiological Exposure Devices (REDs), Доступно на: <https://remm.hhs.gov/red.htm>, (приступљено 09.12.2022.).

[Res1540,2004] UNITED NATIONS SECURITY COUNCIL (UNSC), 1540 Committee (Resolution 1540), 2004, Доступно на: [https://www.un.org/en/sc/1540/national-implementation/guidelines-for-reporting\\_shtml#](https://www.un.org/en/sc/1540/national-implementation/guidelines-for-reporting_shtml#), (приступљено 02.12.2022.).

[RGU-1,1987] Preparation and certification of IAEA gamma spectrometry reference materials RGU-1 IAEA, RGTh-1 and RGK-1, Report IAEA/RL/148, Vienna 1987.

[Richter et al.,1999] S. Richter et al., "Isotopic 'Fingerprints' for Natural Uranium Ore Samples," International Journal of Mass Spectrometry 193 (1999), pp. 9-14.

[Rikalo,2020] А. Рикало, Мерење активности уранијума у узорцима непознатог састава, Природно-математички факултет, Универзитет у Новом Саду, Мастер рад, Нови Сад, 2020.

[Sampson,1992] T.E. Sampson, Using the FRAM Plutonium Isotopic System for <sup>242</sup>Pu Isotopic Verification, Los Alamos National Laboratory Report LA-11744-M, 1992.

[Sampson,2003] T.E. Sampson, PLUTONIUM ISOTOPIC ANALYSIS USING PC/FRAM, Los Alamos National Laboratory Report LA-UR-03-4403, 2003.

[Seaborg et al.,1946] G.T. Seaborget al., Radioactive Element 94 from Deuterons on Uranium, Physical Review 69 (1946), DOI 10.1103/PhysRev.69.366.

[SRBATOM,2019] Директорат за радијациону и нуклеарну сигурност и безбедност Србије, Доступно на: <https://www.srbatom.gov.rs/srbatomm/nadleznost/>, (приступљено 03.12.2022.).

[Stanic et al.,2019] G. Stanic et al., Angle vs. LabSOCS for HPGe efficiency calibration, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 920 (2019), pp. 81-87, DOI 10.1016/j.nima.2018.12.059.

[Starr,1996] D. F. Starr, MSTAR-IAEA Enrichment Code User Guide, K/NSP-386, U.S. Department of Energy, 1996.

[TechRep\_Pu,2015] J. Zsigrai et al., Collection of medium-resolution gamma spectra of certified Pu reference materials, European Commission JRC Technical reports, 2015, DOI: 10.2789/382595.

[TechRep\_U,2015] J. Zsigrai et al., Collection of medium-resolution gamma spectra of certified U reference materials, European Commission JRC Technical reports, 2015, DOI: 10.2789/052375.

[Tsang et al,2019] R.H.M. Tsang et al., GEANT4 models of HPGe detectors for radioassay, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 935 (2019), DOI: 10.1016/j.nima.2019.04.085.

[Tucaković et al.,2017] I. Tucakovic et al., Application of mathematical calibrations in measurements of gamma emitting radionuclides in honey samples and borosilicate filters, Appl. Radiat. Isot. 126 (2017), DOI: 10.1016/j.apradiso.2017.02.016.

[US DOE,1997] Reactor-Grade and Weapons-Grade Plutonium in Nuclear Explosives, Nonproliferation and Arms control Assesment of Weapons-Usable Fissile Material Storage and Excess Plutonium Disposition Alternatives, from US Departmen of Energy publication, 1997, pp 37-39.

[Verplancke,1992] J. Verplancke, Low level gamma spectroscopy: low, lower, lowest, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 312 (1992), pp. 174–82, DOI: 10.1016/0168-9002(92)90149-X.

[Vidmar et al.,2010] T. Vidmar et al., Testing efficiency transfer codes for equivalence, Applied Radiation and Isotopes, 68 (2010), pp. 355-359, DOI: 10.1016/j.apradiso.2009.10.012.

[Vidmar,2005] T. Vidmar, EFFTRAN—A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A: Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip., 550 (3) (2005), pp. 603-608, DOI: 10.1016/j.nima.2005.05.055.

[Vranicar et al,2021] A. Vraničar et al., Testing of EFFTRAN and Angle software in comparison to GEANT 4 simulations in gamma spectrometry of cylindrical and noncylindrical sample geometries, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 986 (2021), DOI 10.1016/j.nima.2020.164768.

