

UNIVERZITET SINGIDUNUM  
BEOGRAD  
FAKULTET ZA PRIMENJENU EKOLOGIJU FUTURA

Sanaa Masod Abdulqader

**KARAKTERISTIKE PRIRODNE I  
ANTROPOGENO IZAZVANE  
RADIOAKTIVNOSTI STARE PLANINE I  
NJEN UTICAJ NA ŽIVOTNU SREDINU**

– doktorska disertacija –

Beograd, 2017.

Sanaa Masod Abdulqader

# **KARAKTERISTIKE PRIRODNE I ANTROPOGENO IZAZVANE RADIOAKTIVNOSTI STARE PLANINE I NJEN UTICAJ NA ŽIVOTNU SREDINU**

– doktorska disertacija –

Beograd, 2017.

## **KOMISIJA ZA OCENU I ODBRANU DOKTORSKE DISERTACIJE**

### **MENTOR:**

- **Dr Boris Vakanjac**, vanredni profesor, Fakultet za primenjenu ekologiju Futura, Univerzitet Singidunum Beograd

### **ČLANOVI KOMISIJE:**

- **Dr Dragan M. Marković**, redovni profesor, Fakultet za primenjenu ekologiju Futura, Univerzitet Singidunum Beograd
- **Dr Jovan Kovačević**, viši naučni saradnik Geološkog zavoda Srbije, Beograd

**DATUM JAVNE ODBRANE DOKTORSKE DISERTACIJE:**\_\_\_\_\_.

SINGIDUNUM UNIVERSITY  
BELGRADE  
FACULTY OF APPLIED ECOLOGY FUTURA

Sanaa Masod Abdulqader

**CHARACTERISTICS OF NATURAL AND  
ANTROGENICALLY DEVELOPED  
RADIOACTIVITY OF THE STARA PLANINA  
MT. AND ITS ENVIRONMENTAL IMPACT**

– DOCTORAL THESIS –

Belgrade, 2017.

## **Rezime**

Pojave radioaktivnosti na Staroj planini su poznate i proučavane. U ovom radu je dat sistematski prikaz karakterističnih geoloških jedinica nosioca prirodne radioaktivnosti poznatih prostora Stare Planine.

Ispitani su lokaliteti Mezdreje i Gabrovnice starih rudnika u okviru granita Janje, grafitičnih škriljaca Inovske serije paleozojske starosti i sedimentnih članova donjeg trijasa iz rejona Dojkinci - Jelovica.

Metodologija istraživanja se zasnivala na kabinetskim radovima koji su uključivali pregled literature i konsultacije sa stručnjacima koji su proučavali problematiku radioaktivnosti Stare planine, terenskim radovima sa uzorkovanjem i kratiranjem prostora od interesa, eksperimentalnim radovima merenjima hemijskog sastava i radioaktivnosti. Uspostavljena je GIS baza podataka. Na kraju sintezom podaci su inkorporirani u ovaj rad.

Pre prikaza problematike i rezultata ispitivanja dat je kratak pregled karakteristika pojavljivanja urana i radioaktivnosti u prirodi. Kako je to jako obimno i široko naučno područje date su informacije koje su od značaja za ovaj rad.

Dat je kartak pregled istraživanja urana na Staroj planini koji je započet još 1949 godine i trajao je do ranih devedesetih godina prošlog veka, sa konstatacijom da se danas vrše nesistematska ispitivanja radioaktivnosti uglavnom da ekološkog aspekta.

Područje Stare planine je definisano kao "Park prirode" u primeni je od decembra 1997 godine i na tom prostoru nalaze se neki od jedinstvenih primera geodiverziteta. Navećemo pored ostalih nekoliko karakterističnih primera geodiverziteta, sa osnovnim prikazom geološke građe: Babin Zub, Arbinje i Rosomački lonci.

Data je podela glavnih izvora radioaktivnosti na: 1. Granitne endogene - singenetske pojave i ležišta, 2. Metamorfogene - singenetske i 3. Sedimentne sa pojavama deponovanja i fluktuacije urana vodom u različitim tipovima sedimentnih stena nastalih u kontinentalnoj sredini, koje bi se mogle svrstati u epigenetske tipove. Kao i podela prostora od interesa na: A. intruzivno-metamorfi i B. sedimentni blok.

U okviru granita Janje ispitivani su karakteristični geološki predstavnici, nosioci prirodne radioaktivnosti. Prvenstveno su obrađeni primerci granita, host rock ležišta Mezdreja i Gabrovnica. Pored pomenutog, u okviru lokaliteta Mezdreja osim granita, ispitani su uzorci jalovišta (glinoviti materijal sa fragmentima kataklaziranog granita), silifikovane partije sa limonitiskim skramama i na kraju fragmenti kontaktnog gabroida sa krupnim (preko 1cm) K-feldspat.

Od grafitičnih škriljaca Inovske serije uzeto je više uzoraka, ovde su prikazani podaci za uzorak sa manje i više grafitičnog materijala. Merenjem sa Niton XRF goldd + je konstatovano da uzorak sa više grafitičnog materijala nosi veću količinu urana. Takođe uzorak sa više grafitičnog materijala je krhk i konstatovane su limonitske skrame po pravcima uškriljenja stene.

Observacione tačke u okviru sedimenata "šarene serije" se nalaze u oblasti definisanoj kao donji trijas. Poznati prostori sa povиšenim vrednostima na uran se nalaze u delu terena lokalnosti Dojkinci - Jelovica. Uzorci su uzeti iz dela koje bi se moglo nazvati pojave "Jelovica". Pojava se nalazi od granice rifeo-kambrijskih škriljaca pa do pojave sivih alevrolita prema ušću Jelovice sa Dojkinačkom rekom.

Vrednosti koncentracije U, Th, Pb, kao Sr, Rb i K su date u nivoima od - do jer su merenja bila ponavljana više puta da bi se u suštini dobio opseg kretanja koncentracija u sprašenim i nesprašenim uzorcima, a i da bi se proverilo da li su odstupanja velika. Pre prikaza rezulata hemijskih XRF analiza dati su rezultati merenja radiaktivnosti karakterističnih petroloških predstavnika, urađene u nuklearnom institutu Vinča.

Rezultati dobijeni merenjem radioaktivnosti uzoraka su iskorišćeni za izračunavanje sledećih parametara radijacionog rizika: ukupne apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu na visini 1 m od tla ( $D$ ,  $nGz$ ,  $h^{-1}$ ), radijumu ekvivalentne aktivnosti ( $Ra_{eq}$ ,  $Bq \ kg^{-1}$ ), indeksa spoljašnjeg hazarda ( $H_{ex}$ ) i godišnje efektivne doze spoljašnjeg zračenja ( $AED_{outdoor}$ ,  $\mu\text{Sv}$ ).

Konstatovano je da objekti nastali antropogenom aktivnoшću, haldišta rudnika Mezdreja i Gabrovnica imaju najviše vrednosti pomenutih parametara. Preporuka je da se objekati saniraju i zaštite od transporta radioaktivnog materijala u životnu sredinu. Takođe

konstatovano je da svi vodotoci, gde se slivaju ocedne vode prolaze u nekom trenutku kroz krečnjake, koji drastično obaraju rastvoreni uran i druge radionukleide iz vode, a pre ulazka u gusto naseljena mesta, što je u ovom slučaju olakšavajuća okolnost.

*Ključne reči:* granit, grafitični škriljac, crveni peščar, sivi alevrolit, radioaktivnost, životna sredina, Stara planina

## **Abstract**

The occurrences of radioactivity on Stara planina mt. are known and studied. In this doctoral dissertation a systematic presentation of the characteristic geological units of the carrier of the natural radioactivity of the known spaces in this object is given.

The sites of old mines - Mezdreya and Gabrovnica within the granite of Janje, graphite shist of the Innovo series of Palaeozoic age and sedimentary members of the early Triassic age from the Dojkinci - Jelovica region were examined.

The research methodology was based on cabinet works that included literature review and consultation with experts who studied the problems of radioactivity of Stara Planina, field work with sampling and mapping of space of interest, experimental work of chemical composition and radioactivity measurements. A GIS database has been established. Finally, the synthesis of data is incorporated into this dissertation.

Prior to presenting the issues and results of the exploration, a brief overview of the characteristics of the occurrence of uranium and radioactivity in nature was given. As this is a very extensive and broad scientific field, information is presented that is important for this work.

Brief information is given about survey of uranium on Stara planina mt., which started in 1949 and lasted until the early 1990s. It was noted that today no systematic testing of radioactivity is carried out, mainly to the ecological point of view.

The areas of Stara planina mt. are defined as the "Nature Park" has been in use since December 1997 and there are some of the unique examples of geodiversity in that area. In addition to the other few characteristic examples of geodiversity, we will mention the basic description of the geological structure: Babin Zub, Arbinje and Rosomacki lonci.

Classification of distribution of the main sources of radioactivity is given: 1. Granite endogenous - Syngenetic occurrences and deposits, 2. Metamorphic - syngenetic and 3. sedimentary originated by fluctuations of uranium with water in various types of sedimentary

rocks created in the continental environment, which could be classified in epigenetic types. Also area of interest is distinguished to: A. intrusive-metamorphic and B. sedimentary block.

Within the Janje granite, characteristic geological representatives, carriers of natural radioactivity, were explored. Primarily, samples of granite, host rock deposits of Mezdreya and Gabrovica were processed. In addition to the aforementioned, in the Mezdreya locality, besides the granite, samples of the tailings (clay material with fragments of cataclastic granite), silicified samples with limonite stains and at last at contact gabbroide and granite large (over 1 cm) K-feldspar were examined.

Samples were taken from graphite schist from Inovo series. Samples are with less and more graphite material. By measuring with Niton XRF goldd + it was found that the sample with more graphite material carries a larger amount of uranium. Also, a sample with more graphite material is fragile and with limonite stains developed along the lines of the schistosity.

Observation points within the sediments of the "colorful series" are located in the area defined as the early Triassic. Known areas with elevated values to uranium are located in the locality known as Dojkinci - Jelovica. Samples were taken from a part that could be called the "Jelovica" occurrence. The appearance is from the border of Riphean - Cambrian schist to the appearance of gray siltstone at direction to the mouth of Jelovicka with the Dojkinacka rivers.

The concentration values of U, Th, Pb, as Sr, Rb and K are given in the levels from - to, because the measurements were repeated several times, for reason to obtain the range of concentration of elements in the powdered and solid samples, and to check whether the deviations are large. Before the results of chemical XRF assays were presented, the results of the measurement of the radioactivity of typical petrologic representatives, carried out at the Vinča nuclear institute, were given.

The results obtained by measuring the radioactivity of the samples were used to calculate the following parameters of radiation risk: the total absorbed dose of gamma radiation in the air at a height of 1 m from the ground ( $D$ ,  $\text{nGz}, \text{h}^{-1}$ ), the radium of the equivalent activity ( $\text{Ra}_{\text{eq}}$ ,  $\text{Bq kg}^{-1}$ ) an external hazard index ( $H_{\text{ex}}$ ) and an annual effective dose of external radiation ( $\text{AED}_{\text{outdoor}}, \mu\text{Sv}$ ).

It was concluded that the objects created by anthropogenic activity, the tailing dumps of the Mezdreya and Gabrovica mines have the highest values of the mentioned parameters. It is recommended that facilities need to be rehabilitated and protected from transporting radioactive material to the environment. It was also found that all watercourses, where the leachate water pass through the limestone at some point, drastically precipitate dissolved uranium and other radionuclides from the water before entering the densely populated areas, which in this case is a mitigating circumstance.

*Key words:* granite, graphite schist, red sandstone, grey siltstone, radioactivity, environment, Stara planina mt.

# SADRŽAJ

UVODNA RAZMATRANJA	1
1. METODOLOGIJA ISTRAŽIVANJA	5
2. KRATAK PRIKAZ TIPOVA POJAVA I LEŽIŠTA URANA I NJEGOVIH GEOHEMIJSKIH KARAKTERISTIKA	10
3. PREGLED ISTRAŽIVANJA URANA NA PROSTORU JUGOSLAVIJE (1948-1990) I STARE PLANINE	19
4. LOKACIJA STARA PLANINA I PREGLEDNI PRIKAZ GEOLOGIJE	20
4.1     Stara Planina kao park prirode i objekti geodiverziteta	24
4.1.1   Babin Zub	24
4.1.2   Arbinje	25
4.1.3   Rosomački Lonci	26
4.2     Poznate pojave i ležišta urana Stare Planine	27
5. GEOLOŠKE I RADIMETRIJSKE KARAKTERISTIKE UZORAKA GRANITA JANJE, LOKALITETI - LEŽIŠTA URANA MEZDREJA I GABROVNICA	34
5.1     Ležište urana Mezdreja	37
5.2     Ležište urana Gabrovnica	41
6. GEOLOŠKE I RADIMETRIJSKE KARAKTERISTIKE UZORAKA IZ CRNIH GRAFITIČNIH ŠKRILJACA INOVSKЕ SERIJE	44
7. GEOLOŠKE I RADIMETRIJSKE KARAKTERISTIKE UZORAKA I "ŠARENE SERIJE"	49
8. DISKUSIJA I REZULTATI MERENJA RADIOAKTIVNOSTI I DISTRIBUCIJE POJEDINIH ELEMENATA U UZORCIMA	62
8.1     Rezultati i diskusija uzoraka magmatskih stena	63
8.2     Rezultati i diskusija analize uzoraka grafitičnih škriljaca	65
8.3     Rezultati i diskusija analize uzoraka sedimenata donjeg trijasa - "šarene serije"	67
8.4     Diskusija rezulata prikaza ispitivanja pratećih elemenata (Zr, Rb, W, Mo, Sn, Sc, Zn, Cu, As, Sb, Ba, Ni, Cr, V and Ti)	68
8.5     Tabelarni prikazi rezultata ispitivanja pratećih elemenata uzoraka vezanih za magmatske stene	70

8.6	Tabelarni prikazi rezultata ispitivanja pratećih elemenata uzoraka iz grafitičnih škriljaca Inovske serije	71
8.7	Tabelarni prikaz rezultata ispitivanja pratećih elemenata uzoraka sedimenata donje trijaske starosti	73
8.8	Diskusija rezulata distribucije pratećih elemenata u ispitivanim stenama	74
9.	<b>KARAKTERISTIKE PRIRODNE I ANTROPOGENO IZAZVANE RADIOAKTIVNOSTI LITOLOŠKIH PREDSTAVNIKA</b>	77
9.1	Ispitivanja parametra radiacionog rizika karakterističnih geoloških jedinica nosioca radioaktivnosti Stare planine	78
9.1.1	Specifične aktivnosti $^{226}\text{Ra}$ , $^{232}\text{Th}$ i $^{440}\text{K}$ i najvažniji parametri radiacionog rizika	78
9.1.2	Apsorbovanje doza gama zračenja	80
9.1.3	Radijumu ekvivalentna aktivnost	81
9.1.4	Indeks spoljašnjeg hazard	81
9.1.5	Godišnja efektivna doza spoljašnjeg zračenja	82
10	<b>ZAKLJUČNA RAZMATRANJA UTICAJA PRIRODNE I ANTROPOGENE RADIOAKTIVNOSTI KARAKTERISTIČNIH GEOLOŠKIH ČLANOVA STARE PLANINE NA ŽIVOTNU SREDINU</b>	85
	<b>LITERATURA</b>	90
	<b>IZJAVE O AUTORSTVU...</b>	96

## **UVODNA RAZMATRANJA**

Razlog izrade ovog rada je sistematski prikaz karakterističnih geoloških jedinica nosioca prirodne radioaktivnosti poznatih prostora Stare Planine. Ispitani su lokaliteti Mezdreje i Gabrovnice starih rudnika u okviru granita Janje, grafitičnih škriljaca Inovske serije paleozojske starosti i sedimentnih članova donjeg trijasa iz rejona Dojkinci - Jelovica. Ove pojave su poznate i do sada opisane u radovima, izveštajima i knjigama uglavnom sa aspekta istraživanja ležišta mineralnih sirovina, geneze pojava ili ekologije. Cilj ovog rada je prikaz karakteristika nosioca prirodne radioaktivnosti: pozicija, makroskopske i mikroskopske karakteristike pomenutih geoloških jedinica, hemijski sastav i radiokativnost konkretnog uzorka kako "in situ" u prirodi tako i izmereno u laboratorijskim uslovima. Pored toga na Staroj planini je tokom 60-tih godina 20 veka uran eksplorisan. Ulazi u rudnike su zarušeni ali je na površini ostao na jalovištima i haldištima materijal koji emituje radioaktivnost. Dakle kraće rečeno ispitano je šta je konkretna geološka jedinica i koje su njene petrološke, mineraloške, geohemijske i radiometrijske karakteristike i kako je nastala kao i koji nivoi radioaktivnosti i uticaja na životnu sredinu imaju prirodne i veštačke pojave (koncentracije iskopanog materijala). U radu su dati rezultati ispitivanja na prostoru Stare planine koji pripada republici Srbiji.

Istraživanje urana u svetu je danas vrlo "isplativa" aktivnost. Ogromna finansijska sredstva kao i ljudski resursi su uključeni u proces pronalaženja novih ležišta urana, u današnje vreme uglavnom zbog potrebe za energijom. Proces istraživanja, prerade i upotrebe urana je u suštini opasno po prirodnu sredinu a samim tim i po zdravlje ljudi, te ovaj rad ima i ekološki aspekt.

U februaru 2012, je izbrojano otprilike 435 nuklearnih reaktora koji rade u 30 zemalja uključujući i Tajvan, sa kombinovanim kapacitetom od preko 370 GWe. U 2008 je nuklearnim reaktorima proizvedeno 2600 milijardi kWh, tj. oko 15% svetske električne energije. Iako su se dogodile poznate havarije, Three Mile Island 1979, Černobil 1986 i

Fukušima Daići 2011, ne uočava se smanjenje aktvnosti vezanih za proizvodnju električne energije putem nuklearnih reaktora. Lični komentar autora ovog rada je da će doći vreme kada će se masovno „atomske bombe“ pretvarati u nuklearno gorivo za reaktore ukoliko se ne nađe nov i zadovoljavajući način proizvodnje električne energije Stulberg (2013).

Uran je prisutan u mnogim stenama, u koncentracijama od 2 do 4 milionita dela, i uobičajan je, zastupljen je u Zemljinoj kori kao kalaj, volfram i molibden. Takođe ga ima i u morskoj vodi i može da se dobije iz okeana.

Prirodni uran sadrži samo 0,72% urana 235, a ostalo je uglavnom uran 238 (99,2745%) i malo urana 234 (0,0055%). Povećanjem koncentracije urana 235 u prirodnom uranu, povećava se i verovatnoća da dođe do fisione reakcije pomoću termičkih neutrona, s obzirom da se uran 238 većinom raspada pomoću brzih neutrona Meija (2016) a uran 235 pomoću termičkih.

U svojoj čistoj formi uran je srebrno beli metal velike gustine, gušći i od olova. Može biti u raznim hemijskim jedinjenjima ali je u prirodi uglavnom kao oksid. Triuranium oksid ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ) je najstabilnija forma uran oksida Hammond (2000) i kao takva je najčešće prisutna u prirodi.

Smatra se da je uran formiran u eksploziji više supernovih u periodu od pre formiranja sunčevog sistema do pre 200 miliona godina (<http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/uranium-resources/the-cosmic-origins-of-uranium.aspx>). Iako nije uobičajan u našem Solarnom sistemu, njegov spor radioaktivni raspad je glavni izvor toplote unutar zemlje izazivajući tom toplotom konvekcijska kretanja i pomeranje kontinenata.

Širom sveta ležišta urana su uglavnom direktno ili indirektno vezana za uranom obogaćene felsične stene (poreklo urana su magmatske kisele i metamorfne stene), starosti od Arhaika do Mezozoika. Dobro su poznata sedimentna ležišta urana npr. tipa

"roll front" ali uran iz tih ležišta takođe vodi poreklo iz pomenutih "kiselih" magmatskih i metamorfnih stena.

Kada se magmatske tvorevine sa uranom izlože površini i površinskom raspadanju (dejstvu atmosferilja i egzogenim procesima) uranium jon ( $U^{4+}$ ) postaje brzo podložan oksidaciji i prelazi u jako rastvorni uranil  $UO_2^{6+}$  jon. Ovaj jon je rastvoran kako u kiselim tako i u alkalnim vodama. Uranil jon se u redukcionim sredinama može ponovo redukovati u nerastvorni  $U^{4+}$  jon. Razumevanje ovog procesa u realnom prostoru i geološkim sredinama je suština istraživanja urana Rutherford (2006).

Osnovna primena urana je korišćenje njegovog izotopa  $^{235}U$ , kao izvora toplotne energije u fisionim reaktorima instaliranim u električnim centralama i plovećim objektima širom sveta, osim ove uran se koristi u nesrećnoj ljudskoj aktivnosti, ratu, za proizvodnju atomskih i hidrogenskih bombi koje su napravljene u više hiljada komada u SAD, Ruskoj federaciji - nekadašnjem SSSR-u, Kini, Indiji, Pakistanu, Francuskoj, Engleskoj i verovatno još po negde. Neke zemlje kao npr. Francuska veliki možda najvećim delom dobijaju energiju iz nuklearnih termoelektrana.

Uran je globalna roba. Prodaje se i kupuje u vidu žutog kolača. Za razliku od drugih metala uranom se uglavnom ne trguje direktno na berzi (možda samo 15 do 20%). Najčešće se njime trguje dugoročnim ugovorima između kupca i prodavca (<http://www.energyfuels.com>). Tako da je dugoročna cena urana bolji pokazatelj nego trenutna cena na tržištu.

Cena za 1 funtu - žutog kolača (lb, funta iznosi 0.45359237 kg) po Kantoru Fitsdžeraldu (Cantor Fitzgerald) će u 2014 godini biti 43,25 US\$. Rejmond James (2014) predviđa za 2014 cenu od oko 45 US\$ za funtu žutog kolača a za 2015-tu godinu 56 US\$.

Žuti kolač (urania) je koncentrat urana dobijenog procesom luženja primarne uranove rude. Nerastvorljiv je u vodi, ima oštar miris, topi se na oko  $2880^{\circ}\text{C}$ . Osnovne komponente u žutom kolaču (yellow cake) su uranil hidroksid  $UO_2(OH)_2$ , uranil sulfat  $UO_2SO_4$ , natrijum uranat  $\text{Na}_2\text{O} \cdot (\text{UO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  (korišćen kao žuta boja u glazurama),

uranil peroksid  $\text{UO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$  i različiti uranovi oksidi: uranium dioksid -  $\text{UO}_2$ , uranium troksid ili uranil oksid  $\text{UO}_3$  i triuranium oktaoksid  $\text{U}_3\text{O}_8$  - u prirodi se nalazi kao maslinasto zeleno obojeni mineral pehblenda ([http://www.slate.com/articles/news\\_and\\_politics/explainer/2003/07/what\\_is\\_yellowcake Anyway.html](http://www.slate.com/articles/news_and_politics/explainer/2003/07/what_is_yellowcake Anyway.html)). Odnosi komponenti u smeši nisu apsolutni i mogu varirati u manjoj meri.

Na osnovu pomenutog prostor Stare Planine ostaje potencijalno zanimljiv i sa ekonomске strane.

U radu je prikazan i ekološki aspekt pojava radioaktivnosti na prostoru Stare Planine. Zna se da je prirodna radioaktivnost oduvek bila prisutna na planeti Zemlji. Kako su uranijum, torijum, radijum i radon povezani, u suštiniovi elementi su nestabilni. Emituju alfa (dva protona i dva neutrona), beta (elektron i pozitron visoke brzine) i gama (foton). Ove čestice i zraci izazivaju ekscitaciju - pomeranje elektronske orbite na viši nivo energije, ionizaciju - oslobođanje elektrona od atoma, i stvaranje radikala - gde atomi postižu dodatnu energiju i postanu nestabilni i visoko reaktivni. Radikali utiču na delove ćelija i DNK, što potencijalno dovodi do nepravilnog umnožavanja segmenata DNK tokom obnove ćelija, digestije enzima nukleotida i slično Miron (2010).

Poznato je da čestice i fotoni produkti radiaktivnog raspada mogu da prođu direktno kroz ćeliju bez uzrokovanja štete. Mogu da oštete ćeliju, ali se ćelija može oporaviti. Mogi da utiču na sposobnost ćelije da se ispravno reprodukuje, zatim eventualno da uzrokuje mutaciju. Može da ubije ćeliju. Smrt jedne ćelije nije zabrinjavajući, ali ako previše ćelija u jednom organu, kao što je jetra, umre istog trenutka, život organizma je sigurno pod znakom pitanja Stephen and Jakson (2002).

## **1. METODOLOGIJA ISTRAŽIVANJA**

Metodologija istraživanja se zasnivala na kabinetским radovima koji su uključivali pregled literature i konsultacije sa stručnjacima koji su proučavali problematiku radioaktivnosti Stare planine, terenskim radovima sa uzorkovanjem i kratiranjem prostora od interesa, laboratorijskim ispitivanjima, merenjima hemijskog sastava i radioaktivnosti. Uspostavljena je GIS baza podataka. Na kraju sintezom podaci su inkorporirani u ovaj rad.

1. Pripremljena su terenska ispitivanja na osnovu konsultacija sa stručnjacima Geozavoda Srbije i proučavanja literature uglavnom Gertik (2003) i Kovačević (2006). Za metodologiju ispitivanja pojave stena nosioca radioaktivnosti konsultovana je literatura Vakanjac i dr. 2014.
2. Uzorci su uzeti na terenu na unapred određenim lokacijama. Cilj je bio nalaženje reprezentativnih uzoraka stenskog materijala koji nose prirodnu radioaktivnost. Pozicije uzorkovanja su prikazane u UTM mreži zona 34N na elipsoidu WGS84, registrovane su uređajem Garmin GPSmap 60 Cx. Uzorci su bili težine od 2 do 2.5 kg.
3. Od uzoraka granita i škriljaca urađeni su petrološki preparati, a gde je konstatovana rudna mineralizacija urađeni su i rudni preparati. Uzorci su observirani makroskopski, mikroskopski u propuštenoj svetlosti na mikroskopu Leitz Ortholux Pol 2 u Geozavodu Srbije, a struktura građe uzorka je observirana na binokularnoj luti tipa Bresser.
4. Na licu mesta, radioaktivnost terena i observacionih tačaka su mereni sa Radiation Detector Explouranium 110 u cps (Slika 1), i uređajem Gammascout (Slika 2) u  $\mu\text{Sv}/\text{h}$ , rezultati su prikazani pri opisu ispitivanog uzorka. Vrednosti su konstatovane posle perioda od 10 minuta kada su stabilizovane na displeju i kada nisu bile prisutne oscilacije od  $\pm 10\%$ . U radu su ovi podaci dati u intervalima karakterističnim za ispitivane pozicije.



Slika 1. Uređaj GR Explouranium 110



Slika 2. Uređaj Gammascout

5. Hemijska analiza praha je urađena na XRF uređaju Niton XI3t goldd + (Slika 3) Građevinskog fakulteta, Univerziteta u Beogradu, svaki uzorak je analiziran 2 ili 3 puta, merenja su trajala od 180 do 190 approx. sekunde u Soil modu, sa proverama u Test allgeo. Uzorci su samleveni na dimenzije 70 µm. Pojedini uzorci su ispitivani bez sprašivanja, npr. ako je škriljac - po površini i preseku. Mereni su sleći elementi: Mo, Zr, Sr, U, Rb, Th, Pb, Au, Se, As, Hg, W, Cu, Ni, Co, Fe, Mn, Ba, Sb, Sn, Cd, Pd, Ag, Nb, Bi, Re, Ta, Hf, Cr, V, Ti, Ca, K, Sc, S, Cs i Te.
6. Radioaktivnost uzorka za  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  and  $^{137}\text{Cs}$  je merena u Nuklearnom Institutu Vinča. Homogenizovani uzorci su osušeni u peći na temperaturi od 105°C do konstatne težine, smešteni u plastične Marinelli posude, zapečanjeni i ostavljeni 4 nedelje da bi dostigli radioaktivni ekvilibrium HASL (1983). Svaki pripremljeni uzorak je stavljen u HPGe detektor i meren 90 000s. Gama fon laboratorije je određen pre merenja uzorka, merenjem praznih Marineli posuda pod identičnim uslovima. Vreme merenja pozadinskog zrašenja je bilo 240 000s. Ovo je kasnije oduzeto od svakog pojedinačnog merenja uzorka.

Merenje aktivnosti uzorka je sprovedeno upotrebom a koaksialnim poluprovodničkim detektorom visoke rezolucije sa kristalom germanijuma visoke čistoće *HPGe ORTEC*

*GEM 50* (Slika 4), sa 50% relativnom efikasnošću na 1332 keV. Detektor je zaštićen olovom da bi se smanjio uticaj pozadinskog zračenja koliko je god to moguće.

Kalibracija energije i efikasnosti je urađena pre merenja. Kalibracioni izvor zrašenja je bio komercijalno dostupni gama standard, sa izmešanim radionukleidima tipa MBSS 2 u Marineli geometriji od 0,5 l, razvijen od *Inspectorate for Ionizing Radiation Czech Metrological Institute*, izotopima  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ , and  $^{60}\text{Co}$ . Energija gama linija ovih radionukleida je veoma pogodna za kalibraciju i pokriva oblasti npr. od 30 do 3000 keV. Kontrola kvaliteta merenja je sprovedena na dnevnom nivou merenjem efikasnosti i energetskom kalibracijom, ponavljanjem merenja svakog uzorka.

Korekcije radioaktivnog raspada, i vrednosti pozadinskog zračenja, kao i analiza rezultata je sprovedena upotrebnom namenskog softverskog paketa *ORTEC Gamma Vision-32 Model A66-B32 Version 6.01*.

Aktivnost  $^{226}\text{Ra}$  je određena preko njegovih produkata raspadanja:  $^{214}\text{Pb}$  (295,22keV, 351,93 keV) i  $^{214}\text{Bi}$  (609,31 keV, 1120,29 keV). U slučaju  $^{232}\text{Th}$  dva foto-pika  $^{228}\text{Ac}$  (911,20 i 698,97keV) su upotrebљena. Aktivnosti  $^{40}\text{K}$  i  $^{137}\text{Cs}$  su uizvedene preko 1460,83 keV i 661,66 keV gama linija respektivno.

Ya sve foto-pikove minimalna vrednost detektovane aktivnosti (MDA) je sračunata preko formule:

$$MDA = \frac{2.73 + 3.29 \cdot \sqrt{R_{\text{bkg}} \cdot t_a \cdot \left(1 + \frac{t_a}{t_b}\right)}}{t_a \cdot \varepsilon \cdot \rho_\gamma \cdot m}$$

gde je  $R_{\text{a}_{kg}}$  je stopa zračenja pozadine pod određenim foto energetskim pikovima u spektru pozadine,  $t_b$  i  $t_a$  su vremena poluraspara za pozadinsko zračenje, a merenje uzorka,  $\varepsilon$  je efikasnost detektora za energiju od interesa,  $\rho_\gamma$  je verovatnoća emisije specifičnog foto pika, a  $m$  je masa uzorka.

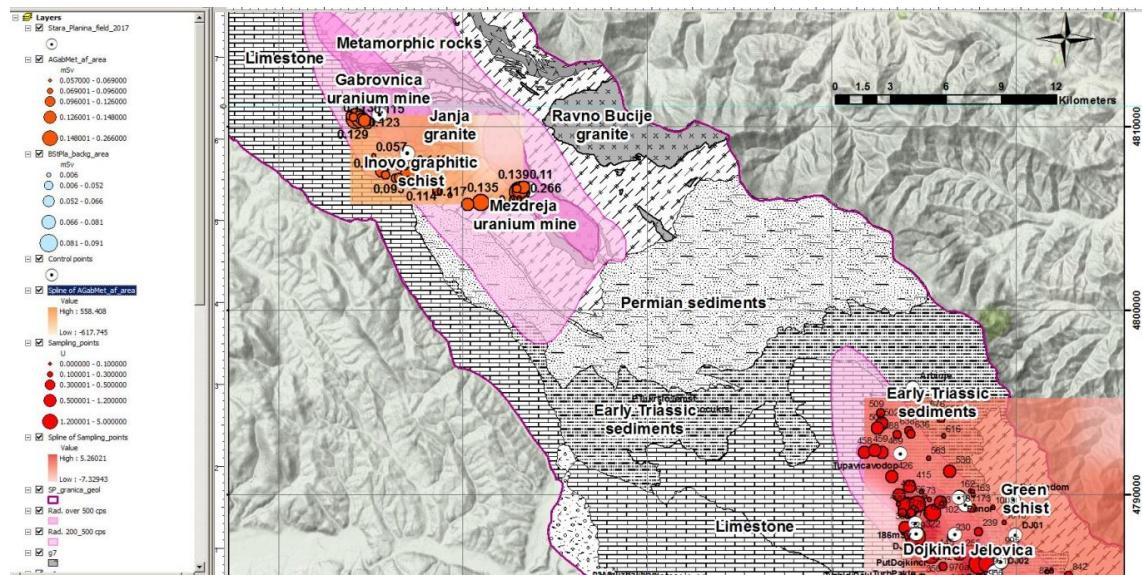


Slika 3. Uređaj Niton XL3t goldd +



Slika 4. Gama spektrometar ORTEC GEM 50 sistem, Javno Preduzeće „Nuclear Facilities of Serbia”

7. Uspostavljena je GIS baza podataka sa: 1. Rasterski materijalom koji se uglavnom sastoji od prikupljenih nereferenciranih i referenciranih karata; vektorskog materijala - generisanih "shape" fajlova tačaka i poligona od interesa kao i generisanih "spline" površina prikaza interpolacije različitih vrednosti kao što su radioaktivnost prikazana u  $\mu\text{Sv}/\text{h}$  ili npr. koncentracije urana. Takođe, radi jasnijeg prikaza urađene su pregledne šematske geološke karte ispitivanog područija (Shape\_geol\_units). Uz opservacione tačke po pravilima GIS metodologije nalaze se folderi sa fotografijama objekata opisanih u ovom radu (Slika 5).



## **2. KRATAK PRIKAZ TIPOVA POJAVA I LEŽIŠTA URANA I NJEGOVIH GEOHEMIJSKIH KARAKTERISTIKA**

Klasifikacije ležišta urana ima mnogo, pomenuli bi klasifikacije: IAEA (2009), Jelenković i Serafimovski (1997), Rutherford (2006), World Nuclear Assotiation iz Februara 2015. i drugi.

Naveli bi na ovom mestu kratak opis ležišta po klasifikaciji Rutherford (2006a) iz razloga što daje jednostavan opis sa kratkim aspektima geneze.

- Primarna magmatska, ležišta urana, smeštena u okviru vulkanskih stena i skarnova su uglavnom malih dimenzija i troškovi eksploatacije su visoki (mada je ležište smešteno u alaskitu lokaliteta Rossing) u jugozapadnoj Africi veliko. Mongolija npr. ima najmanje dva značajna vulkanogena ležišta, Dornod i Gurvan Bulak ali do sada nisu ekonomski determinisana. Australija takođe ima dva ležišta u okviru vulkanogenih ležišta Maureen i Ben Lomond koja su veoma slična pomenutim u Mongoliji, Rutherford (2006b). Magmatske stene stene kiselog sastava, grniti ili vulkanske sa dosta vulkanskog stakla (lave, tufovi, breče i td), posebno one koje su obogaćene fluoritom ili stene obogaćene organskim materijalom i karbonatima, često imaju visok sadržaj urana i dobre su izvornih (matične) stena urana. Takođe, starija ležišta, deblje kore raspadanja i erodovani granitni tereni predstavljaju dobre izvore primarnog U. To su praktično lokacije gde granitni plutoniti obogaćeni liskunima postaju otkriveni ali plitko erodovani. Uranijum teži da se sakuplja (koncentriše) u poslednjim fazama kristalizacije ovakvih stena i ove nakupine su u gornjem delovima ovih tela sa zaštitnom zonom odmah iznad njih. Značajnija roll front ležišta u USA i mnoga francuska sedimentna ležišta su sa uranom koji vodi poreklo iz ovakvih stena. Erozija uranijumom anomalnih granita i gnajseva obogaćenim liskunima su osnovni izvor koji je najverovatnije izvor za ležišta Pine Creek Geosyncline, Ferguson et al. (1979).
- Sedimentna, ležišta nastala raspadanjem i pretaložavanjem materijala, a u vezi sa mobilizacijom Fe i redox odnosima. Postoje relativno velike količine Fe u

mineralima gabroida Zaglavka i njihovo dugotrajno izluživanje i pretaložavanje urana u vlažnoj i toploj klimi u sedimente P i T1. Pod vlažnim uslovima (padavine  $> 1600$  mm/godišnje), sa visokim nivoom podzemnih voda, srednjih do visokih reljefnih oblika i dobrih drenažnih uslova, površinska raspadanja su veoma aktivna i duboki profili se formiraju u stabilnim predelima.

Za vreme površinskog raspadanja stena, jasne Eh-pH zone su razvijene u profilima. Tipično, Eh raste ka površini uz raspoloživu vodu i kiseonik iz atmosfere, i dominantni minerali površinskog raspadanja uzimaju mesto kontrolora pH. Sa izuzetkom od ovih profila koji postaju lokalno vodom saturisani (npr paleokanali, slana jezera), gornji profili su generalno oksidirajućeg karaktera. U nižim profilima, ispod nivoa podzemnih voda, nepotpuna saturacija i ograničeno kretanje podzemnih voda limitira prisustvo kiseonika, i okruženje površinskog raspadanja je sačuvalo poslednju slabu redukciju, iz razloga što je raspoloživi rastvorljivi kiseonik utrošen tokom raspadanja strarajući sekundarne minerale. Ova nedostatak raspoloživog kiseonika graničena je dubinom površinski raspadnutog profila.

Baza površinski raspadnutog profila je "front" raspadanja. Ovaj front je generalno nepravilan iz razloga što površinsko raspadanje prvobitno pristupa nenapadnutom bedroku duž frakturna Rutherford (2006). Potom, bazalni regolitni horizont obično sadrži jezgra sveže stene u delimično raspadnutim stenama i koje su prikazane kao sapstene. Viši preseci sapstena su gde je proizvoljni maksimum od 20% primarnih minerala podložnih raspadanju raspadnuto. Sa daljim raspadanjem, pod sve većim oksidacionim uslovima, primarni minerali podložni raspadanju se postepeno ramenjuju sa sekundarnim mineralima, koji stite (zadržavaju) primarnu strukturu prvobitne (matične) stene. Ove stene zapreminske raspadanja su prikazane kao saproliti (izvedena reč od latinske reči *sapurus* u prevodu pokvaren, loš).

Elementi koji formiraju nerastvorne okside u njihovom oksidacionom stanju su najjače napadnuti promenama blizu površinskih redoks uslova. Pod sniženim uslovima u donjem delu saprolitskog profila, gvožđe, raspadnuto od primarnih minerala sa gvožđem, je rastvoran kao fero jon  $\text{Fe}^{2+}$ . U gornjim profilima, okruženje postaje sve

više oksidaciono, potpomognuto povećanjem brzina podzemnih voda. Najzad, fero jon  $\text{Fe}^{2+}$  postaje nestabilan i preobraćuje se u nerastvoran feri jon  $\text{Fe}^{3+}$ . Izuzetno pri veoma niskim vrednostima pH, on hidrolizuje i obara se kao karakterističan crveni, braon i žut oksid gvožđa Lawrance (1991).

Merenjem na raznim lokacijama razvijenih crvenih permskih peščara, npr. selo Topli Do konstatovana je nešto povišena radioaktivnost (do 0.3  $\mu\text{Sv}/\text{h}$ ).

Ova reakcija prouzokuje kisele uslove (pH je oko 2) koji su idealni za obaranje getita. nastanak kiseline u redoks frontu povećava rastvorljivost katjona (npr. magnezijuma i kalcijuma) a potom, potpomognut površinskim raspadanjem, naročito mineralnih sadržaja pojedinih tipova, kao što su smektitne gline. Sa porastom raspadanja i prisustvom vode i kiseonika, ubrzava se pad redoks fronta i kiselog izluživanja gornjih saprolitskih osnova glina.

Tokom površinskog raspadanja uran ima sličnu mobilnost kao molibden i arsen, i više je mobilan od ostalih metala kao što su bakar, nikl i olovo, tako da uobičajeno je da formira podzemnim vodama anomalije Rose (1994).

- Ankonformna (unconformity sourced – u suštini prekrivena) ležišta su proterozojske starosti i razvijena su u asocijaciji sa važnjim strukturnim dislokacijama starih kratonskih blokova. Ovo su najznačajnija ležišta sa ekonomskog stanovišta vezana za oblasti Athabasca, Kanade i Aligator river u seevrnoj Australiji.
- Slojevita ležišta smeštena (često ali ne i uvek) u okviru sedimenata bogatih organskim materijama. Starosti su od srednje-gornjeg paleozoika pa do najmlađih (često mlađih od gornjeg mezozoika) smeštenih duž kontinentalnih kratonskih margina (delta sistem) i intra kratonskim rift basenima u oblastima erodovanih granita i vulkanita. Kazakstan je poznat i značajnan primer. Konstatovali smo organski materijal kod sivih alevrolita donje trijaske starosti u rejoni Jelovice.
- Ležišta formirana u roll frontovima karakteristična su za aridna kontinentalna okruženja. Ona su generalno vezana za površinski raspadnute tufove ili ostale

uranijumom bogate izvore u primarnim stenama a na izdancima koji su izloženi intenzivnom površinskom raspadanju i oksidaciji a terciarne su starosti i mlađe. Javlaju su u klasterima. Sama ležišta su smeštena u propusnim i poroznim peščarima i konglomeratima gde se obaraju rastvori sa uranom iz raspadnutih primarnih stena.

- Ležišta smeštena u okviru slanih ili alkalnih jezerskih sedimenata i u okviru drenažnih kanala u aridnim kratonskim oblastima. Ovo su uglavnom tercijerne do recentne starosti i mogu biti u asocijaciji sa kalkritnim akumulacijama. Ovo može biti odraz visoke koncentracije katjona (soli) u podzemnim vodama.
- Ležišta smeštena u lateritskim i površinskim korama raspadanja. Ona su uglavnom tecijerne pa do današnje starosti, ali registrovana su i starija. Mogu imati visoku koncentraciju U ali po veličini su uglavnom malih razmera. Fromirana su sekundarnim obogaćenjem urana i uranonosnim sedimentima i drugih produkata raspadanja.
- Današnja, najmlađa ležišta urana (starosti manje od milion godina i mnoga pre poslednjeg ledenog doba). Smeštena su u akumulacijama raspadnutog urana od glacijalnih do ležišta i mlađih regolitnih precipitata (zasićenih rastvora) u često organski bogatim uslovima u jezerima i obalama jezera, močvara i terena sa tresetnim barama i duž trenutnih drenažnih kanala.

Pored njegove moći da formira širok niz mineralnih kompleksa, druga i mnog značajnija karakteristika urana je upadljiva težnja kiseoniku. Ne može se naći u prirodi kao čist metal, ili kao sulfat, selenid ili telurid. Uvek je u asocijaciji sa kiseonikim na neki načina (npr oksid, hidroksid, silikat, fosfat, molibdenit, vanadit, karbonat, itd).