[Waltar, Reynolds,1981] A.E. Waltar, A.B. Reynolds, Fast breeder reactors. New York: Pergamon Press (1981), ISBN 978-0-08-025983-3. Archived

[Yücel et al.,1998] H. Yücel et al., Use of the 1001 keV peak of  $^{234m}\text{Pa}$  daughter of  $^{238}\text{U}$  in measurement of uranium concentration by HPGe gamma-ray spectrometry, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 413 (1) (1998), pp. 74-82, DOI: 10.1016/S0168-9002(98)00562-2.

[Yücel et al.,2009] Yücel H., Solmaz A.N., Köse E., Bor D., Spectral interference corrections for the measurement of  $^{238}\text{U}$  in materials rich in thorium by a high resolution  $\gamma$ -ray spectrometry, Applied Radiation and Isotopes 67 (2009), pp. 74-82, DOI: 10.1016/j.apradiso.2009.07.011.

[ZRNSB,2019] Закон о радијационој и нуклеарној сигурности и безбедности: 95/2018-389, 10/2019-13, <https://www.pravno-informacioni-sistem.rs/SlGlasnikPortal/eli/rep/sgrs/skupstina/zakon/2019/10/7>, (приступљено 03.12.2022.).

[Zsigrai et al.,2015] J. Zsigrai et al., Gamma-spectrometric determination of  $^{232}\text{U}$  in uranium-bearing materials. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 359 (2015), pp. 137-144, DOI: 10.1016/j.nimb.2015.07.047.

[Zsigrai et al.,2017] J. Zsigrai et al., Using FRAM to determine enrichment of shielded uranium by portable electrically cooled HPGe detectors,” in Proceedings of the 39th ESARDA Annual Meeting, 2017, pp. 80–86.

[Zsigrai, Nguyen,2006] J. Zsigrai, C.T. Nguyen, Basic characterization of highly enriched uranium by gamma spectrometry, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 246, (2006), pp 417-424, DOI: 10.1016/j.nimb.2006.01.011.

---

## БИОГРАФИЈА

---



Андреј Враничар рођен је 9. јуна 1992. године у Новом Саду. По завршетку гимназије "Светозар Марковић" у Новом Саду, 2011. године уписује Природно-математички факултет, Универзитета у Новом Саду. Дипломирао је априла 2016. године на смеру дипломирани физичар-медицинска физика, одбраном дипломског рада "Пројектовање мера заштите за просторију за брахитерапију и процена радијационог ризика". Уписује мастер студије нуклеарне физике на истом факултету које завршава 2017. године одбраном мастер рада "Радијум у води: Детекција у волуминозним узорцима полупроводничким детектором и NaI детектором облика јаме".

Од новембра 2016. године запослен је у лабораторији Катедре за нуклеарну физику где се бави нискофонском гамаспектрометријом. Почевши од априла 2018. године запослен је на Департману за физику, Природно-математичког факултета у Новом Саду као истраживач приправник на пројекту ОИ171002 "Нуклеарне методе истраживања ретких догађаја и космичког зрачења" (од 2020. године Програм под бројем 451-03-68/2020-14/200125).

Од 2017. године је члан CERN-а, у оквиру ISOLDE колаборације, експеримента NICOLE. 2019. године постаје члан ITWG (*International Technical Working Group*) и учествује на 24. годишњем састанку ITWG у Букурешту, Румунија, јуна 2019. године. Учесник је међународног пројекта IAEA CRP, уговор број 23159/R0, под називом "Improving of non-destructive laboratory based and in-situ measuring methods to respond to a nuclear security event". Аутор и коаутор је више радова у међународним часописима категорија M20.

Током мастер и докторских студија учествовао је на више тренинг курсева у иностранству :

- "NORM4BUILDING" гамаспектрометријски курс на тему NORM у оквиру пројекта COST TU1301 (2017), у Пољској.
- Тренинг курс "Practical Introduction to Nuclear Forensics" који је организовала IAEA, у Центру за енергетска истраживања (KFKI) (2019), у Будимпешти, Мађарска.
- Тренинг курс "Introduction to Nuclear Forensics" организован од стране Европске комисије (EC-JRC) (2019), на Универзитету у Новом Саду.
- Тренинг курс "Regional Exercise on Forensic Examination of Evidence and Trace Amounts of Nuclear Material from Radiological Crime Scenes", организован под покровитељством IAEA (2021), у Москви, Русија.
- "Nuclear Forensics Technical Measurements training: Gamma spectrometry Course" организован од стране US DOE/NNSA, NSDD (2022), у Букурешту, Румунија.

Током докторских студија, Андреј је био ангажован као асистент на више предмета у оквиру извођења експерименталних и рачунских вежби на основним и мастер академским студијама. Истраживачке области којима се бави су гама спектрометрија, нуклеарна безбедност и нуклеарна форензика и радиоекологија.