U prirodnom okruženju uranovi joni su u stanju +4 i +6 tj.  $U^{+4}$  i  $(UO_2)^{2+}$  Ervanne (2004), u početku poznat kao uran jon a kasnije kao uranil jon. Oba jona značajno podležu hidrolizi.

Složeni joni  $U^{+4}$  i  $(UO_2)^{2+}$  se odmah jedine sa karbonatima, hloridima, sulfatima, nitratima, fosfatima, arsenatima, vanadatima, silikatima, citratim, tiocijanatom, o mnogim drugim organskim i kompeksnim anjonima kao što su kod humusnih kiselina Wang (1984). Ovo daje veoma širok dijapazon hemijski kompleksnih minerala, posebno u oksidacionim i supergenim zonama raspadanja, i u organski bogatim okruženjima, najčešće prividno stabilizovanih bilo molekularnom vodom ili hidrokil jonom. Visok sadržaj anjona kiseonika urana kod V, Mo, P i  $CO_3$  itd., teži da bude rastvorljiv u vodi, prema tome znači da pomenuti kompleksni joni urana  $U^{+6}$  uranil jona su mnogo više pokretljivi u površinskim vodama u odnosu na redukcionu  $U^{+4}$  uranijum jon.

Najčešći primarni minerali su uraninit i pehblenda, kofinit (Si), branierit (Ti-oksid) i davedit (Ti-retke zemlje-oksid), svi sadrže U u četvorovalentnom stanju. Poznato je oko sto i više sekundarnih ili supergenih ( $6^+$ ) minerala gde je najčešći gumit (uranov analog za getit) ili smeše sekundarnih hidratisanih oxide itd., šrekingerit (Na, Ca, S, F), autinit (Ca, P), torbenit (Cu, P), karnotit (K, V), tjujamunit (Ca, V), uranofan (Ca, Si) itd.

Uran ima sposobnost da se kreće u okruženju i sakuplja na različitim mestima u skladu sa njegovim geochemijskim karakteristikama. Rastvaranje i migracija urana od izvorne stene, njegovo obaranje i kasnije koncentrisanje u formu ležišta nekog tipa su veoma zavisna od hemizma rastvaranja urana i osnov razumevanja ovoga je osnova razvoja konceptualnih istražnih modela i interpretacije podataka istraživanja.

Uran, kao i gvožđe i bakar, je element koji pokazuje primetne promene iz jednog oksidacionog stanja u drugo u različitim geološkim okruženjima. Uran u njegova dva najniža oksidaciona stanja ( $U^{2+}$ ,  $U^{3+}$ ) su jak redukcioni agens koji može oslobođiti vodonik iz vode, i prisustvo u +5 stanju u vodi je nepostojano u odnosu na stanja +4 i +6. Prelaz iz +4 u +6 stanje ima redukcionu karaktera u prostorima normalnog geološkog okruženja, tako da može očekivati nalaženje jedinjenja ova dva oksidaciona stanja u prirodi. Kao element, uran je oko 1000 puta više prisutniji od zlata Mishra et al. (2013), oko pet do deset puta prisutaniji nego bakar, olovo i cink, a kao kristalan njegov sadržaj pada na nivo od 1 do 10 ppm u zavisnosti od tipa stene.

Geologija ležišta urana temeljno odražava evoluciju Zemlje od vremena kada je ležište formirano kroz ranije periode gde je kora ohlađena i zadebljana ali atmosfera je bila bez kiseonika Martin (2013) (2.6 do 2.2 mln. god.), kroz periode oksidacije i evolucije života (2.2 do 0.4 mln. god.), do razvića kopnenih biljaka i životinja i debelih kontinentalnih sedimentnih nasлага (400 mil. god. do sada). Geohemijski ciklus urana se menjao u vremenu a ovo je imalo uticaja na nastanak različitih tipa ležišta urana nastalih kroz vreme (ležišta različite starosti).

Najstarija poznata ležišta urana nastala tokom perioda 2.6 do 2.2 mln. god., u periodu kada je atmosfera u suštini bila bez kiseonika i uran je imao sposobnost da bude transportovan kao klastičan izdrobljen materijal, i bio istaloživan usput sa zlatom i piritom u kvarcnopeskovitim konglomeratima oblasti Witwatersrand u Južnoj Africi i oblasti Blind River - Elliot Lake i Kanadi (mada oko njih ima nekih neslaganja u novijoj literaturi). Ova ležišta nastala upravo pre nastanka široko rasprostranjenih slojevitih formacija gvožđa, prvih indikatora porasta oksidacije u atmosferi (oksidacija fero jona u rastvorima do nerastvorljivih fera jona).

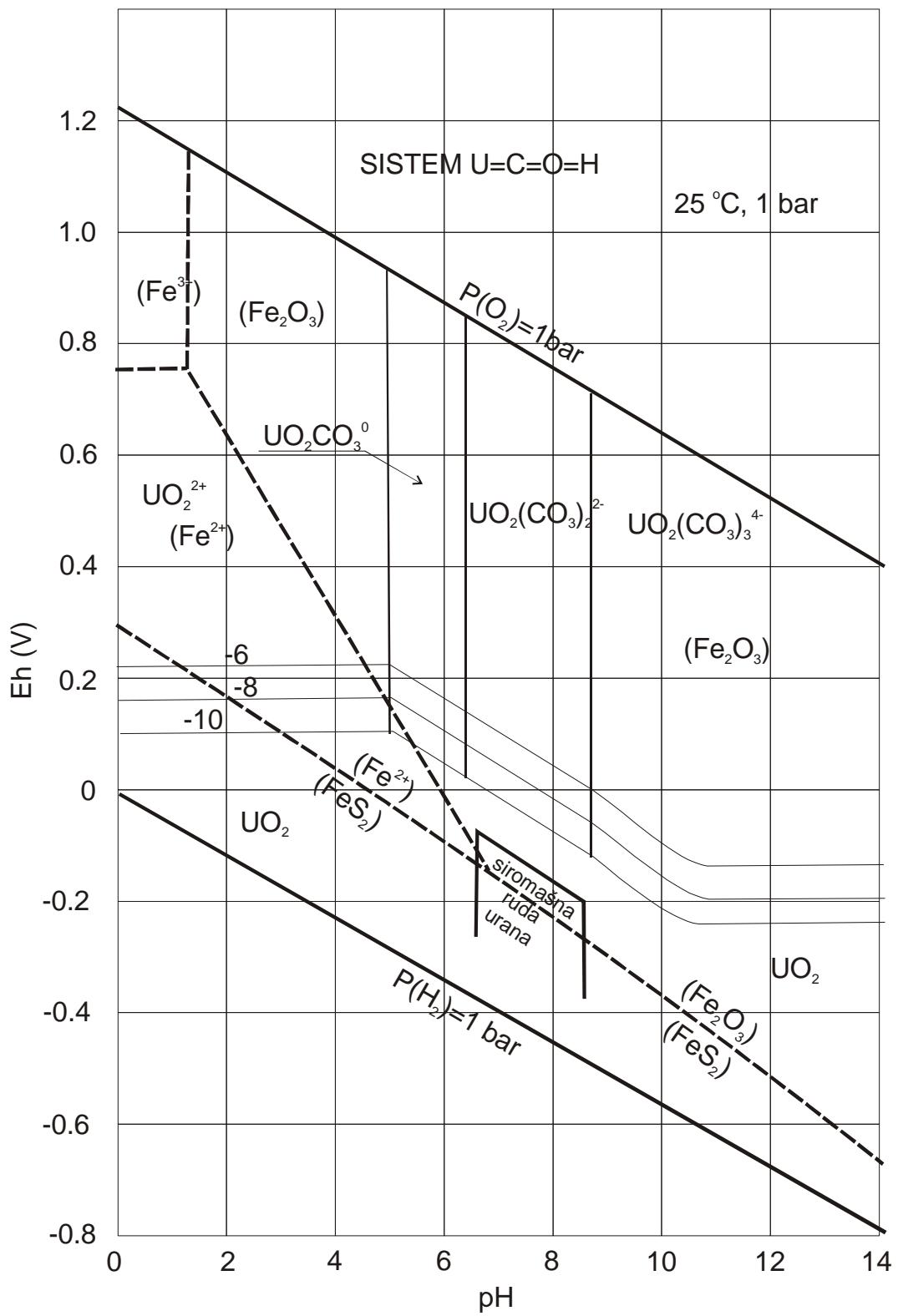
Porast oksidacije u atmosferi Martin (2013) je jedna od najvažnijih faktora razvoja okruženja za formiranje ekomonski značajnih tipa ankonformiti (prekrivenih) ležišta urana tokom perioda od 2.2 do 0.4 miliardi godina. Ova ležišta se istražuju zbog njihovog velikog kvaliteta i produktivnosti (tonaže, kvantiteta). Takođe, ovde su važne i morske koncentracije urana u sedimentima, naročito u plitkim vodama karbonitisanim pelitsko - karbonatnim kvarcitima, hemijski sedimentima i fosfatnim koncentracijama gde je povećana aktivnost živih bića poslužila da formira okruženje za obaranje urana. Tokom ovog perioda došlo je do najintenzivnijeg izluživanja urana na Zemljinoj površini, dostupnog za dalju mobilizaciju do formi današnjih rudnih ležišta.

Od oko 400 Mgod. kada je biljni svet postao obilan na kontinentalnom delu, stvaraju se područja akumulacija izvora urana u okviru zemljишno površinskih basena gde truljenje biljnog materijala stvara geohemijski redukcionie uslove u okruženju pogodne za obaranje (istaložavanje) urana iz podzemnih voda. Ovaj proces koncentrisanja urana je aktivан и до данашnjih dana, ležišta dobrog kvaliteta и lokalne akumulacije urana.

Dva faktora igraju najvažniju ulogu u potencijalnoj oksidaciji, Eh i pH, u tečnim sistemima. Eh vrednost koja omogućuje obaranje urana je bliska nuli za vrednosti pH bliske neturalim sredinama. Za praktične svrhe, ovo, za potrebe terenskih radova, istraživanja i eksploatacije može biti shvaćeno kao približno dno nivoa (najdublji nivoi) podzemnih voda, zona gde žućkasti, crveni i braon oksidi gvožđa se menjaju u zelene i sive Vakanjac et al. (2014), što se najjasnije vid u bušotinama kroz koru raspadanja (površinske slojeve). Zaključak koji se može izvući iz ovih istraživanja ili rezultata je model da normalno raspadnute stene ili zemljište teže postanu oni gde se obara bilo kakav slobodni uran (ovo je drugačije nego kad U je vezan u rezistentnim mineralima kao što su cirkon ili monacit itd.).

Ostali faktori kontrole su tipovi matičnih stena i njhove karakteristike raspadanja, geohemija podzemnih voda i prisustvo ostalih tipova pretaložavanja ili kompleksnih jona urana kao što su  $HVO_4^{2-}$ ,  $PO_4^{3-}$ ,  $AsO_4^{3-}$ ,  $CO_3^{2-}$ , ili sicijum, alumijum, hidrati gvožđa i oksidi mangana i posle 400 Mgod. zemljišno površinsko okuženje sa organskom materijom Kogler et al. (1983). Klimatske karakteristike su takođe značajne. Uran je mnogo više mobilan u semi-aridnim i aridnim regionima nego u oblastima blago zasićenih vodom. Ovo je rezultat dublje kore raspadanja (oksidacija) i nedostatak organskih materija da veže uran u aridnim regionima.

U jako alkalnim uslovima karbonatni uranijum kompleksi su rastvorljivi i stabilani na dosta nižim Eh vrednostima. Obaranje ili rastvaranje različitih karbonatnih, sulfatnih, posfatnih, vanaditnih ili drugih kompleksa uranil jona, je dosta zavisno od gore priezentovanih (pomenutih) tipova jona. Prisustvo jona metala u pozitivnom ( $^+$ ) stanju kao što su natrijum, kalijum, kalcijum, magnezijum, bakar i gvožđe ograničavaju rastvorljivost rastvorenog uranil kompleksa i težnju formiranja nakupina kompleksa uranila. Odnosi za rastvorljivost ovih minerala u prirodnim uslovima u granicama opadanja rastvorljivost je karbonati > sulfati > fosfati i arseniti > silikati > vanaditi.



Slika 6. Dijagram Eh-pH za deo sistema U-C-O-H sa delovima sistema Fe-S-O. Predpostavljene aktivnosti za rastvore su  $U = 10^{-6, -8, -10, -H}$ ,  $C = 10^{-3}$ ,  $Fe = 10^{-6}$ ,  $S = 10^{-3}$ . Vezano za oblast rudnika urana iz Brookins (1988)

Ako podzemne vode nose sa sobom rastvorene uranijumove koncentracije u slanim jezerima ili zatvorenim drenažnim kanalima sa odsustvom karbonata, sulfata ili nekih drugih gore pomenutih, ležišta urana se mogu formirati pod neutralnim i oksidacionim uslova. Primeri ovog tipa su oblast Yeelirrie, Needham (2009) i asocijacija kalritno-karnotiska ležišta u oblasti Yilgarn, Anand i Paine (2007).

Uranijum može takođe biti oboren iz rastvora putem asorpcije ili pretaložavanjem uz pomoć amorfognog silicijuma, glina, zeolita i hidroksidima gvožđa i oksido-redukcijom. Premda retka, na nivou rudnih nalažišta ovaj tip asocijacija je poznat, kao primer u Japanu.

Uran lako obrazuje hemijska jedinjenja sa kompleksnim organskim jedinjenjima koja teže da se oksiduju. U ovom smislu, jak oksifilni karakter, uran je istovetan i kod, neorganskog i kod organskog hemizma. Mnoga od organskih jedinjenja imaju karboksilnu (-COOH), karbonilnu (-COO) i hidroksilnu (-OH) funkcionalnu grupu, i mnoge pripadaju široko rasprostranjenim huminskim i fulvinskim kiselinama, familije jedinjenja nastalih od raspadnutog organskog biljnog materijala u npr. humusu Wang (1984). Uranijum vezan za organske materije kao što je slučaj u močvarama i barama, se često lako oslobađa povećanjem temperature do 80 - 100 °C. Kako god, on može postati značajno povećan što je konstatovano (izmereno) u ugljevima i javlja se kao stepen starosti u funkciji hemijskih procesa i vremena. Pomenuto je od značaja za koncentracije U u grafitičnim škriljcima Inovske serije, gde organski materijal u suštini sličnim mehanizmima apsorbuje uran iz okruženja.

### **3. PREGLED ISTRAŽIVANJA URANA NA PROSTORU JUGOSLAVIJE (1948-1990) I STARE PLANINE**

Prvi podaci o prirodoj radioaktivnosti tadašnje SFRJ u " Geoinstitutu " su počeli da se prikupljaju 1948. godine. Od ogromnog broja podataka o radioaktivnosti stena, voda (podzemnih i površinskih), tla, aluviona (mladih rečnih sedimenata) i vazduha, velika većina je u izvornom ili u nekom interpretiranom obliku (kao statistički podatak) sačuvana u formi godišnjih ili periodičnih izveštaja o geološkim istraživanjima, studija stručnih radova, publikacija itd. Do njih se može doći (sačuvani su u fondu stručne dokumentacije Geoinstituta - tj. današnjem Gezavodu Srbije, ali problem je njihova unifikacija i pretvaranje u važeće jedinice jer su se one u navedenom vremenskom periodu nekoliko puta menjane.

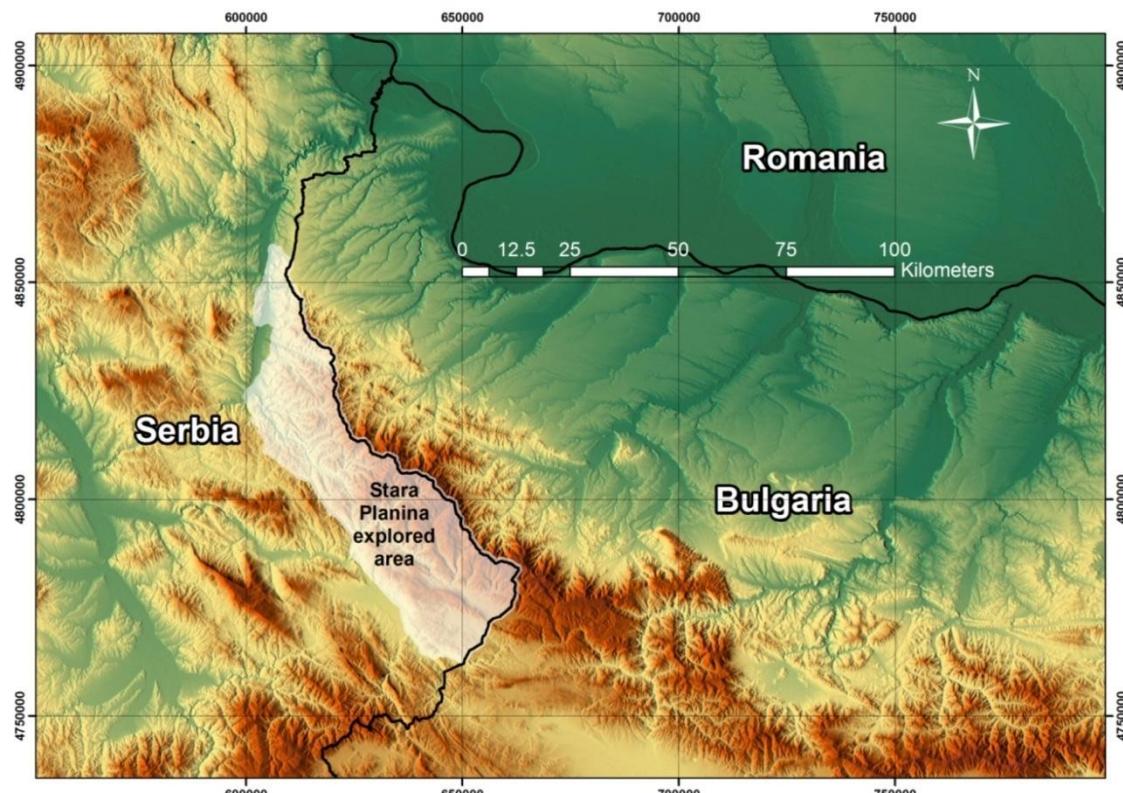
Prospekcijom i istraživanjem nuklearnih mineralnih sirovina različitog stepena detaljnosti u Srbiji su zahvaćene velike površine a prikupljeni broj podataka o radioaktivnosti je reda nekoliko stotina hiljada . Najintenzivnija istraživanja do sada su vršena u Šumadiji (rejon planine Bukulje), na Staroj Planini i području planine Cera i Iverka gde su definisana ležišta urana i izvršen proračun rezervi.

Ispitivanja urana na prostoru Stare Planine počela su 1949 godine. Od 1949 do 1956 vrši se intenzivno šlihovska prospekcija i pešačka radiometrijska prospekcija. Urađene su geološke karte 1:50000, a u zonama Aldine reke i Mezdreje geološke karte u razmeri 1:10000. Krajem 1956 se istražuju žična tela na lokalitetu Mezdreja. Od 1957 do 1966 izrađena je geološko-strukturalna karta granita Janje, ispitivanja u okviru šarene serije, oreoli rasejavanja Mezdreje i geološko-rudarski radovi na lokalitetima Gabrovica i Mezdreja. Od ranih 70\_tih do 1978 dolazi do zastoja u istraživanju. Od 1978 do ranih 90\_tih se uglavnom rade istraživanja na pordručju "šarene serije" kao i ispitivanja razlovnih zona granita Janje.

Od 2000 do danas vrše se nesistematska tematska ispitivanja uglavnom u smislu ispitivanja radioaktivnosti i distribucije U, Th, K i drugih elemenata na prostoru pojedinih lokaliteta Stare Planine i uticaja na životnu sredinu.