Нови Сад, мај 2023.

---

Андреј Враничар

*Овај Образац чини саставни део докторске дисертације, односно докторског уметничког пројекта који се брани на Универзитету у Новом Саду. Попуњен Образац укоричити иза текста докторске дисертације, односно докторског уметничког пројекта.*

## ПЛАН ТРЕТМАНА ПОДАТАКА

<b>Назив пројекта/истраживања</b>
Развој и унапређење недеструктивних метода за анализу радиоактивног и нуклеарног материјала
<b>Назив институције/институција у оквиру којих се спроводи истраживање</b>
а) Универзитет у Новом Саду, Природно-математички факултет, Департман за физику, Нови Сад б) в)
<b>Назив програма у оквиру ког се реализује истраживање</b>
Докторске студије (доктор наука – физика), докторска дисертација
<b>1. Опис података</b>
<p><i>1.1 Врста студије</i></p> <p><i>Укратко описати тип студије у оквиру које се подаци прикупљају</i></p> <p>У овој докторској дисертацији обрађена је проблематика везана за анализу радиоактивног и нуклеарног материјала употребом гама спектрометрије као аналитичке технике а такође и технике којом би се потенцијално могли превазићи практични проблеми мерења и анализе поменутих материјала. Кроз целокупну докторску дисертацију дат је преглед нуклеарне форензике као научне дисциплине, као и њеног места у оквиру националне и међународне нуклеарне безбедности. Поред тога показано је на који начин се рутинска гама спектрометријска мерења могу искористити за мерење специфичних материјала за потребе нуклеарне форензике уз очување састава и облика самог узорка који се мери.</p>
<p>1.2 Врсте података</p> <p>а) <b><u>квантитативни</u></b></p> <p>б) <b><u>квалитативни</u></b></p>

### 1.3. Начин прикупљања података

- а) анкете, упитници, тестови
- б) клиничке процене, медицински записи, електронски здравствени записи
- в) генотипови: навести врсту \_\_\_\_\_
- г) административни подаци: навести врсту \_\_\_\_\_
- д) узорци ткива: навести врсту \_\_\_\_\_
- ђ) **снимци, фотографије: навести врсту** : гама спектри различитих радиоактивних и нуклеарних материјала
- е) **текст, навести врсту** секундарни извори података (научни радови, студије, књиге, докторске дисертације)
- ж) мапа, навести врсту \_\_\_\_\_
- з) остало: описати \_\_\_\_\_

### 1.3 Формат података, употребљене скале, количина података

#### 1.3.1 Употребљени софтвер и формат датотеке:

- а) Excel фајл, датотека .xlsl
- б) SPSS фајл, датотека \_\_\_\_\_
- в) PDF фајл, датотека .pdf
- д) Текст фајл, датотека .docx
- е) JPG фајл, датотека .jpg
- ф) Остало, датотека .орј

#### 1.3.2. Број записа (код квантитативних података)

- а) број варијабли - 15 различитих радиоактивних материјала ( укључујући и стандардне референтне материјале) и 9 стандардних референтних нуклеарних материјала.
- б) број мерења (испитаника, процена, снимака и сл.) - велики број мерења



### 1.3.3. Поновљена мерења

а) да

б) не

Уколико је одговор да, одговорити на следећа питања:

а) временски размак између поновљених мерења - један дан

б) варијабле које се више пута мере односе се на различите материјале коришћене за заштиту око стандардних референтних нуклеарних материјала

в) нове верзије фајлова који садрже поновљена мерења су именоване одговарајућим хемијским симболима елемената од које је направљена заштита и дебљином у милиметрима.

Напомене: /

*Да ли формати и софтвер омогућавају дељење и дугорочну валидност података?*

а) Да

б) *Не*

*Ако је одговор не, образложити \_\_\_\_\_*

\_\_\_\_\_

## 2. Прикупљање података

### 2.1 Методологија за прикупљање/генерисање података

#### 2.1.1. У оквиру ког истраживачког нацрта су подаци прикупљени?

а) **експеримент**, навести тип – лабораторијски експеримент

б) корелационо истраживање, навести тип /

ц) **анализа текста**, навести тип - научни радови, студије, књиге, докторске дисертације

д) остало, навести шта /

2.1.2 Навести врсте мерних инструмената или стандарде података специфичних за одређену научну дисциплину (ако постоје).

Полупроводнички германијумски детектор високе чистоће (HPGe детектор).

## 2.2 Квалитет података и стандарди

### 2.2.1. Третман недостајућих података

а) Да ли матрица садржи недостајуће податке? Да **Не**

Ако је одговор да, одговорити на следећа питања:

а) Колики је број недостајућих података? \_\_\_\_\_

б) Да ли се кориснику матрице препоручује замена недостајућих података? Да Не

в) Ако је одговор да, навести сугестије за третман замене недостајућих података

### 2.2.2. На који начин је контролисан квалитет података? Описати

Евалуацијом од стране менотра докторске дисертације, и статистичким прорачунима.

### 2.2.3. На који начин је извршена контрола уноса података у матрицу?

Визуелном опсервацијом праћеном когнитивним процесима, статистичком обрадом података и поређењем са стручном литературом .

## 3. Третман података и пратећа документација

3.1. Третман и чување података

3.1.1. Подаци ће бити депоновани у репозиторијум докторских дисертација Универзитета у Новом Саду.

3.1.2. URL адреса <https://cris.uns.ac.rs/searchDissertations.jsf>

3.1.3. DOI \_\_\_\_\_

3.1.4. Да ли ће подаци бити у отвореном приступу?

а) Да

б) Да, али после ембарга који ће трајати до \_\_\_\_\_

в) Не

Ако је одговор не, навести разлог \_\_\_\_\_

3.1.5. Подаци неће бити депоновани у репозиторијум, али ће бити чувани.

Образложење

---

---

3.2 Метаподаци и документација података

3.2.1. Који стандард за метаподатке ће бити примењен? \_\_\_\_\_

3.2.1. Навести метаподатке на основу којих су подаци депоновани у репозиторијум.

---

---

Ако је потребно, навести методе које се користе за преузимање података, аналитичке и процедуралне информације, њихово кодирање, детаљне описе варијабли, записа итд.

---

---

---

---

### 3.3 Стратегија и стандарди за чување података

3.3.1. До ког периода ће подаци бити чувани у репозиторијуму? Трајно архивирани.

3.3.2. Да ли ће подаци бити депоновани под шифром? Да **Не**

3.3.3. Да ли ће шифра бити доступна одређеном кругу истраживача? Да **Не**

3.3.4. Да ли се подаци морају уклонити из отвореног приступа после извесног времена?

Да **Не**

Образложити

---

---

## 4. Безбедност података и заштита поверљивих информација

Овај одељак МОРА бити попуњен ако ваши подаци укључују личне податке који се односе на учеснике у истраживању. За друга истраживања треба такође размотрити заштиту и сигурност података.

### 4.1 Формални стандарди за сигурност информација/података

Истраживачи који спроводе испитивања с људима морају да се придржавају Закона о заштити података о личности ([https://www.paragraf.rs/propisi/zakon\\_o\\_zastiti\\_podataka\\_o\\_licnosti.html](https://www.paragraf.rs/propisi/zakon_o_zastiti_podataka_o_licnosti.html)) и одговарајућег институционалног кодекса о академском интегритету.

4.1.2. Да ли је истраживање одобрено од стране етичке комисије? Да **Не**

Ако је одговор Да, навести датум и назив етичке комисије која је одобрила истраживање

---

4.1.2. Да ли подаци укључују личне податке учесника у истраживању? Да **Не**

Ако је одговор да, наведите на који начин сте осигурали поверљивост и сигурност информација везаних за испитанике:

- а) Подаци нису у отвореном приступу
- б) Подаци су анонимизирани
- ц) Остало, навести шта

---

---

## 5. Доступност података

5.1. Подаци ће бити

- а) **јавно доступни**
- б) доступни само уском кругу истраживача у одређеној научној области
- ц) затворени

Ако су подаци доступни само уском кругу истраживача, навести под којим условима могу да их користе:

---

---

Ако су подаци доступни само уском кругу истраживача, навести на који начин могу приступити подацима:

---

---

5.4. Навести лиценцу под којом ће прикупљени подаци бити архивирани.

- Ауторство

## 6. Улоге и одговорност

*6.1. Навести име и презиме и мејл адресу власника (аутора) података*

Андреј Враничар, [andrej.vranicar@df.uns.ac.rs](mailto:andrej.vranicar@df.uns.ac.rs)

*6.2. Навести име и презиме и мејл адресу особе која одржава матрицу с подацима*

Андреј Враничар, [andrej.vranicar@df.uns.ac.rs](mailto:andrej.vranicar@df.uns.ac.rs)

*6.3. Навести име и презиме и мејл адресу особе која омогућује приступ подацима другим истраживачима*

Андреј Враничар, [andrej.vranicar@df.uns.ac.rs](mailto:andrej.vranicar@df.uns.ac.rs)