## 4. LOKACIJA STARA PLANINA I PREGLEDNI PRIKAZ GEOLOGIJE

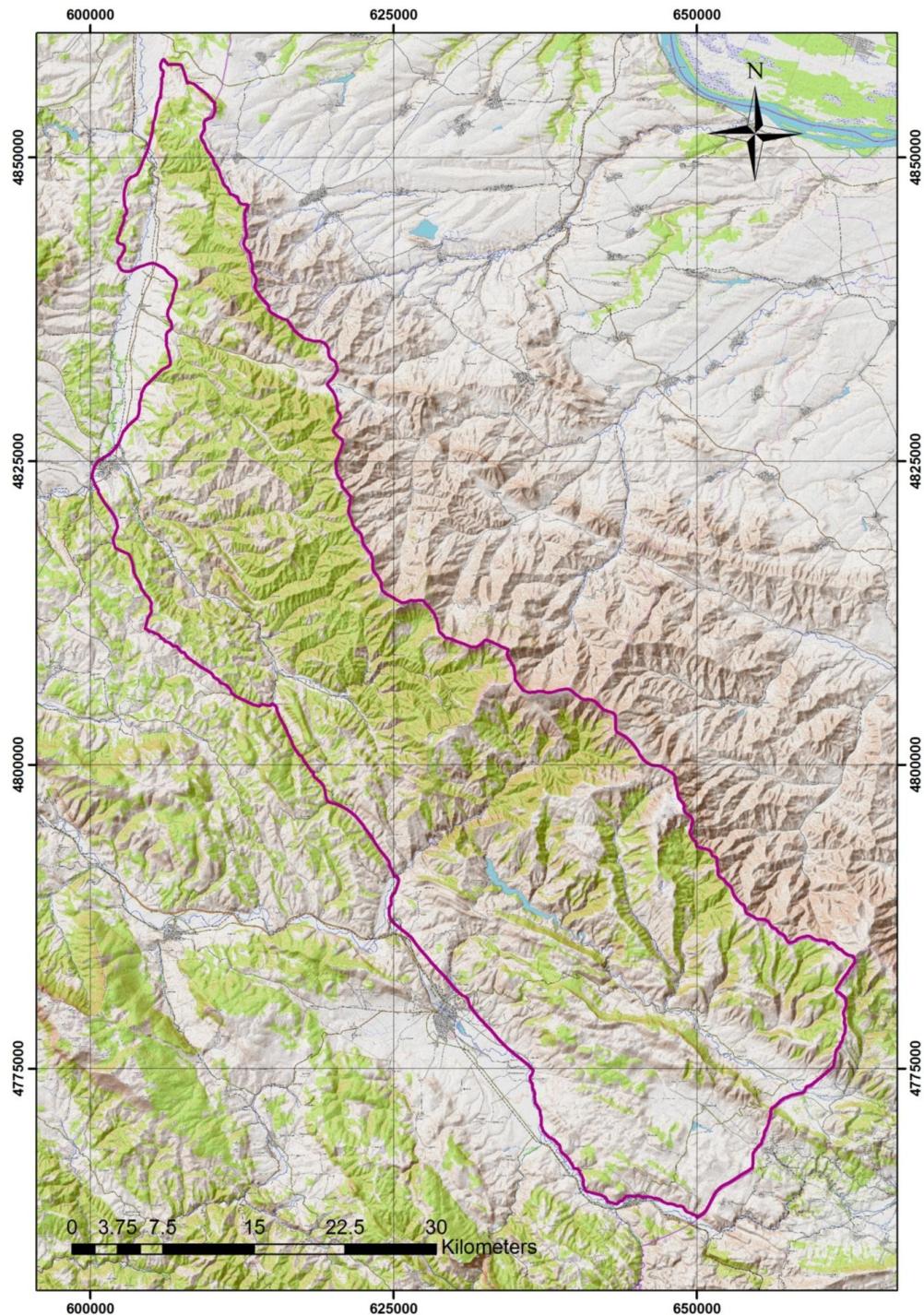
Područije Stare Planine se može posmatrati sa više aspekata: kao park prirode, geografski, geološki i sa aspekta pojave geodiverziteta. U ovom slučaju daćemo naš prikaz područja Stare planine od interesa za pručavanje radioaktivnosti. Sa istočne (grebenima) i južne strane prostor je oivičen državnom granicom sa Bugarskom. Sa zapadne strane prostor je oivičen (od severa prema jugu) rekama: Beli Timok, Trgoviški Timok, Stanjanskom rekom, Klajčom, Temskom i Nišavom. Generalno, u Srbiji se nalazi manji deo Stare planine, od granice sa Bugarskom sistem se pruža do Crnog mora.



Slika 7. Stara planina sa šemom u pravcu Crnog mora

Na kartama OGK 1:100000 prostor od interesa se nalazi na listovima: Bor, Zaječar, Knjaževac i Belogradci, Bela Palanka, Pirot i Breznik. Na geološkim kartama SR Srbije 1:200000 (Milovanović i Ćirić 1966) prostor od interesa se nalazi na listovima Knjaževac-Zaječar i Priština-Niš, kako su ove karte sa manje detalja nego OGK 1:100000, korišćene su radi jasnijeg prikaza geoloških odnosa u ovom radu.

Na slici 8 je radi boljeg uvida data i topografska karta Stare planine, njenog dela na prostoru Republike Srbije

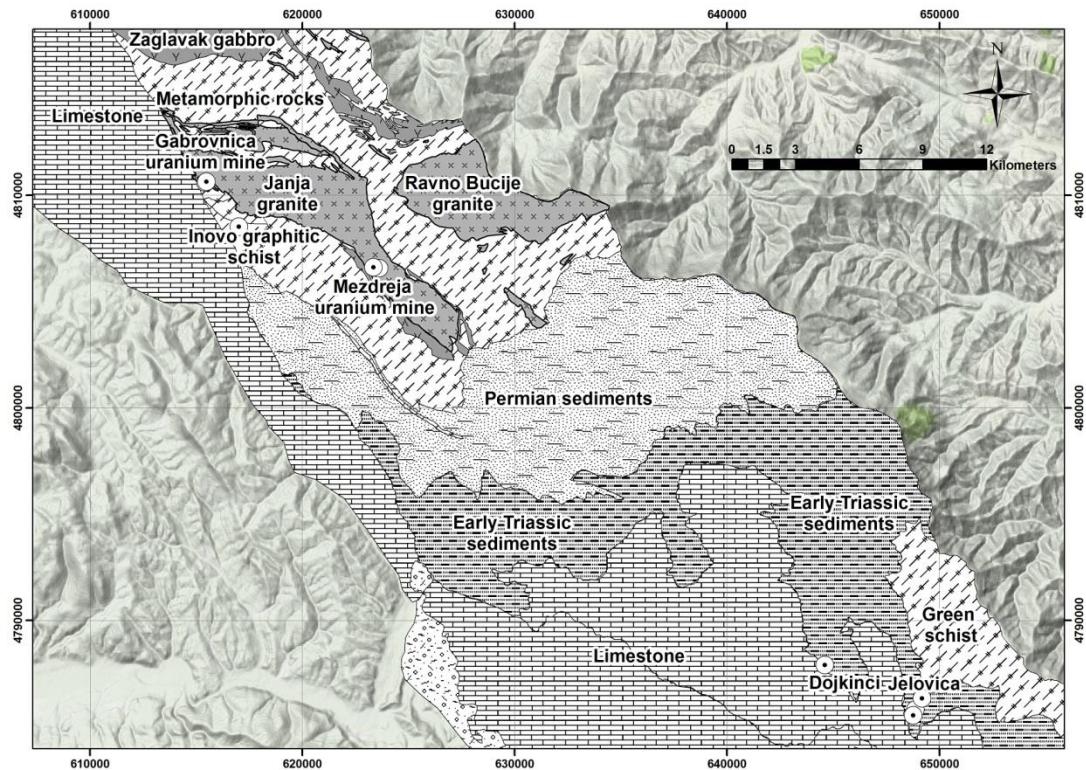


Slika 8. Topografska karta Stare Planine na rasterskoj osnovi SASPlanet, OSM - OpenTopoMap

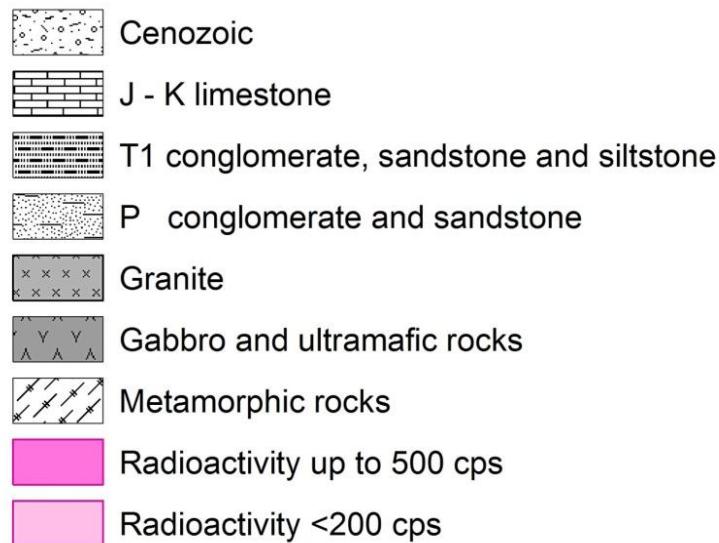
Sa severne strane Stare planine, sa aspekta područja gde su geološke jedinice razdvojene strukturama, a gde počinje pojavljivanje granitnih i granodioritnih intruzija, prostor je definisan rasedima koji odvajaju gornju juru sa južne strane od donje krede sa severne strane.

Prema jugu počinje složen geo-tektonski asemblaž izgrađen od granita: Suvodolski, Janje, Radičevski, Ravno Bučanski), granodiorita i granit porfirita, gabroidnih intruziva (Zaglavaka); paleozijskih metamorfta: proterozojko-kambrijskih, silursko-devonskih - inovska serija i drugih; permskih crvenih peščara i konglomerata; u južnom delu tvorevina mezozoika: trijasa (Kopren-Gostuša-Dojkinci), jura (Basara, Odorovci), donje krede (Visočka Ržana, Dimitrovgrad).

U južnom delu mezozojskog bloka (južno od Visočice) jura i kreda su ispresečane strukturama pravcem pružanja sevrozapad - jugoistok. Granica Stare planine sa severne strane nije jasno definisana a na kartama Zaječar i Bor se može pratiti po krednim tvorevinama i intruzijama, dužine, prema severu od oko 30km i dalje preko Brusnika, Brestovca do Negotina ali to je predmet druge tematike.



Slika 9. Karakteristične geološke jedinice na prostoru Stare Planine



Slika 10. Legenda geoloških jedinica i šema za Slike 9, 17, 18 i 47; Cenozoic - Kenozojske tvorevine; J-K limestone - jurski i kredni krečnjaci; T1 - sedimenti donjeg trijasa, konglomerati, peščari i alevroliti; P - permski konglomerati i peščari; Granite - Graniti; Gabbro and ultramafic rocks - Gabroidi i ultrabazične stene; Metamorphic rocks - Metamorfiti; Radioactivity up to 500 cps - Radiaktivnost do 500 cps; Radioactivity <200 cps - Radioaktivnost veća od 200 cps

## **4.1 Stara Planina kao park prirode i objekti geodiverziteta**

Područije Stare Planine je definisano kao "Park prirode" u primeni je od 1997 godine i na tom prostoru nalaze se neki od jedinstvenih primera geodiverziteta. Navećemo pored ostalih nekoliko karakterističnih primera geodiverziteta, sa osnovnim prikazom geološke građe: Babin Zub, Arbinje i Rosomački lonci.

### **4.1.1 Babin Zub**

U permskim sedimentima, a na kontaktu sa paleozojskim metamorfitima i oko 3 do 3,5 km istočno od južnog oboda granita Janje nalazi se "Babin zub". Formaciju crvenih pescara izgraduiu kontinentalni sedimenti - arkozni bazalni konglomerati (koji negde i nedostaju), pescari, alevroliti i glinci. Bazalni konglomerati su promenljive debljine, do preko 200m. Izgradeni su od valutaka i krupnih zrna kvarca, feldspata (kiseli plagioklas, rede K-feldspat), granitoidna stena, kristalastih skriljaca nizeg kristaliniteta, karbonskih andezita, dacita, dijabaza i drugih stena. Konglomerati navise postupno prelaze u krupnozme i srednjozme slojevite pescare, i sitnozrne slojevite i tankoslojevite pešcare i alevrolite koji se naizmenično smenjuju. U visim delovima stuba pescari postepeno nestaju i najviši deo perma je predstavljen tankoslojevitim do listastim trošnim alevrolitima i glincima sa tragovima kisnih kapi, bioglifa i simetricnih tragova talasanja. Ovi sedimenti su arkoznog karaktera, izgradeni uglavnom od kvarca i feldspata, rede liskuna. Vezani su bazalnim ilitsko-hematitskim cementom sa kalcitom i retko kaolinitom (do 25%). Među teskim mineralima u permskim sedimentima najčešći su magnetit, ilmenit, hematit (do 90% teske frakcije), epidot, povremeno i granat. Permski sedimenti stvarani su na reljefu sastavljenom pretežno od granitoidnih stena, manje kristalastih skriljaca niskog stupnja metamorfizma, u oksidacionoj sredini, pri toploj i žarkoj aridnoj klimi sa povrernenim padavinama. Debljina permskih sedimenata dostiže 600 metara. Sama pojave "zubi" su nastali u trenutku kada je tokom sedimentacije u sistemu ostalo više silicije (verovatno sa  $\text{FeOH}_3 \times n\text{H}_2\text{O}$  koji je reaktivniji i ranije oboren).



Slika 11. Babin Zub, karakteristično pojavljivanje



Slika 12. Babin Zub, svež prelom uzorka "in situ"

#### 4.1.2 Arbinje

Radi se o pločama nastalim kako tektonskim sklopom crvenih sedimenata donjem triajasa tako i radom rečnog toka. Predstavljeni su Sajskim slojevima koji odgovaraju grubaklastični sedimenti - kvarcni i subarkozni konglomerati i pešcari sa karakterističnom kosom slojevitostcu ("sareni pešcari") koji transgresivno ali bez jasne uglovne diskordancije, ide preko permских alevrolita a nalaze se ispod slojeva sa kampilskom faunom. Na severozapadnom delu Stare planine preko sajskih slojeva leže sedimenti lijasa. Sajske slojeve izgraduju bazalni kvarcni konglomerati i pescari (kvarcni horizont) koji navise prelaze u krupnozrne subarkoze (subarkozni horizont) i srednjozrne arkozne pescare (arbznji horizont). Karakteristična je dobra zaobljenost zrna, kao i skoro monomiktni sastav (80- 95% kvarc, 5-20% mikroklin, rede kiseli plagioklas, muskovit, biotit i odlomci granita, kvarcita i skriljaca). Matriks je glinoviti parni, katkad izmesan sa hematitom. Sedimenti sajskih slojeva talozeni su u recnim dolinama, deltama ili priobalskim i plitkovodnim delovima basena. Oucavaju se razvijeni lonci različitih dimenzija nastali vrtloženjem reke sa abrazivnim materijalom.



Slika 13. Sub-horizontalne ploče crvenih peščara Arbinja



Slika 14. Šupljine "lonci" nastali vrtloženjem fragmenata stenskog materijala iz reke (na slici su prečnika 30-40cm)

#### 4.1.3 Rosomački Lonci

Nalaze se u krečnjacima gornjo jurske starosti, a na granici gornje jure i donje krede u formaciji "grudvastih krečnjaka" u rejonu raseda koji se pruža pravcem SSZ-JJI. Gornjoj juri pripada kompleks karbonatnih stena koje imaju znatno rasprostranjenje i debljinu. Izgradena je od slojevitih i bankovitih krečnjaka, dolomitih krečnjaka i dolomita u kojima su na osnovu superpozicije i faune izdvojeni oksfordski sa kimerickim i titonski kat. Pretežno na osnovu mikrofaune mogu se razlikovati dva tipa razvića: foraminifersko-algalno (neritsko) i planktonsko (pelasko).



Slika 15. Rosomački Lonci



Slika 16. Grudvasti krečnjaci

Pored navedenih, u nastavku rada biće posredno prikazane i karakteristike drugih (ne i svih) objekata geodiverziteta Stare Planine

## 4.2 Poznate pojave i ležišta urana Stare Planine

Gertik 2003 i Kovačević 2006 daju opširne i detaljne prikaze i analize ležišta i pojave urana Stare Planine, njihovih karakteristika i geneze, tako da bi izbegli prepisivanje, biće dat kratak pregled.

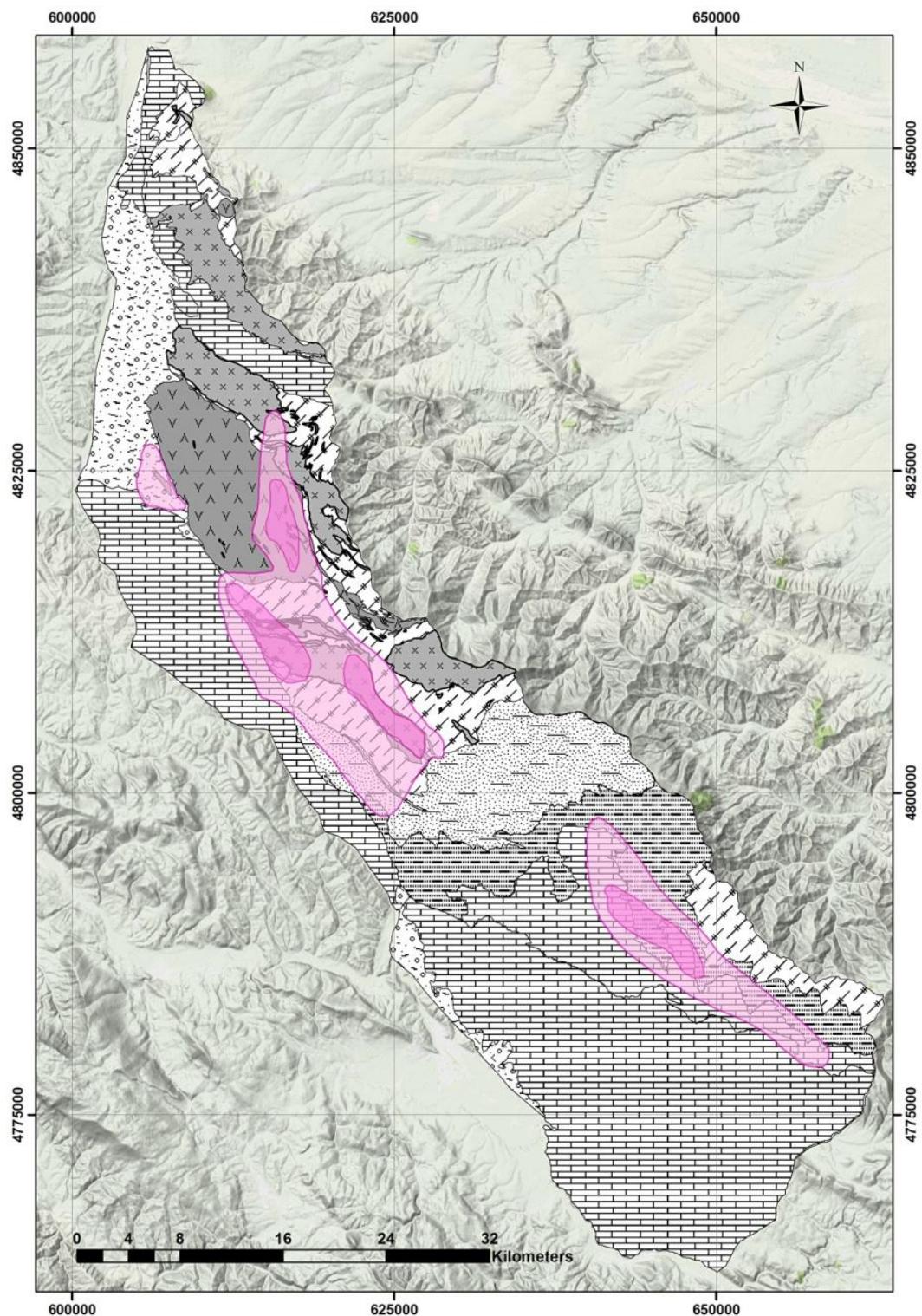
U oblasti Stare Planine mogu se izdvojiti sledeći genetski tipovi ležišta i pojave urana:

1. Mineralizacija urana u pegmatitma,
2. Visokotemperaturne hidrotermalne pojave urana,
3. Hidrotermalna ležišta i pojave,
4. Infiltraciona ležišta i pojave,
5. Metamorfogene pojave.

Prostorno i usmislu rudne rejonizacije definisana su:

1. Ležišta i pojave rudnog polja granita Janje,
2. Pojave u okviru rudnog polja Crnovrška serija,
3. Pojave u rudnom polju Inovska serija
4. Ležišta i pojave u rudnom polju Šarena serija.
5. Pojave urana u sedimentima donjeg trijasa (Jelovica).
6. Pojave urana u tercijarnim sedimentima.

Na karti (Slika 17) prikazana je distribucija radioaktivnosti na područiju Stare planine. Generalno su na osnovu višedecenijskog rada Geoinstituta Kovacevic (2006) definisana dva nivoa: 1. Radioaktivnost izmedju 200 i 500 cps raspodeljena u tri zone sa ukupnom površinom od oko  $307,5 \text{ km}^2$  i 2. Radioaktivnost izmerena preko 500cps raspoređena u 4 zone povrsine approks  $70,84 \text{ km}^2$ .



Slika 17. Karta disitribucije radioaktivnosti na prostoru Stare planine od 200 i 500 cps

U suštini glavne izvore radioaktivnosti na Starij planini bi mogli da podelimo na:

1. Granitne endogene - singenetske pojave i ležišta,
2. Metamorfogene - singenetske i

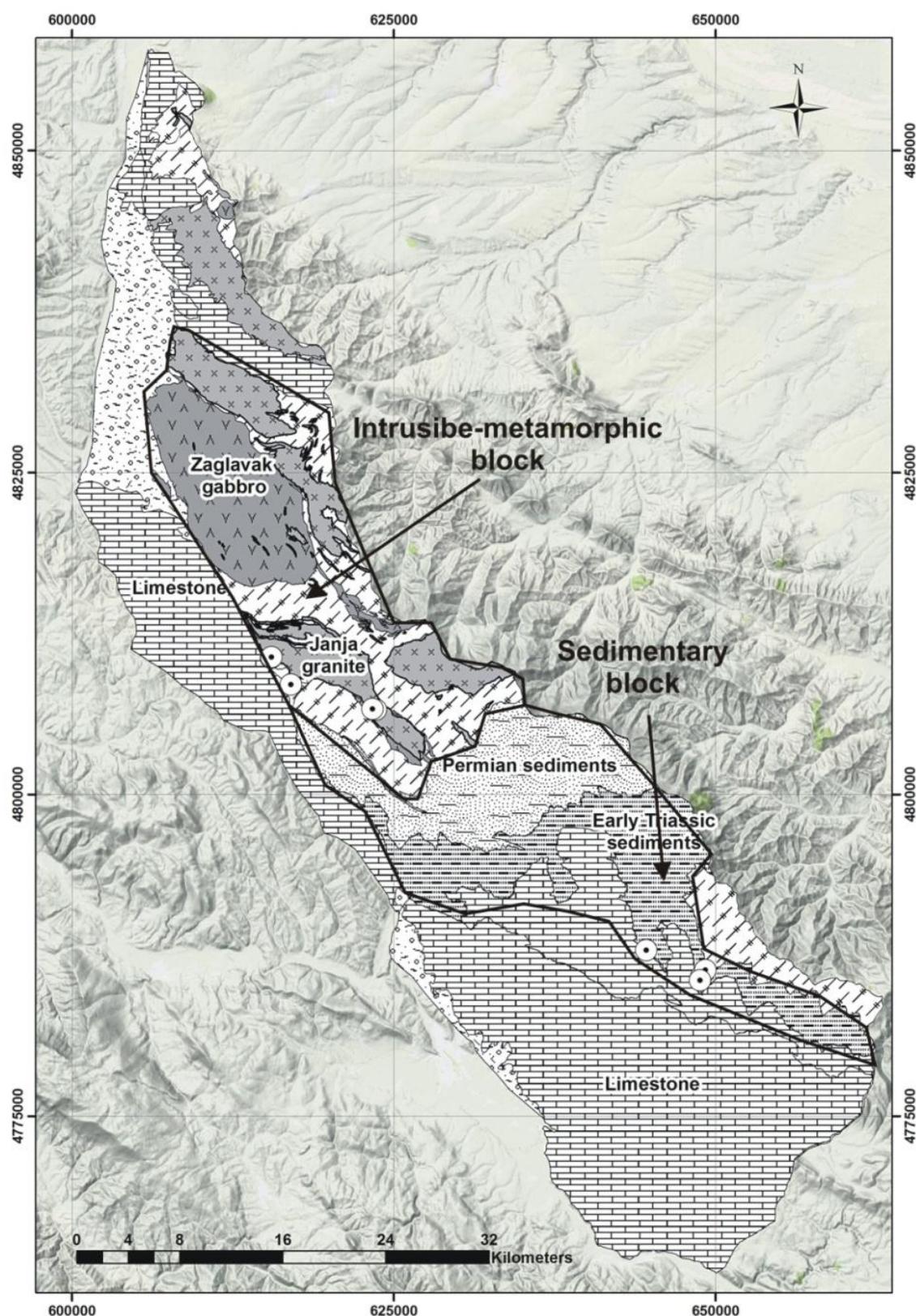
3. Sedimentne sa pojavama deponovanja i fluktuacije urana vodom u različitim tipovima sedimentnih stena nastalih u kontinentalnoj sredini, koje bi se mogle svrstati u epigenetske tipove. Našim istraživanjima smo zaključili da se pojave prikazane u ovom radu mogu podeliti na (Slika 18):

- A. intruzivno-metamorfi i
- B. sedimentni blok.

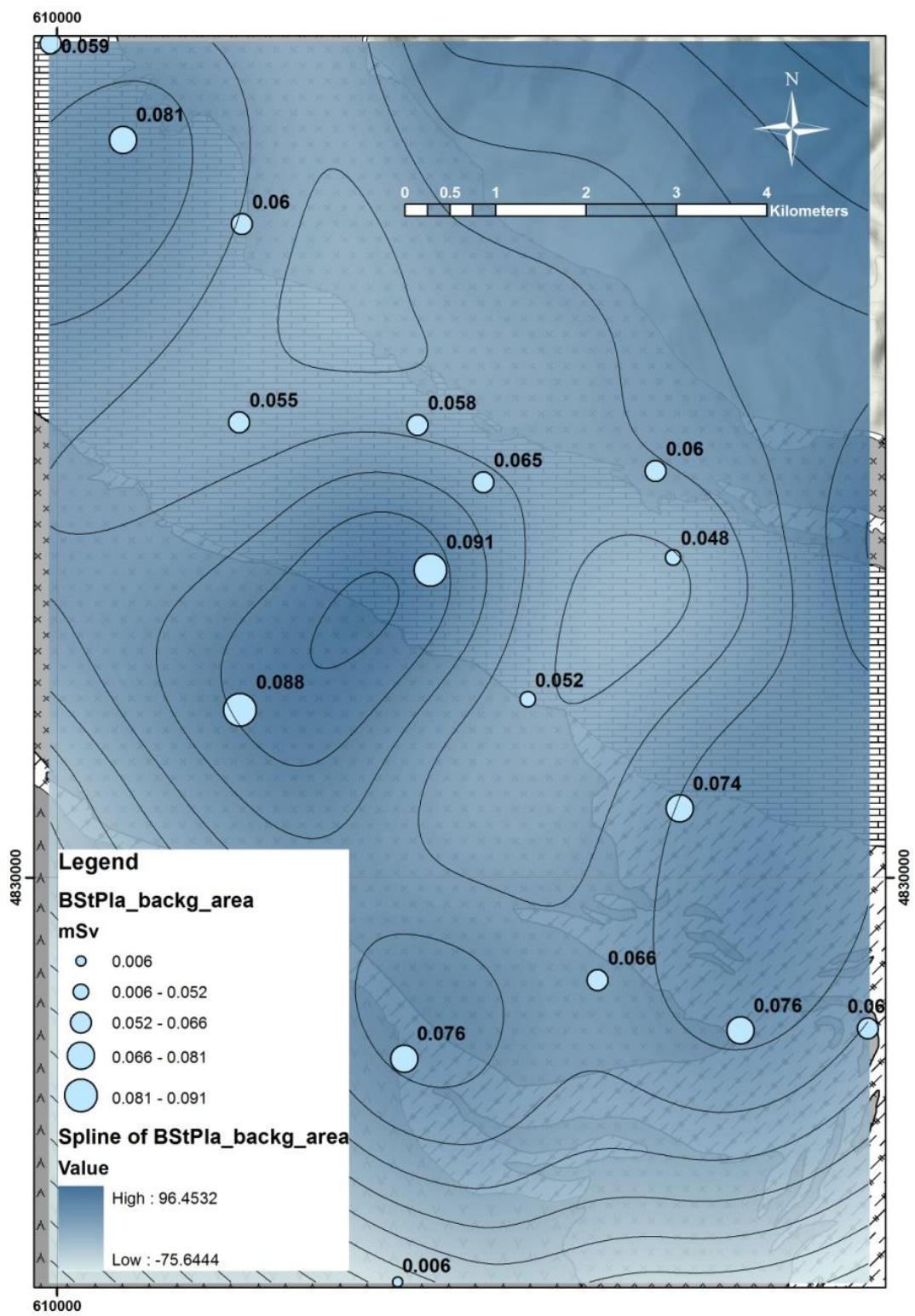
U okviru "intruzivno-metamorfognog" bloka povišena radioaktivnost je vezana za granit Janje i pojave granodiorit porfirita Aldinca, kao i prostora sa grafitičnim škriljcima inovske serije, na površini od oko 195 kvadratnih kilometara.

U okviru sedimentnog bloka radioaktivnost je vezana kako za sekundarno deponovane minerale tako i njihovo crvenkasto sa Fe bogato vezivo. Povišena radioaktivnost je konstatovana posebno na kontaktima sivih i crvenih alevrolita, gde su sivi deponovani kao sočiva različitih dimenzija u osnovnoj crvenakastoj masi kontinentalnih sedimenata, prostor obuhvata površinu od 97 kvadratnih kilometara.

U radu Mocilovic et. al. (2010), dve zone su ispitine na radioaktivnost u smislu godišnje efektivne doze, jedna kao pozadinska (Slika 19) na prostoru Osljane-Novo Korito-Radicevac izgrađene od granita, gabroida i donje krednih sedimenata sa izmerenom radioaktivnošću od 0,006 do 0,091  $\mu\text{Sv}/\text{h}$  i druga kao anomalna (Slika 21) na prostoru Gabrovnica-Mezdreja izgrađena od granita Janje i metamorfita Inovske serije sa izmerenom radioaktivnošću od 0,057 do 0,266  $\mu\text{Sv}/\text{h}$ . Na Slikama niže su prikazane pomenute "background" i "anomalous" vrednosti u GIS-u iz 2010 i kasnije.

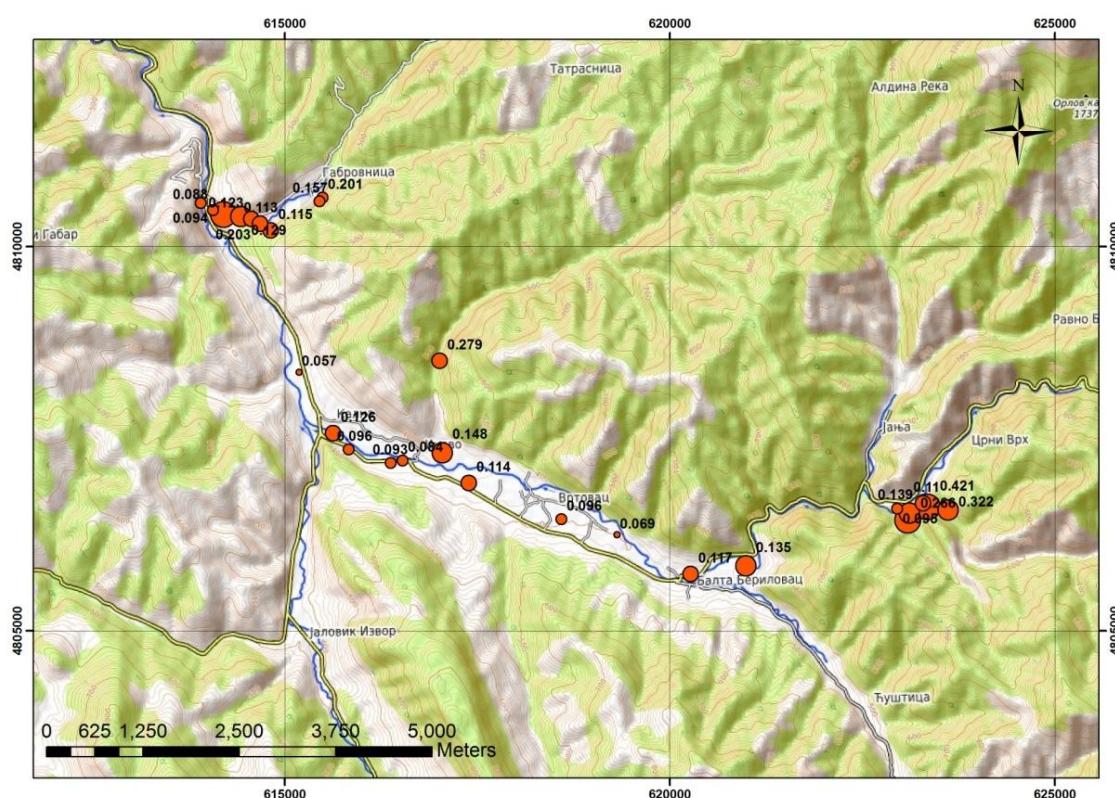


Slika 18. Karta blokova: A. intruzivno-metamorfognog i B. sedimentnog bloka

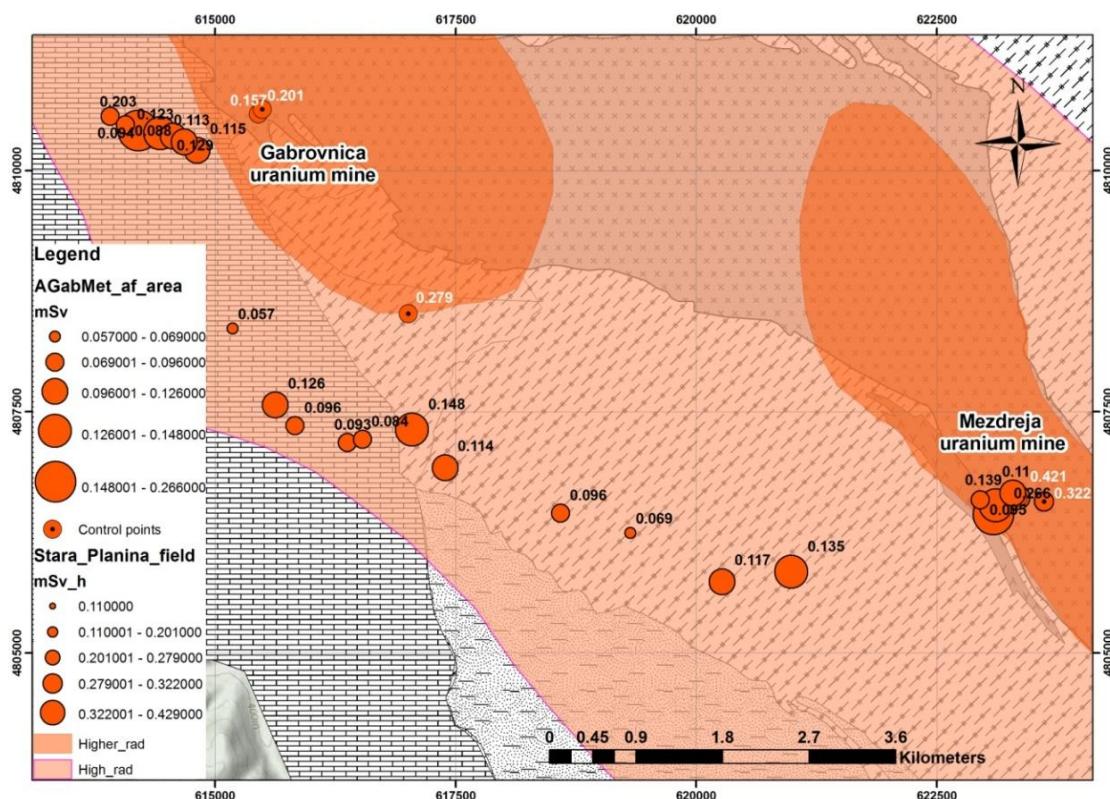


Slika 19. Interpolacija vrednosti pozadinske (niske) radioaktivnosti u rejonu "Novog Korita" u  $\mu\text{Sv/h}$

Na Kartama koje slede (Slike 20 i 21) dat je prikaz distribucije tačaka sa povišenom radioaktivnošću. Koncentracije u severozapadnom delu su vezane za rudnik urana Gabrovnica, a u jugoistočnom za rudnik Mezdreju. reka gde su ispráene anomalne vrednosti u aluvionu je Trgoviški Timok. Na šematskoj geološkoj karti Slika 21, su prikazane kako pomenute tačke sa povišenom radioaktivnošću tako i oblasti sa generalno povišenom radioaktivnošću izraženom u cps.



Slika 20. Topografska karta prostora Gabrovnica - Mezdreja sa podacima merenja radioaktivnosti iz 2010 i 2016. Raster osnova je SAPlanet, OSM - OpenTopoMap



Slika 21. Pozicije prethodnih (2010) i naših (2017) merenja u rejonu rudnika

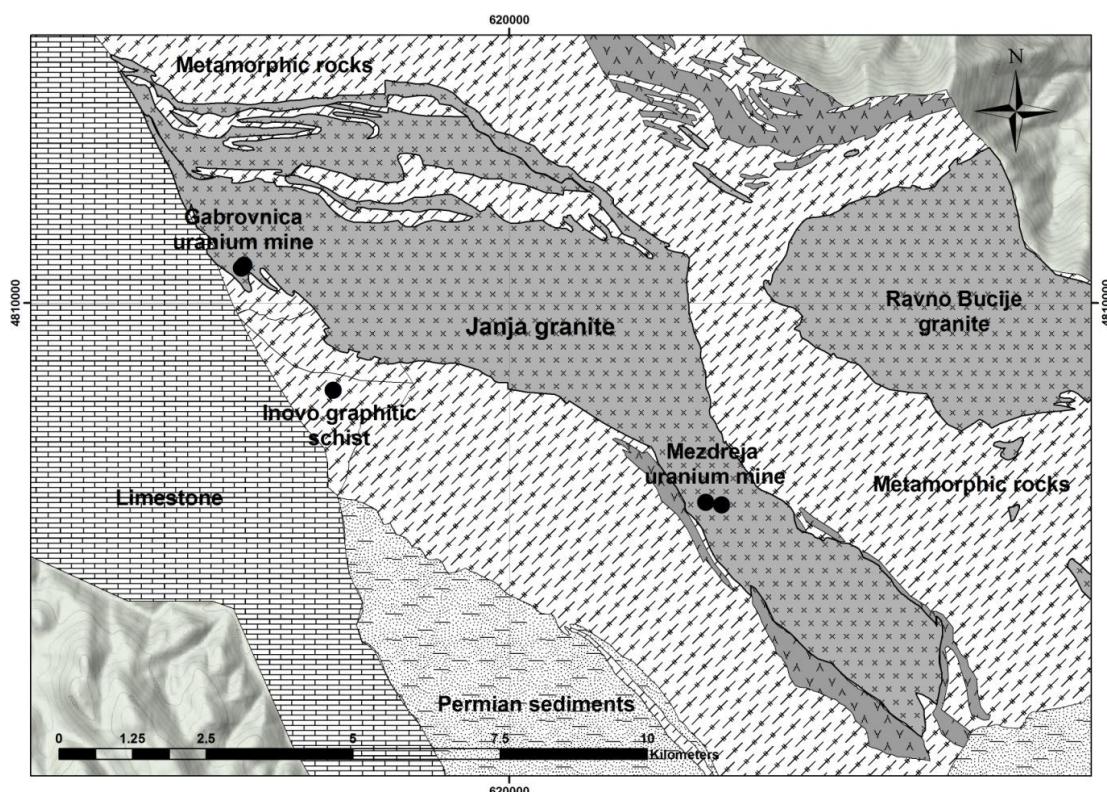
#### Gabrovica i Mazdreja u $\mu\text{Sv}/\text{h}$

Ovim smo prikazali generalni pregled i distribuciju radioaktivnosti poznatih područja Stare Planine, delom sa podacima naših ispitivanja, koja su se u ovom slučaju nadovezala na prethodna, a pre detaljnog ispitivanja karakterističnih geoloških jedinica nisučica radioaktivnosti.

## 5. GEOLOŠKE I RADIOMETRIJSKE KARAKTERISTIKE UZORAKA GRANITA JANJE, LOKALITETI - LEŽIŠTA URANA MEZDREJA I GABROVNICA

Janjski granitski masiv nalazi se južno od zaglavačkog masiva gabra i zapadno od ravnobučjanskog granita (Slike 18 i 22). Masiv je izdužen pravcem sverozapad-jugoistok. Dužine je oko 19 km, širine oko 2,5 km.

Janjski granitski masiv je utisnut u kristalaste škriljce gornjeg proterozoika i kambrijuma. Na kristalastim škriljcima se uočavaju termokontaktne i metasomatske promene. Od primarnih strukturnih elemenata sklopa, prisutne su pukotine zapunjene aplitskim, pegmatitskim i kvarcnim žicama. U pukotinama pružanja SZ-JI, koncentrisanim u obodnim delovima masiva, došlo je mestimično do kristalizacije sericita.



Slika 22. Karta lokaliteta Mezdreje i Gabrovnica (i Inova metamorftita) u prostoru granita Janje sa kontrolnim tačkama (crno)

U severozapadnom delu se deli u dve mase razdvojene amfibolitima, amfibolskim škriljcima do gnajsevima i liskunskim gnajsevima. U obodu su nastale kontaktne promene ispoljene silifikacijom, biotitizacijom i lokalno prinošenjem feldspata Krstić et al. 1976. U obodnim delovima masiva došlo je do kontaminacije granitoidne magme što se ispoljava u povećanom sadržaju biotita i sfena, dok se količina K-feldspata i kvarca smanjuje. Janjski granit pripada uglavnom normalnom kalkoalkalnom tipu koji ka obodu prelazi ka monconitsko-akeritskom tipu, dok u središnjem delu ima prelaza ka alkalnom granitu. Deformacije i sekundarne promene su zapažene u celom masivu, ali su naročito izražene u obodnim delovima. Prezentovane su škriljavom teksturom, drobljenjem minerala i kristalizaciji sekundarnih minerala. Graniti janjskog masiva su porfiroidne i srednjozorne teksture, a hipidiomorfnozrnaste do kataklastične strukture. Izgrađeni su od kvarca, oligoklasa, K-feldspata (mikroklin, retko ortoklas) i biotita. Sporedni sastojci su sfen, apatit, cirkon i magnetit, a sekundarni su sericit, hlorit, epidot, kalcit, limonit i glinovita supstanca. Sijenit dioriti se nalaze se u omotaču janjskog granita i u njegovoj obodnoj zoni. Njihov nastanak se objašnjava kontaktno-metasomatskim procesima na stenama omotača i kontaminacijom granitske magme.

Aplitske žice debljine 30-40 cm i više nalaze se u obodnoj zoni janjskog granita i okolnim amfibolitima, amfibolskim škriljcima do gnajsevima i liskunskim gnajsevima. Izgrađeni su od plagioklasa (albit-oligoklas do andezin), mikroklina, malo kvarca i biotita. Sporedni sastojci su turmalin, sfen, cirkon, apatit i metalični minerali. Produkti pegmatitske faze janjskog granita lokalizovani su pretežno u škriljcima severna od masiva. Pegmatitske žice su po položaju manje-više paralelne sa folijacijom škriljaca i pružaju se SZ-JI. Debljine su 30-40 cm, retko više. Izgrađene su od kvarca, plagioklasa (albit-oligoklas), mikroklina, biotita i muskovita. Sporedni sastojci su apatit, cirkon, alanit i metalični minerali. Kvarcne žice se nalaze u masivu i oko njega. Debljine su do nekoliko metara, a dužine do 200. Pored kvarca u njima se nalaze turmalin i metalični minerali.

U okviru granita Janje ispitivani su karakteristični geološki predstavnici, nosioci prirodne radioaktivnosti. Prvenstveno su obradeni primerci granita, host rock ležišta Mezdreja i Gabrovnica. Pored pomenutog, u okviru lokaliteta Mezdreja osim granita,

ispitani su uzorci jalovišta (glinoviti materijal sa fragmentima kataklaziranog granita), silifikovane partije sa limonitskim skramama i na kraju fragmenti kontaktног gabroida sa krupnim (preko 1cm) K-feldspat.

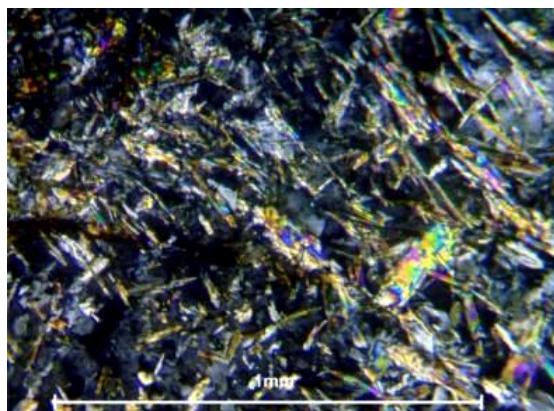
Poznato je da su graniti prirodni izvori radioaktivnosti. Neki su više, a neki manje radioaktivni. Najviši sadršaj urana i torijuma je od endigenih stena u granitima 3,9 ppm U i 18,0 ppm Th kao i sijenitima 3 ppm U i 13,0 ppm Th, Bekman (2014).

Iz grupe endogenih, u konkretnom slučaju vezano za granite i ležišta Mezdreja i Gabrovica, od petrogenih minerala najveći značaj u pogledu koncentrisanja urana imaju minerali iz grupe feldspata i liskuna. Kako su koncentracije urana u glavnim petrogenim mineralima dosta niske, a ukupne količine tih minerala velike, a i kako su rasprostranjeni, oni predstavljaju izvore iz kojih se iz "vrućih" granita izlužuju respektabilne koncentracije urana. U biotitu, muskovitu i mineralima iz grupe feldspata, uran se nalazi u obliku  $U^{4+}$ . Ukoliko su, (pomenuti minerali pretrpeli promene pod uticajem hidrotermalnih ili meteorskih voda bogatih kiseonikom, uran u njima može biti prisutan i u  $U^{6+}$  obliku. Na osnovu brojnih ispitivanja utvrđeno je da se uran pre nalazi u kristalnim rešetkama ovih minerala, a ređe kao intersticijalan Gržetić i Jelenković (1995). Oblici vezivanja urana u mineralima kao što su biotit, muskovit ili feldspati od posebnog su interesa pri razradi fizičkohemijskih modela geneze hidrotermalnih ležišta urana u granitoidnom kompleksu, kao i u akcesornim mineralima: cirkonu i monacitu, ortitu, sfenu, ksenotitu, turmalinu, apatitu i drugim mineralima.

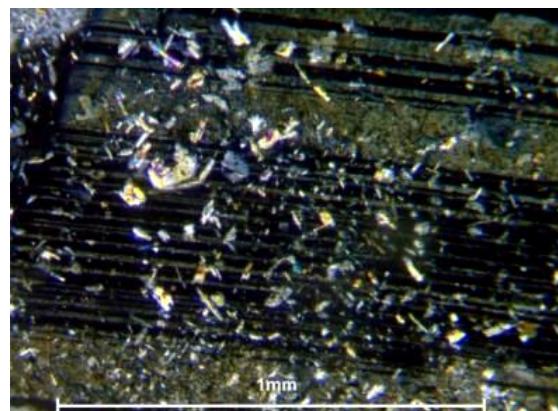
Uran u granitoide dospeva zajedno sa magmom, tokom procesa intruzije granitne magme u površinske slojeve zemlje Gržetić i Jelenković (1995). Obično uslovi pod kojima se magma hladila ne dopuštaju da se fugasnost kiseonika do te mere poveća da bi se uran mogao oksidovati do  $U^{6+}$ . Svaki višak kiseonika u magmi bi se utrošio na oksidaciji sumpora koji je uvek prisutan u magmi, s obzirom da je afinitet  $S^{2-}$  (npr. iz pirita) veći nego afinitet  $U^{4+}$  prema kiseoniku.

U slučaju ležišta Mezdreja i Gabrovica, pošto se radi o remobilizaciji urana iz primarnog granita treba napomenuti da iz primarnog "uranonosnog" K-feldspar u

prisustvu vode i  $H^+$  jona nastaje u prvom slučaju kaolin,  $K^+$  ion,  $U4^+$  - uranium ion i orto silicijumova kiselina, a u drugom slučaju može nastati sericit,  $K^+$  ion,  $UO_2^+$  - uranil ion i takođe orto silicijumova kiselina. Sericitizacija je konstatovana kod petroloških uzoraka na lokalitetima Mezdreja i Gabrovica (slike 23 i 24). U našim uzorcima konstatovano je da je sericitizacija izraženija kod uzaraka granita Mezdreje u odnosu na uzorce Gabrovnice.



Slika 23. Mikroskopski snimak sericitizacije u uzorku iz Mezdreje.

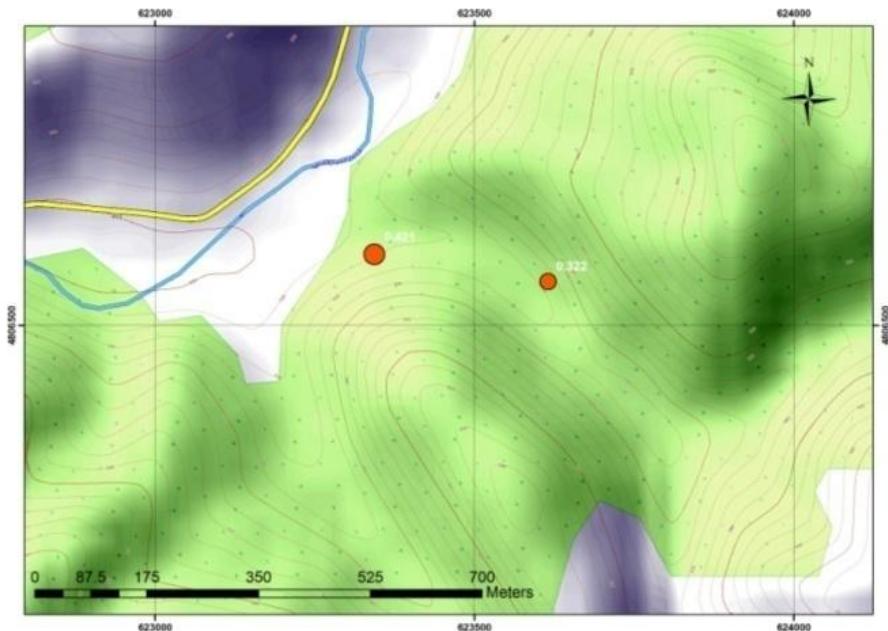


Slika 24. Mikroskopski snimak sericitizacije u uzorku iz Gabrovnice.

Biotit, takođe primarni "uranonosni" mineral iz granitnih stena se može transformisati na dva načina i to u prvom slučaju uz prisustvo negativnog  $OH^-$  ion nastaje sericit, silicijum dioksid, voda, aluminum silikat (koji se može javiti kao minerali andaluzit, kijanit ili silimanit),  $K^+$  ion i  $U4$  - uranium ion, a u drugom slučaju uz prisustvo vode i  $H^+$  jona nastaje sericit, aluminium silikat,  $K^+$  ion i  $UO_2^+$  - uranil ion.

## 5.1 Ležište urana Mezdreja

Ležište Mezdreja se nalazi se u južnom delu magmatsko metamorfnog kompleksa Janje između Crnovrške i Debeštičke reke, Gertik (2003). Ležište je definisano sa dve razlomne zone tzv. 0 i 1.



Slika 25. Topografska karta prostora rudnika urana Mezdreja sa kontrolnim opservacionim tačkama (narandžasto). Raster osnova je SASPlanet OSM - OpenTopoMap



Slika 26. Ortofoto satelitski snimak prostora rudnika urana Mezdreja sa kontrolnim opservacionim tačkama (narandžasto). Raster osnova je SASPlanet Bing satellite

Razlomna zona "0" sa pravcem pružanja severozapad-jugoistok dugačka je 1300m a po visini je istražena od 200 do 600m. Po profilu se uočava zonalnost u sastavu: kaolinisanih, sericitisanih i hloritisanih zona u višim delovima sa silifikacijom,

piritizacijom i hematitizacijom u nižim delovima. Orudnjenje je razvijeno u vidu sočiva gde lokalno formiraju rudne stubove, dimenzija su dužine od 18 do 330m a po visini stubovi se pružaju od 350 do 500m, debljina je od 35 do 90cm. Uranska mineralizacija je fino dispergovana u zdrobljenom i hidrotermalno izmenjnom granitu ili je razvijena kao žilice, prevlake i skrame okom vidljive pehblende. Uranom neorudnjeni delovi razlomne zone su ispunjeni sericitom i halkopiritom.

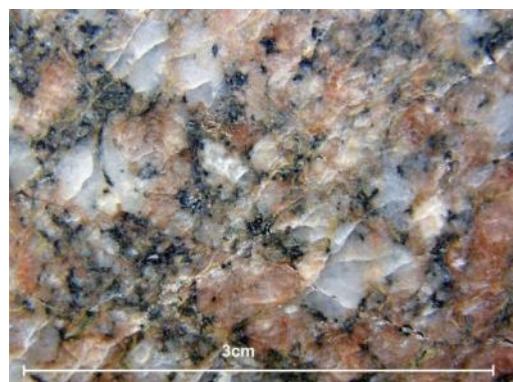
Razlomna zona "1" je razvijena uz metagabroidne stene. Orudnjenje i oblik deponovanja rude je sličan kao i u zoni "0". Mineralizacija ima žično-sočivasti oblik na kontaktu sa meta gabrovima. Dužine su 50 - 100m, po padu se pružaju do 300m. Uz zone 0 i 1 razvijeni su biotitski granit i metamorfisani gabro. Uranska mineralizacija je razvijena u vidu ompregnacija žilica i skrama, a predstavljena je pehblendom i sekundarnom pehblendom

Uzeta su četiri uzorka sa lokaliteta Mezdreja:

1. Uzorak granita je uzet "in situ" u blizini jame, na mestu uzorkovanja uredjajem GR110 konstatovano je 520cps, a na ulazu u jamu 420cps i  $0.322 \mu\text{Sv/h}$ . Jama je zatrpana i u nju nije moguće ući. Stena je delimično ispucala. Dominantni su ružičasti K feldspar i beli plagioklas oba su ispucana i u različitoj meri sericitisana i kaolinisana, dimenzija su do 0,5 - 1,5 cm (Slika 27 i 28), prisutna je hloritizacija uz koju su ponekad razvijena zrna magnetita, pomenuto se dogodilo kasnije tokom kraćih hidrotermalnih ili auto metasomatskih epizoda.



Slika 27. Uzorak granita u blizini ulaza u jamu rudnika Mezdreja



Slika 28. Makro snimak poliranog uzorka granita kod ulaza u jamu Mezdreja sa ružičastim K feldspar i belim plagioklasima

2. U rejonu od ulaska u jamu do jalovišta konstatovani su mali izdanci silifikovanog materijala sa pojavama rudnih impregnacija i limonitizacije (Slika 29). Konstatovana je radioaktivnost od 320cps i  $0.182 \mu\text{Sv}/\text{h}$ .

3. Na prostoru jalovišta deponovan je izlomljen granitni materijal, zaglinjen, kaolinisan i hloritisan (Slika 30), izmereno je do 1250 cps i  $0.421 \mu\text{Sv}/\text{h}$ .



Slika 29. Silifikovana stena (žica) sa pojavama rudnih minerala i alteracija.



Slika 30. Jalovina, fragmenti granita i glinovitog materijala kod ležišta Mezdreja.

4. Na kontaktu granitnih i gabroidnih stena uzet je uzorak sa velikim ružičastim K feldspar, izmereno je 120 cps i  $0.192 \mu\text{Sv}/\text{h}$ . K feldspar sa Slika 31 i 32 je posebno ispitana sa XRF, rezultati slede kasnije u tekstu.



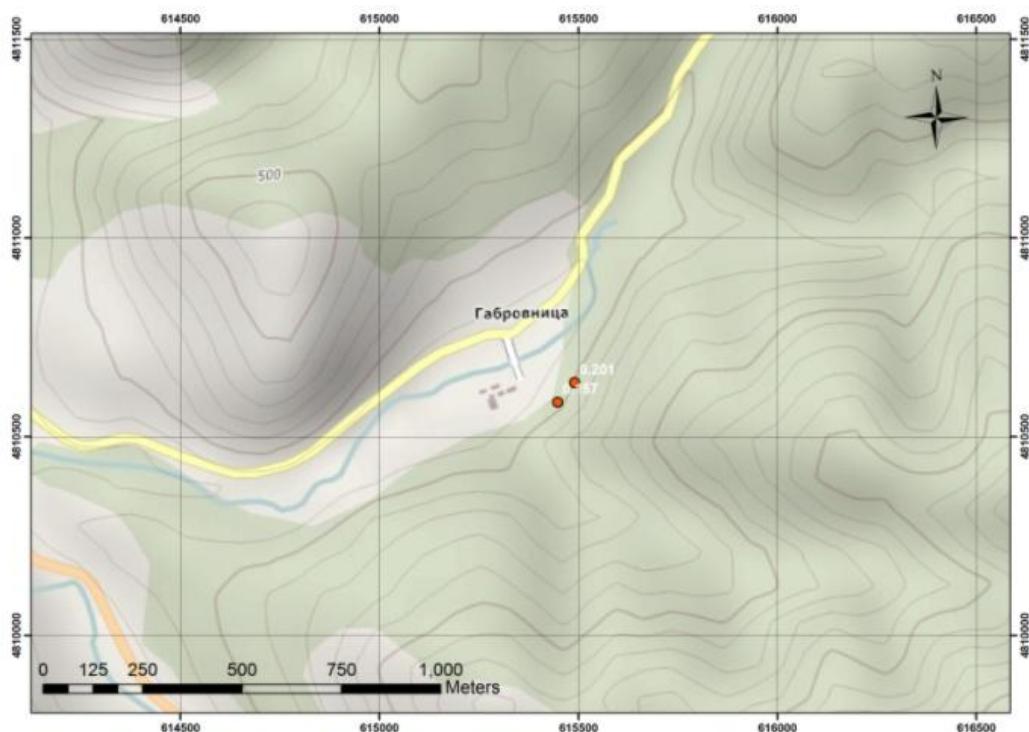
Slika 31. Makro snimak poliranog uzaka izdanka gabroida, lokaliteta Mezdreja.



Slika 32. K feldspar gabroida - pinkish, u centru metalično žuto je idiomorfno zrno pirita.

## 5.2 Ležište urana Gabrovnica

Slične je geneze kao i Mezdreja. Razlika je što se ležište sastoji od osam razlomnih zona koje se mogu podeliti u dve grupe: 1. dijabaznih dajkova u granitima i mlečnobelom kvarcu i 2. u zdrobljenim granitima. Uranova ruda je razvijena u hloritisanim filonitima i zdrobljenim granitima. Čvrste i ne tektonizirane partie su sterilne ili veoma slabo orudnjene. Razlomne zone su intenzivno tektonizirane postrudnom tektonikom. Poreklo urana je u suštini vezano za strukture i kontakte, kao i kod ležišta Mezdreja sa tim što po Gertiku (2003), meteorske vode su bile manje zagrejane.



Slika 33. Pregledna topografska karta rudnika Gabrovnica, SASPlanet OSM 4umaps.eu



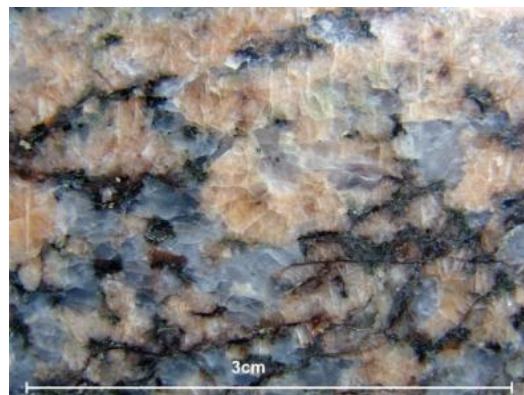
Slika 34. Ortofoto satelitski snimak rudnika Gabrovnica sa opservacionim tačkama (narandžasto). SASPlanet, Bing satellite

Kao reprezenti uzorkovani su svež granit u blizini jame (Slika 35) i granit iz jalovišta. Izmereno je 240 cps i  $0.210 \mu\text{Sv}/\text{h}$  na ulazu u jamu i 360 cps i  $0.248 \mu\text{Sv}/\text{h}$  na jalovištu. Generalno konstatovana je manja radioaktivnost nego kod lokaliteta Mezdraja.

U uzorkovanim granitima najdominantniji su ružičasti K-feldspat i beli ortoklas (Slika 36).



Slika 35. Uлaz u jamu Gabrovnica



Slika 36. Makro snimak poliranog uzorak granita lokaliteta Gabrovnica, sa ružičastim K feldspatima i belim ortoklasima

Tokom 1966. godine, dolazi do prekida svake aktivnosti u pogledu rudarenja i proizvodnje urana, tada je izvršena konzervacija postojećih rudnika i postrojenja koja su izgrađena u Gabrovniци i Mezdreji. U sklopu rudnika „Mezdreja“ postojalo je manje postrojenje za preradu rude kapaciteta 60/t na dan. Kod rudnika „Gabrovnica“ izgrađeno je veće postrojenje kapaciteta 200 t/dan. U rudniku "Mezdreja" vršeno je samo probno otkopavanje, a u rudniku "Gabrovnica" skoro sva ruda je otkopana.

## **6. GEOLOŠKE I RADIMETRIJSKE KARAKTERISTIKE UZORAKA IZ CRNIH GRAFITIČNIH ŠKRILJACA INOVSKE SERIJE**

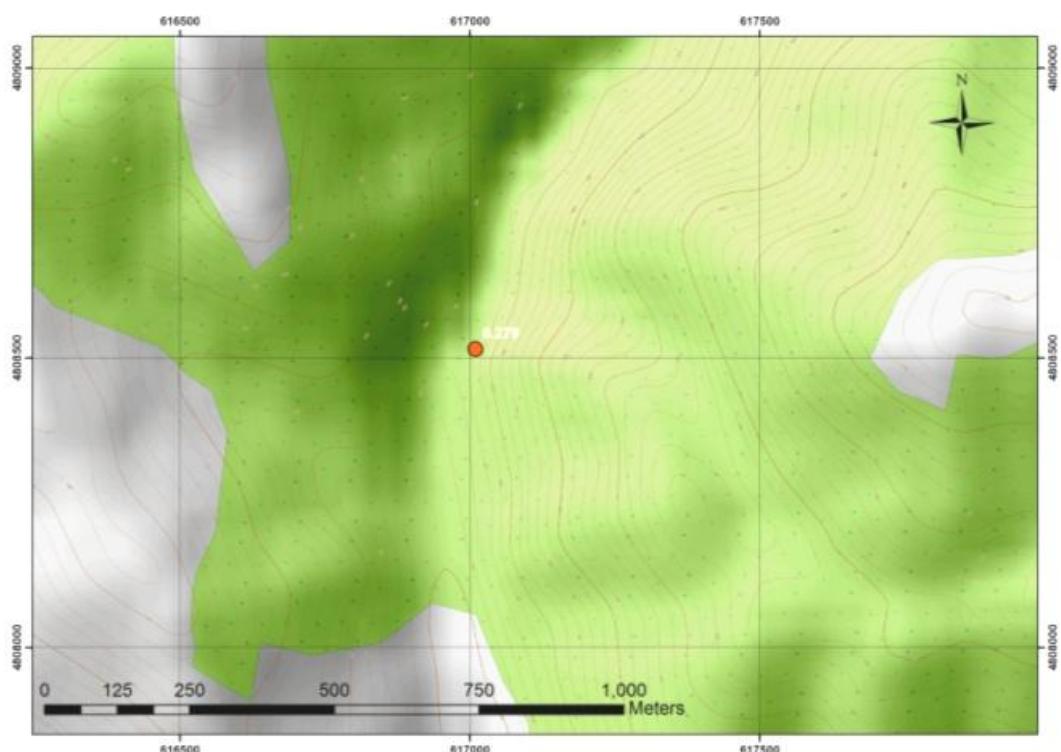
Za starost "Inovske serije" nema paleontoloških dokaza ali se smatra da je verovatno gornjokambrijske starosti. Serija počinje metakonglomeratima, a u njoj su najčešći argilošisti.

Leži trasgresivno preko jugozapadnog dela granit-metamorfnog sistema Janje. U osnovi ovog sedimentno-metamorfnog paketa su metakonglomerati i metapeščari Krstić i dr. (1976). Preko njih se razvijeni metapeščari sa argilofilitima, dok su u gornjem delu razvijeni škriljci. Izgrađena je od hloritsko-filitskih škriljaca, zelenih škriljaca, amfibolita, grafitičnih škriljaca, grauvaka i konglomerata.

Na mestima gde leži preko rifejsko-kambrijskog kompleksa, inovska serija počinje metakonglomeratima debljine do 100 m. Ovi konglomerati sadrže valutke kristalastih škriljaca iz rifejsko-kambrijskog kompleksa Stare planine, semimetamorfnih stena iz gornjih horizonata ovog kompleksa i fragmenata magmatita tog kompleksa. Matriks konglomerata je psamitsko-pelitski, retko psamitsko-karbonatni ili karbonatno-sericitsko-hloritski. Među mineralima matriksa zapažen je kvarc, albit, mikroklin, sericit, kalcit, rutil, sfen, aktinolit, metalični i drugi minerali. Fragmenti su slabo zaobljeni i nisu pretrpeли dug transport; oni se sastoje od stena koje su zapažene u podini na Staroj planini. Sa konglomeratima se naizmenično smenjuju metamorfisane konglomeratične arkoze i argilošisti. Metamorfisane konglomeratične arkoze su izgrađene od fragmenata kvarca, plagioklasa, mikroklina, hloritskih i čistih kvarcita sa retkim zrnima turmalina, kvarc-biotitskih metapeščara i odlomaka granitoidnih stena. Jako uškriljen matriks se sastoji od kriptokristalaste, ređe mikrozrnaste silicije, sa subparalelnim trakama sericita, hlorita, malo glinovite komponente i grafitskog praha Krstić i dr. (1976). Struktura stene je filonitska. U sastav argilošista ulaze hlorit, sericit, kvarc, čestice organskog porekla i gline. One čine pelitsku masu u kojoj su metamorfizmom nastali sitni porfiroblasti kvarca i hlorita. Struktura stene je blastopelitska.

Metapeščari i škriljci Inovske serije su ispresecani kvarcnim žicama debljine do 20cm. Gertik (2003) ukazuje da povećane koncentracije urana u metamorfitima, posebno u ovom slučaju silurske starosti, ukazuju na mogućnost pojave većih koncentracija metamorfogenog tipa, nastalih preraspodelom rudnih komponenti u uslovima dinamičko-termičkog metamorfizma.

Napomenuli bi da se pojava nalazi u relativnoj blizini ležišta Gabrovnica, 2,5km jugoistočno i 1,3km jugozapadno od najbliže kartirane tačke granita Janje (Slike 37 i 38).



Slika 37. Topografska karta lokalitete "Inovska reka". Raster osnova je SASPlanet, OSM - OpenTopoMap



Slika 38. Ortofotograf satelitskog snimka lokaliteta "Inovska reka". Raster osnova je SASPlanet, Bing satellite

U metamorfitima radioaktivnost ne zavisi samo od osnovnog sastava i geochemijskih karakteristika sedimentnih i magmatskih stena, od kojih su metamorfiti nastali nego i od stepena metamorfizma.

Uopšteno, sadržaj radioaktivnih elemenata u metamorfnih stena zavisi od dva glavna faktora:

1. Od njihove koncentraciji u matičnim stenama i
2. Od stepena transformacije ovih stena tokom metamorfizma.

Najviše su obagaćene radioaktivnim elementima, metamorfne stene sa grafitom, garfittični škriljci i druge stene, bogate organskim materijama, kao fosfatima i one nastale od granitnog materijala Abruzov (2011).

Pojava Inovska reka se nalazi u reci (obalama), razvijena je u izlomljenim i izmenjenim brečoidnim peščarima sa proslojcima i sočivima crnih graftičnih škriljaca debljine od 50 do 70m (Slika 39 i 40).



Slika 39. Izdanak grafitičnog škriljca  
"Inovska reka"



Slika 40. Limonitisane partie (braonkasto)  
i kvarcene žice (belo gore desno na  
fotografiji pored čekića).

U gornjem delu paketa se nalaze slojevi krupnozrnih i sitnozrnih metapeščara sa interkalacijama crnih glinovitih škriljaca. U donjem delu razvijeni su brečasti arkozni metapeščari. Paket pada prema severoistoku pod uglom od 70 do 80°.

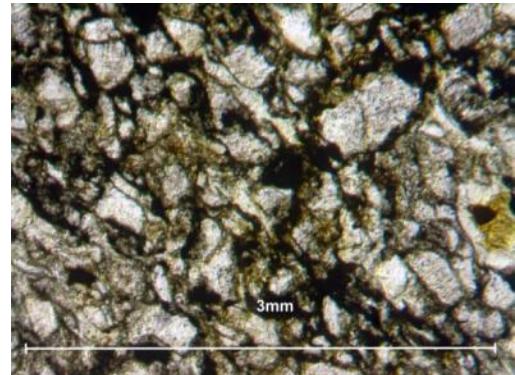
Uranska mineralizacija se prisutna u vidu izduženih sočiva u pravcu pada prateći slojeve metasedimenata između krupnozrnih metapeščara i crnih glinovitih škriljaca, sočivasto rudno telo se može pratiti po padu do 30m. Rudna tela su izgrađena od karbonatisanog, piritisanog, hloritisanog i sericitisanog mikrokonglomerata do arkoznog peščara sa tragovima halkopirita i galenita.

Uzeto je više uzoraka, ovde su prikazani podaci za uzorak sa manje i više grafitičnog materijala (slike 41 i 43). Merenjem sa Niton XRF goldd + je konstatovano da uzorak sa više grafitičnog materijala nosi veću količinu urana. Takođe uzorak sa više grafitičnog materijala je krhk i konstatovane su limonitske skrame po pravcima uškriljenja stene. Izmerena radioaktivnost na mestu uzorkovanja iznosi 650 cps i 0,279  $\mu$ Sv/h.

Kod petroloških preparata konstatovano je da svetlij i tvrđi varijitet nosi više petrogenih minerala, a manje grafitičnog materijala, takođe u petrološkim preparatima su uočene limonitske skrame (Slike 42 i 44).



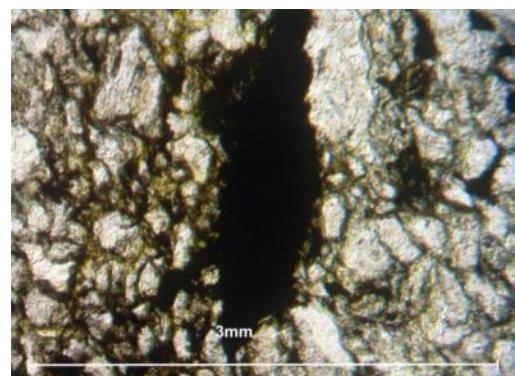
Slika 41. Grafitični škriljac "Inovske serije" sa manje organskog materijala. Prelom je oštar. Na tketoniziranim delovima se uočavaju limonitne skrame. U gornjem delu uzorka se uočava sočivo sa kvarcom i silifikovanim materijalom.



Slika 42. Mikroskopski presek uzorka sa manje organskog materijala. Obj.8x//N.



Slika 43. Grafitični škriljac "Inovske serije" sa više organskog materijala. Uočava se jasna slojevitost i limonitizacija po uzorku.



Slika 44. Mikroskopski presek uzorka sa više organskog materijala. U centralnom delu je koncentracija grafitičnog materijala (crno). Obj.8x//N.

Kako su ova dva uzorka na relativno bliskom rastojanju i njihove promene variraju na decimetarskom nivou, radioaktivnost je merena u laboratoriji instituta Vinča na homogenizovanom uzorku od oba pomenuta varijeteta grafitičnih škriljaca inovske serije.

## **7. GEOLOŠKE I RADIOMETRIJSKE KARAKTERISTIKE UZORAKA I "ŠARENE SERIJE"**

Iz razloga ispitivanja litoloških i hemijskih karakteristika nosioca epigenteskih koncentracija urana reistražena je poznata zona Jelovica - Dojkinci u "šarenoj seriji" izgrađenoj od donje trijaskih i permskih sedimenata generalno crvene boje sa interkalacijama sive i sivo-zelene boje.

Prostor je poznat kao klastiti Stare Planine koji predstavljaju formaciju sa jasno definisanom kontinualnom sedimentacionom sredinom. Sedimentacija se odvijala u uslovima kontinentalne vlažne i tople klime.

Na geološkoj karti lista Pirot observacione tačke u okviru šarene serije se nalaze u oblasti definisanoj kao donji trijas. Poznati prostori sa povišenim vrednostima na uran se nalaze u delu terena lokalnosti Dojkinci - Jelovica. Uzorci su uzeti iz dela koje bi se moglo nazvati pojava "Jelovica". Pojava se nalazi od granice rifeo-kambrijskih škriljaca pa do pojave sivih alevrolita prema ušću Jelovice sa Dojkinačkom rekom.

Geologija je predstavljena kontinentalnim tvorevinama izgraženih od fragmenata kristalastih škriljaca i granita, svetlo crvenih kvarcnih konglomerata i crvenih peščara. U gornjem delu šarene serije su razvijeni laporci i peskoviti krečnjaci srednjeg trijasa. Opisane osnovne karakteristike geološke karakteristike ispitivanih jedinica su uglavnim sa lokaliteta Dojkinci i Jelovica.

Iz pravca severa tokom ispitivanja šarene serije donje-trijaski (permotrijaski) sedimenti su u kontaktu sa rifeo kambrijskim škriljcima. Regionalni metamorfizam ovih stena odgovara faciji zelenih škriljaca.

Mladu, postkinematsku fazu metamorfizma predstavljaju slabe kontaktno-metamorfne promene, koje su za sada konstatovane isključivo u metasedimentima. To su metapelitsko-psamitske tvorevine u kojima preovlađuju bivši peliti. U fazi regionalnog metamorfizma ove stene su promenjene do facije zelenih škriljaca. One imaju vrlo

izraženu folijaciju i karakterističnu sivo-zelenu boju (slike 45 i 46). Ove promene su nastale pod uticajem granodiorita čiji se manji deo nalazi na našoj teritoriji, a glavna masa je u Bugarskoj.



Slika 45. Blok zelenih škriljaca 300 m severoistočno od opservacione tačke T1 conglomerates sa slike 32.



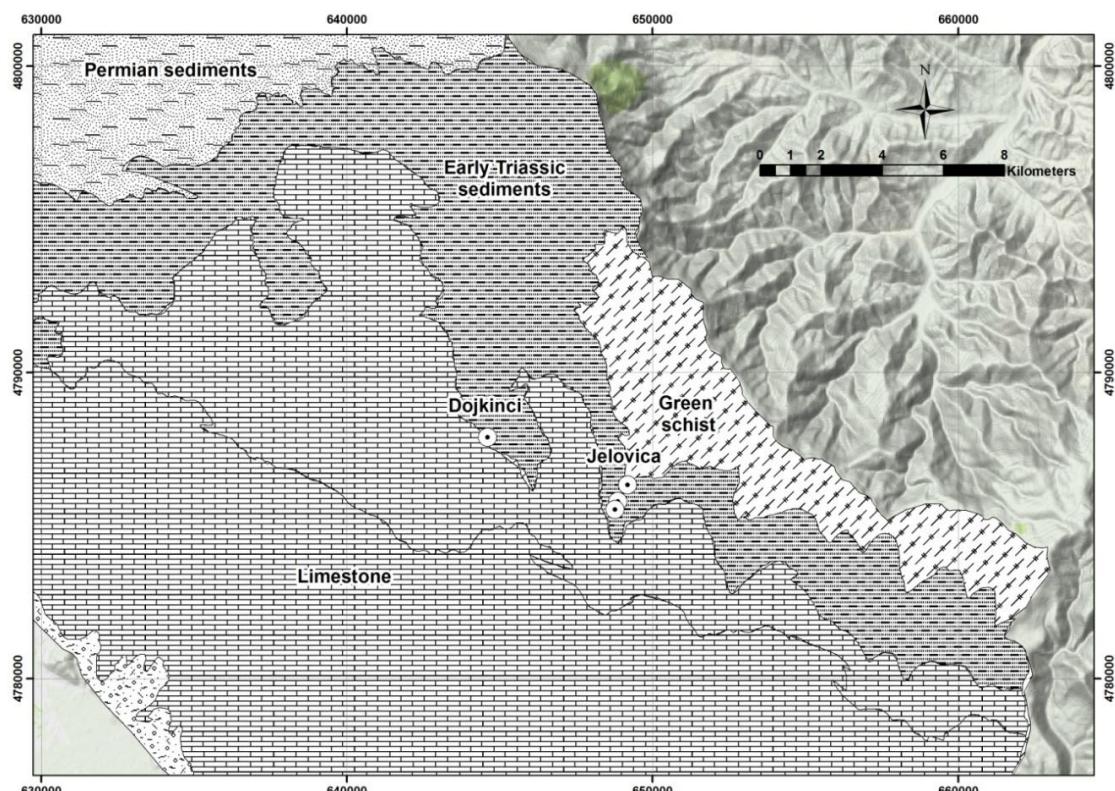
Slika 46. Karakterističan izgled zelenih škriljaca bloka prikazanog na slici 30.

Donji trijas je transgresivan preko kristalastih škriljaca, granita i crvenih peščara perma; u severozapadnoj Bugarskoj slojevi donjeg trijasa mestimice zaklapaju ugao od 5 do  $10^{\circ}$  sa slojevima perma. Trijas počinje kvarcnim peščarima i konglomeratima bele i ružičaste boje, koji naviše postupno prelaze u krupnozme subarkoze (subarkozna jedinica). Preko ove jedinice konkordantno leže srednjozrne arkoze (arkozna jedinica). Poslednje dve jedinice su na karti lista Pirot objedinjene kao "šareni peščari, arkoze, alevroliti i glinci". Sedimentacija u permu ukazuje na postepeno izravnjanje reljefa, a u donjem trijasu sedimenti se talože na ravnom dnu u tektonski mirnim uslovima. Materijal se duže transportuje, dobro zaobljava i dobro sortira. Klima je topla i vlažna (povremeno sušna) a vode su kisele i agresivne, tako da procesi raspadanja intenzivno deluju; odstranjuju se nestabilni minerali i ostaje stabilan kvarc, Andelković i dr. (1977).

Karakteristična crvena boja potiče od hidroksida Fe koji su se u velikoj meri deponovali kao vezivo, njihovo rašireno prisustvo ukazuje na intenzivni priliv Fe i to iz gabroida Zaglavka (graniti nose izrazito manju količinu Fe) proces interakcije i veze Fe - U je prikazan niže u tekstu.

Na prostoru Dojkinaca od permo-trijaskih (donje trijaskih) sedimenata zastupljeni su članovi nazvani: "kopren" i "dojkinci". Član "kopren" najvećim delom je izgrađen od krupnozrnih kvarcnih peščara i konglomerata crvene boje sa karakterističnom kosom slojevitošću. Debljina ovog člana na području Dojkinaca iznosi 200-250 m.

Preko sedimenata člana "kopren" konkordantno leže šareni peščari člana "dojkinci". To su pretežno sitnozrni i srednjezrni peščari sa proslojcima alevrolita. Veoma su dobro uslojeni, srednje sortirani, često dosta liskunoviti. Najčešće su sivozelene, ređe rumenkaste i crvene boje. Debljina ovoga člana na području Dojkinaca je od 120-200 m.



Slika 47. Šematzovana geološka karta prostora Dojkinci-Jelovica sa pozicijama observacije karakterističnih geoločkih jedinica donjem trijasa nosioca povišene radioaktivnosti

Pojava Jelovica se nalazi u klastičnim sedimentima šarene serije tzv. član Dojkinci. Gde su u nižim delovima paketa razvijeni crveni konglomeratični peščar a u gornjoj laporci i krečnjaci. Boja u peščarima varira od crvene u donjem delu serije do zelenkaste u gornjem. Povišeni sadržaji urana konstatovani su kod sivih alevrolita.

Na području Jelovice nalazi se potpun profil serije šarenih peščara sa svim litološkim članovima karakterističnim za ovu seriju. Preko škriljaca, koji su otkriveni u dolini Jelovičke reke, leže konglomerati i konglomeratični crveni peščari, koji se smenuju sa crvenim alevrolitima i postupno prelaze u šarenu seriju. U seriji šarenih peščara javljaju se sitno do srednjezrni peščari crvene i zelenkaste boje. Crvena boja preovlađuje u donjem delu serije, dok idući na više počinju da dominiraju sedimenti zelene boje. To je posebno izraženo kod alevrolita, gde se u donjem delu serije nalaze isključivo crveni alevroliti, dok u višim horizontima preovlađuju zelenkasti. Za alevrolite sa područja Jelovice je još karakteristično da se crveni obično javljaju u obliku kontinuiranih slojeva, debljine i do 3-4 m, dok su sivi alevroliti u obliku tankih proslojaka i sočiva. Alevroliti kao fragmenti veoma često ulaze u sastav zelenkastih, sivih i drugih peščara. Ponekad je koncentracija ovih fragmenata tolika da prelazi u konglomerate (intraformacioni konglomerati). Naviše serija šarenih peščara prelazi u laporce i krečnjake.

U smislu objašnjenja koncentracije urana u crvenim članovima "šarene serije" treba napomenuti da redukcija mobilnog urana ( $U^{6+}$ ) do nerastvornog urana ( $U^{4+}$ ) kao što su pehblenda, odnosno uraninit, se odvija onda kada opadne fugasnost kiseonika u rastvoru. Ova reakcija odvija na račun oksidacije gvoždja ili sumpora. Kada je rastvor (voda) obogaćena sa kiseonikom, doći će do oksidacije dvovalentnog do trovalentnog gvoždja, ali ako je  $Fe^{2+}$  prisutno u višku u odnosu na kiseonik, istrošiće se kiseonik i tada, je kao oksidacioni agens uranil jon koji prevodi dvovalentno gvoždje do trovalentnog, ili sulfida do sulfata, a sam se pritom taloži kao pehblenda ili uraninit. Poznato je iz geološke prakse da se u prirodi prilikom oksidacije gvoždja može nagraditi i hematit koji sadrži uraninit Rich et.al. (1977).

Kajitani (1960) i Muto et al. (1965) ukazuju da se uranil jon najefikasnije vezuje za limonit, pri pH 7. U vodenim rastvorima, pri tim pH vrednostima uranil jon gradi komplekse sa karbonatnim jonom. Takođe pretpostavlja se da je pri tim pH vrednostima koloidni rastvor  $Fe^{3+}$  pozitivno nelektrisan, pa zato privlači i vezuje negativne karbonatne komplekse uranil jona i sa sobom ih taloži. Kako pri tim pH vrednostima karbonatni kompleks urana ne može da ima pozitivno nanelektrisanje, taloženje sa feri-

hidroksidom pri pH 7 je najefikasnije, tako da pretpostavka o nanelektrisanju voluminoznog koloida Fe jona mora da je tačna. S prolaskom vremena talog hidroksida stari i prelazi u limonit.

Mineralizovane stene (peščari) na ispitivanom području Dojkinci - Jelovica najvećim delom su izgradjene od kvarca, feldspata, manje liskuna i retko hlorita. Kvarc je najzastupljeniji mineral u ovim sedimentima. Najčešće je bele boje, dosta redje ružičaste. Zaobljenost zrna često je dosta neujednačena i često su korodovana po obodu. Feldspati su znatno podredjeniji u odnosu na kvarc, a i zrna su im sitnija. Ortoklas je često potpuno sericitisan. Plagioklasi su retki i takodje sericitisani. Liskuni su malo količinski zastupljeni, ali uvek prisutni u mineralizovanim delovima, preovladjuje biotit, a muskovita je manje. Vezivo je najčešće karbonatni cement koji se nalazi u pojedinim partijama kao bazni (u osnovi) i uglavnom je kontaktni i porni. Na kontaktu se javlja i hematitski cement, nekad u vidu prevlaka, a često se nalaze i minerali glina (slike 48 i 49).

Mikroskopskim ispitivanjima konstatovano je da karakterističan primerak peščara šarene serije je tamno "hematit" crvene do sive boje, psamitske strukture, izgrađen je od kvarca, ortoklasa, plagioklasa, muskovita, biotita, apatita, epidota, hlorita i odlomaka metamorfta. Zrna su od neloliko desetina do 100 izuzetno 500 µm. Lokalno u kvarcu je konstatovan cirkon. Ortoklasa ima više od plagioklase. Zrna su intenzivno alterisana u glinovite minerale i sericitisana. Kod pojedinih zrna se uočavaju izdvajanja albita. Plagioklasi su takođe sericitisani i kalcitisani. Kvarc, ortoklas i plagioklas su uglastih formi nezaobljenih ivica. Liskuni su linearne orijentisani i lokalno grade gnezdaste forme. Apatit je zaobljen. Epidot je razvijen kao samostalne individue. Vezivo je gvožđeđeđito-karbonatno. Uzorak je uzet kao "reprezent" iz pravca kontakta sa metamorfitima, a pre pojava sivih alevrolita, Radošević i Stojanović (1984). Na mestu uzorkovanja izmereno 120 cps i 0,172 µSv/h.



Slika 48. Kartakterističan izdanak crvenog peščara donjeg trijasa u rejonu Jelovice.



Slika 49. Makro snimak svežeg preloma crvenog peščara donjeg trijasa u rejonu Jelovice.

Sivi alevrolit je stena pelitsko-psamitske strukture, školjkastog preloma i kompaktan. Izgrađen je od glinovito-sericitskog materijala na nešto gvožđevite meterije - pomenuti čini bazalni cement. Pored toga prisutan je sitni oštroivičasti kvarc sa liskama muskovita i biotita koji se pretvara u gvožđevitu materiju i hlorit. Prisutni su retki metalični minerali i sitni fragmenti organskog materijala. Sivi alevroliti su relativno malo zastupljeni i verovatno su nastali kao talog lokalnih malih jezera i močvara. Konkretno ispitivani uzorak je uzet na redox kontaktu sivih i crvenkastih alevrolita gde se granulacija i dimenzije fragmenata povećavaju od mesta uzorkovanja prema podlozi (u nivou puta) Radošević i Stojanović (1984). Izmerena radioaktivnost je 280 cps i  $0,429 \mu\text{Sv}/\text{h}$  u redox zoni, Slike 50 i 51.

Obaranje urana u ovom slučaju bi se moglo objasniti adsorpcijom glinama i organskim materijalom. Proces se odvija u prisustvu specifičnih adsorbenata kao što su minerali glina, limonit, karbonatni sedimentni materijal iii organske materije-huminske kiseline ili kaustobioliti sa kojima uranonosni rastvor dolazi u kontakt. Muto et al. (1965) su ispitivali adsorpciju urana na glinama koje su često prisutne u prirodi: na montmorilonitu, na halojzitu i na kaolinu. Njihovi rezultati su pokazali da je fiksacija urana najefikasnija u pH intervalu od 6,1 do 6,2. Kako montmorilonit poseduje veći jonoizmenjivački kapacitet od kaolina, (oko 3 puta). Montmorilonit može da veže oko 10.000 miliekvivalenta urana na gram mase gline, što znači da će kaolin vezati samo trećinu od te količine.



Slika 50. Redoks kontakt, povišene radioaktivnosti crvenog i sivog alevrolita u rejonu Jelovice.



Slika 51. Makro snimak sivog alevrolita iz redoks zone donjeg trijasa Jelovice, u centru, crno je organski materijal.

Što se tiče konstatovanog organskog materijala u sivim alevrolitima pomenuli bi da su huminske kiseline vrlo efikasni adsorbenti mnogih teških i toksičnih metala, pa i urana. Tako je još 1958., Szalay načinio eksperiment adsorpcije uranil jona na huminske kiseline i pokazao da one mogu da adsorbuju uran već pri pH 2 do 3, a maksimum adsorpcije je postigao na pH oko 5 do 6.

Mereno na području "Pakleški vrh-Bandera-Ponor" pH vode je 5,9 što je pogodna sredina za iznošenje urana. Na području Dojkinaca pH je oko 7 lokalno 7,4. Pored toga u vodama u rejonu Dojkinci - Jelovica, Nikić et al. (2008). je konstatovana slabija migrativnost urana i redukciona sredina kao i povećanje koncentracije Mo, a u izdanima Jelovice Se. Na širem području oko pojave "Jelovca-Dojkinci" na osnovu radiometrijskih analiza jezgara bušotina kao i ispitivanja podzemnih i površinskih voda konstatovano je da se uran i radijum uglavnom nalaze u ravnotežnom odnosu što ukazuje da u tim delovima nema značajnijeg prinošenja ili odnošenja urana. Lokalno, ipak je radioaktivna ravnoteža pomerena u korist urana, što ukazuje da postoji savremeno deponovanje. Prikupljeni podaci dakle ukazuju na to da proces prinošenja urana i stvaranje infiltracionih ležišta u ovom prostoru postoji i danas. Vode su hidrokarbonatnog i karbonatnog tipa i u tom slučaju deo radijuma može da bude ispran.

Deponovanje urana vrši se u redukcionoj sredini tj. posle smenjivanja oksidacionih redukcionih uslova. Kao reduktori urana najveći ideo ima organska materija, zatim

jedinjenja gvožđa i minerali glina. U zoni geochemijske barijere u permo-trijaskim sedimentima vrednosti pH kreću se oko 7, a Eh oko 140 mV.

Iz mineralizovanih rastvora koje se kreću oksidacionom zonom, pri nailasku na zonu delimične oksidacije, najpre se vrši deponovanje selena, zatim u redukcionoj sredini deponovanje urana da bi se na kraju stvarale koncentracije molibdена. Ovakva zonalnost ukazuje na smer kretanja rudonosnih rastvora.

U toku sedimentacije bilo je povremenog priliva biljnog materijala u vidu detritusa i to naročito u donjem nivou šarenih peščara (konstatovano našim istraživanjima u sivim alevrolitima). Prinos biljnog materijala bio je dovoljno velik pa se mogla obrazovati intenzivna redukciona sredina pogodna za stvaranje sivih peščara.

Organska materija je jedan od najvažnijih agenasa koji u redukcionoj sredini vrši apsorpciju urana. Prema organopetrografske ispitivanjima organska materija koja se nalazi u zoni geochemijske barijere u permo-trijaskim sedimentima Stare planine je uglavnom ugljevitog tipa, a predstavljena je humitom, interitom i rezinitom. Prema stepenu refleksije humita, organska materija se nalazi na stupnju metamorfizma koji odgovara kamenim ugljevima. Tokovi podzemnih voda su tesno povezani sa veličinom poroznosti pojedinih stena. U sredini koja je sastavljena od različite propustljivosti, uranonosni rastvori se pretežno kreću kroz porozne stene gde se i vrši obaranje urana kada takvi rastvori nađu na redukcionu sredinu. U povlati i podini su vodonepropusne stene.

Uranska mineralizacija se najčešće nalazi u vidu impregnacija u piritisanim alevrolitičnim peščarima. Pored toga mineralizacija se javlja i duž površina slojevitosti kod alevrolita ili duž vertikalnih pukotina u peščarima. Intenzivnu uransku mineralizaciju prati ugljenisana biljna materija, impregnacije sulfida i to pre svaga halkopirita, zatim pirita i galenita, a sve to prati promena poroznosti stena.

Uranska mineralizacija se javlja u vidu pehblende, praškaste pehblende, a sa malom sigurnošću (samo u jednoj bušotini) i kofinita.

**Pehblenda** je najznačajniji uranov mineral u šarenim peščarima Stare planine. Nalazi se u vidu oreola oko organskog materijala, zrna pirita ili halkopirita ili u vidu sitnih agregata u cementnoj materiji peščara. Takodje se nalazi i u mikroprslinama koje nekad seknu i detritična zrna. Zastupljena je u svim peščarima, a posebno na području ležišta Dojkinci i to na delovima koji su bogatiji ugljenisanom biljnom materijom. Međutim, česta je pojava da su ugljenisani biljni ostaci samo jednim delom mineralizovani dok su drugi vrlo malo ili potpuno sterilni. Položaj pehblende u odnosu na sulfide za koje je najčešće vezana (oreol) može da ukaže da je ovaj mineral mlađi od njih.

**Praškasta pehblenda** se javlja uglavnom u vidu impregnacija u alevrolitičnim peščarima koji u sebi sadrže dosta organske materije i sulfida i to pre svega halkopirita zatim pirita i galenita. Pored toga praškasta pehblenda se redje nalazi i duž površina slojevitosti kod alevrolita.

Prisustvo kofinita nije sa sigurnošću potvrđeno. S obzirom na druga ležišta sličnog tipa (Žirovski vrh) u kojima je otkriven tek mikrosondom njegovo prisustvo u ležištu Dojkinci tek treba sa sigurnošću potvrditi. Migracijom silicije eventualno ranije stvoren kofinit u ležištu Dojkinci mogao je da predje u pehblendu.

**Pirit** je najzastupljeniji sulfidni mineral u uransko mineralizovanim delovima šarenih peščara. Njegove povećane koncentracije naročito su izražene i sivim peščarima. Makroskopski se može zapaziti naročito u prisustvu ugljenisane organske materije kada gradi žice debljine do nekoliko milimetara.

**Halkopirit** je najzastupljeniji bakrov mineral koji prati uransku mineralizaciju. Njegovo prisustvo je stalno u svim do sada otkrivenim rudnim telima, pa pri eventualnoj eksploataciji urana mogao bi imati i ekonomsku vrednost.

**Galenit** nije stalni pratilac uranske mineralizacije u šarenim peščarima Stare planine i vrlo retko se makroskopski zapaža. Najčešće je rasut u cementnoj materiji peščara.

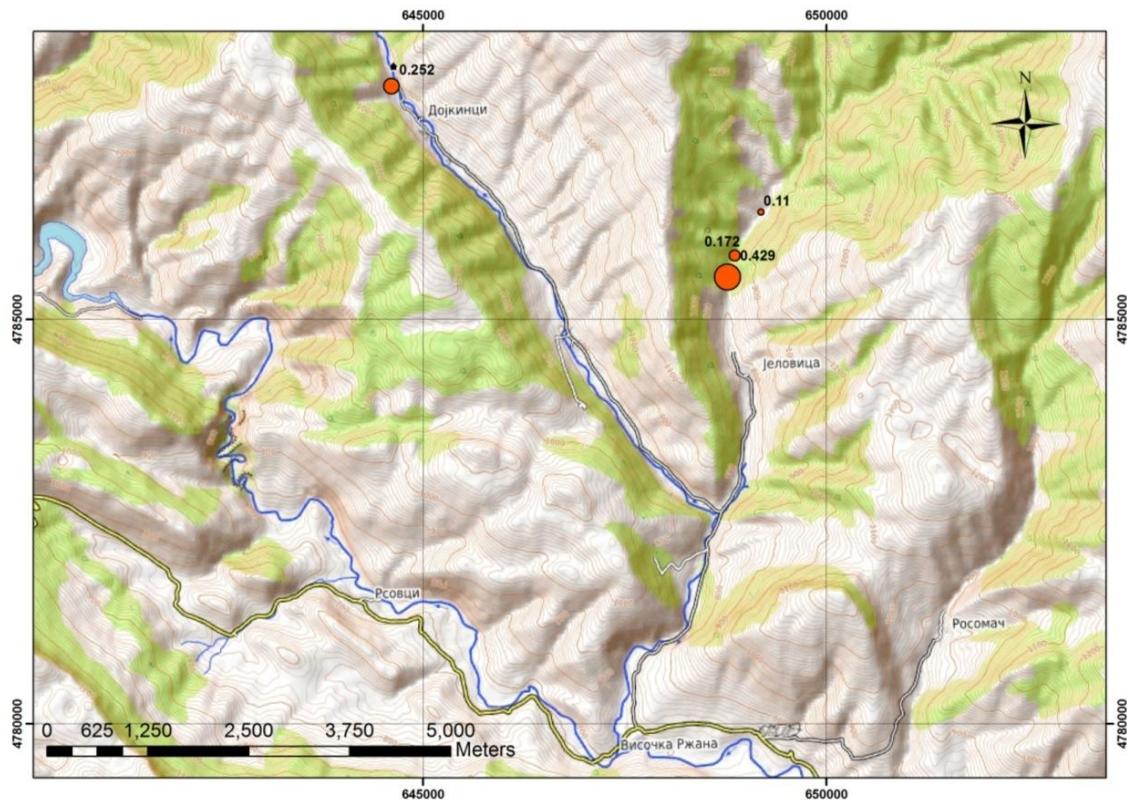
Pored nabrojanih minerala uransku mineralizaciju prate u nešto manjem obimu sfalerit, markasit,

Pomenuti sulfidi, pirit, halkopirit i galenit ukazuju na verovatne hidrotermalne epizode posle konstitucije šarenih peščara mada prateće karakteristične hidrotermalne alteracije nisu konstatovane. Ovo takođe ukazuje na kasniju moguću hidrotermalnu remobilizaciju urana iz primarnih izvora (granita) duž strukturnih sistema, ali ova teza zahteva dodatna detaljna geloška i strukturalna ispitivanja koja u ovom trenutku nemaju ekonomsku opravdanost.

Uzorak prikazan niže se nalazi na ivici puta i kontinualno se materijal iz ovog izdanka i sličnih se sigurno ocednim vodama i spiranjem prilikom topljenja snega i velikih kiša odnosi u Jelovičku reku koja je pritoka Dojkinačke, a potom u Visočicu.

Sa aspekta zaštite životne sredine daćemo kratak osvrt na ispitivanja vode u "šarenoj seriji".

Suština je da i crveni peščari nose male ali ipak merljive koncentracije urana koji se ocedni vodama vodotokovima prenosi dalje u sliv Visočice.



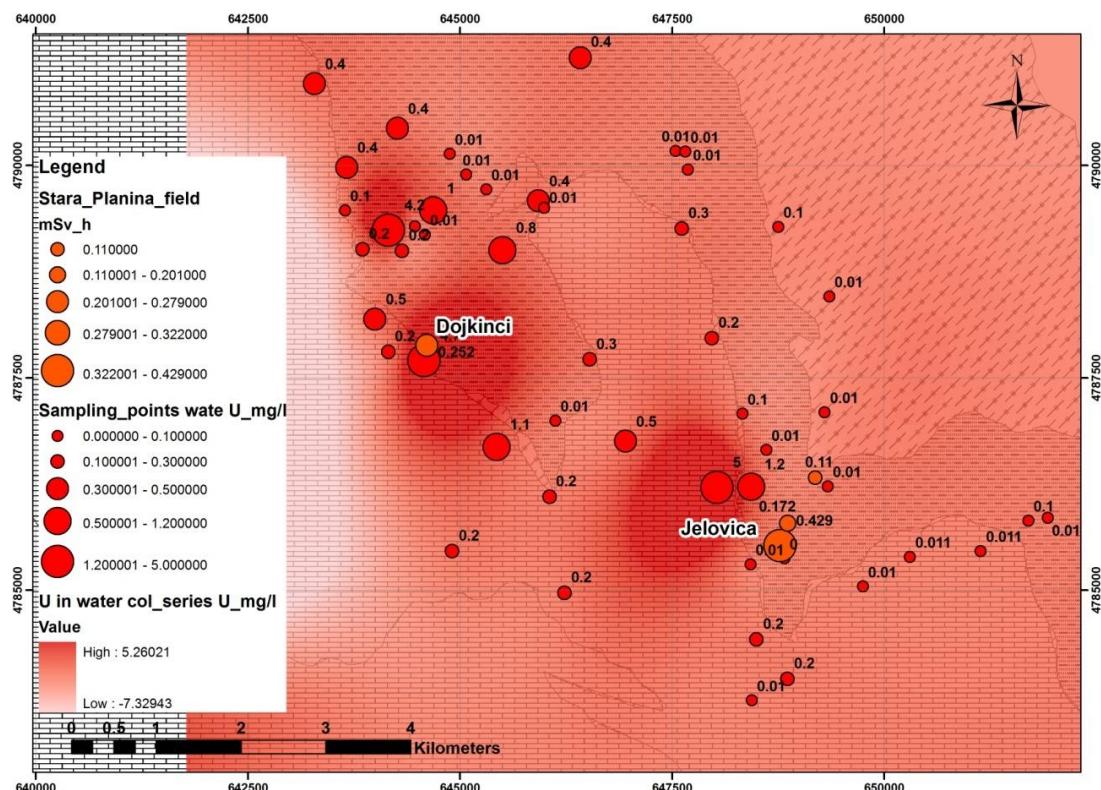
Slika 52. Topografska karta ušća Jelovičke i Dojkinačke reke, i ušća Dojkinaške reke u Visočicu sa opservacionim tačkama iz 2016 godine.

Ovde ćemo dati krataku analizu ispitivanja podzemnih voda, sada sa aspekta prikaza prirodne radiaktivnosti u sedimentima donjeg trijasa Stare planine, na ovaj način ovi podaci do sada nisu prikazani.

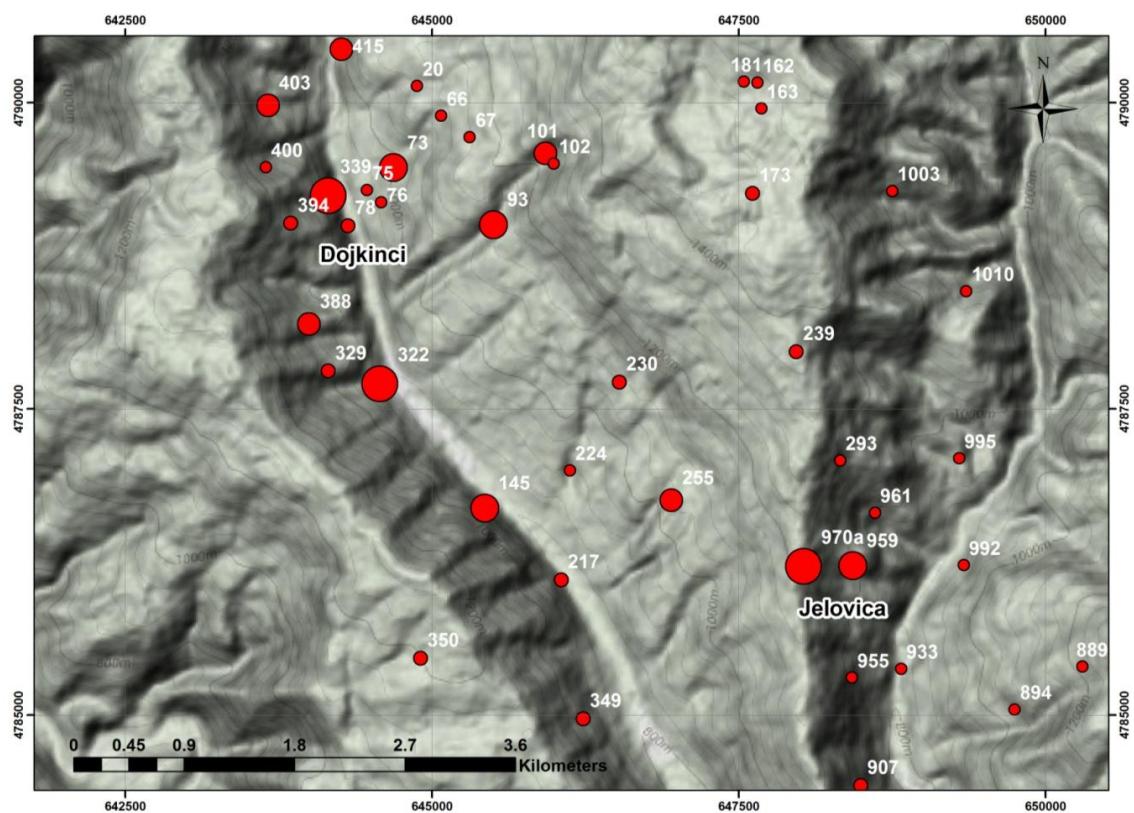
Ispitivanjima Geoinstituta iz 1984 konstatovane su različite koncentracije urana u vodama, ovde dajemo podatke iz pomenute studije, obrađene u GIS-u 2017 radi bolje prostorne observacije koncentracije urana u vodama ispitivanog područja "šarene serije".

Merene koncentracije urana u vodama su od 0,2 - do 5  $\mu\text{g/l}$ , najviše koncentracije su konstatovane u bušotinama 970, 339 i 322 (slike 53 i 54). Takođe u tim bušotinama su konstatovane i povećane koncentracije Sr npr. u bušotini 322 - 2,75  $\mu\text{g/l}$  i u bušotini 339 - 2,53  $\mu\text{g/l}$ . Ovaj trend nije pravilo za ostale uzorke jer kod bušotine 970 gde je

konstatovano  $5 \mu\text{g/l}$  - U, a koncentracija Sr iznosi  $0,61 \mu\text{g/l}$ . Napomenuli bi još i bušotinu 912 gde je konstatovano npr.  $0,83 \mu\text{g/l}$  U i  $0,2 \mu\text{g/l}$  Sr.



Slika 53. Distribucija urana,  $\mu\text{g/l}$  u vodama "šarene serije" na prostoru Jelovica - Dojkinci.



Slika 54. Pozicije bušotina sa najvećom koncentracijom urana u vodi - u rejonu Dojkinaca 339 ( $2,53 \mu\text{g/l}$ ) i 322 ( $2,75 \mu\text{g/l}$ ) i u rejonu Jelovice 970 ( $5 \mu\text{g/l}$ )

## **8 DISKUSIJA I REZULTATI MERENJA RADIOAKTIVNOSTI I DISTRIBUCIJE POJEDINIH ELEMENATA U UZORCIMA**

Vrednosti koncentracije U, Th, Pb, kao Sr, Rb i K su date u nivoima od - do jer su merenja bila ponavljana više puta da bi se u suštini dobio opseg kretanja koncentracija u sprašenim i nesprašenim uzorcima, a i da bi se proverilo da li su odstupanja velika. Ovde, a pre prikaza rezulata hemijskih XRF analiza dajemo tabelu rezultata merenja radiaktivnosti karakterističnih petroloških predstavnika, urađene u nuklearnom institutu Vinča.

Tabela 1: Radioaktivnost karakterističnih petroloških uzoraka Stare planine

Uzorak	masa [g]	Sktivnost [Bq/kg]			
		226Ra	232Th	40K	137Cs
Mezdr_granite_mine1	524,30	142 ± 7	250 ± 10	1420 ± 60	< 0,4
Mezdr_sil_lim1	359,84	400 ± 20	188 ± 9	600 ± 30	< 0,6
Mezdr_granite2	459,73	116 ± 5	230 ± 10	1020 ± 50	< 0,4
Mzdr_clay_dump1	554,85	2600 ± 100	169 ± 8	1240 ± 60	10,8 ± 0,5
Scs_silic1	505,77	220 ± 10	141 ± 7	1420 ± 60	< 0,4
Scs_grafrc2	439,11	380 ± 20	169 ± 8	900 ± 40	3,7 ± 0,2
Gabr_mine1	552,72	58 ± 3	163 ± 8	1700 ± 80	2,3 ± 0,1
Gabr_dump1	603,55	206 ± 9	250 ± 10	1690 ± 80	4,8 ± 0,3
Siltst_gray1	465,30	102 ± 5	97 ± 5	2080 ± 90	< 0,5
Sandst_red2	495,80	28 ± 1	52 ± 3	1270 ± 60	1,6 ± 0,1

Značenje skraćenica u Tabeli 1 (uzorci): Mezdr\_granite\_mine1 - izdanak granita kod ulaza u jamu Mezdreja; Mezdr\_sil\_lim1 - silifikovani i limonitisani materijal iz okoline rudnika Mezdreja; Mezdr\_granite2 - uzorak granita sa područja rudnika Mezdreja; Mzdr\_clay\_dump1 - uzorak siromašne rude sa haldišta rudnika Mezdreja, uglavnom glinoviti materijal sa fragmentima izmenjnih granita; Scs\_silic1 - grafitični škriljac Inovske serije sa više silikatnog materijala; Scs\_grafrc2 - grafitični škriljac Inovske serije sa više grafitičnog materijala; Gabr\_mine1 - granit sa izdanka kod ulaza u jamu

rudnika Gabrovnica; Gabr\_dump1 - granit sa haldišta rudnika Gabrovnica; Siltst\_gray1 - sivi alevrolit "šarene serije"; Sandst\_red2 - crveni peščar "šarene serije.

Iz razloga prikaza geoloških i radiometrijskih karakteristika ispitivanih petroloških članova rezultate hemijskih ispitivanja dajemo u tabelarnim prikazima, a pre diskusije rezultata.

## 8.1 Rezultati i diskusija uzoraka magmatskih stena

U uzorcima granita lokaliteta Mezdreja i Gabrovnica urana ima redovno 3 do 4 puta manje nego torijuma. Kod lokaliteta Mezdreja koncentracije urana variraju od 12,21 do 14,39 ppm, a torijuma od 36,63 do 60,27 ppm. Merenjem radioaktivnosti konstatovano je da  $^{226}\text{Ra}$  izraženo u Bq/kg granita u blizini rudnika Mezdreja, kao i granita na ulazu u jamu iznosi  $116 \pm 5$  do  $142 \pm 7$ , a  $^{232}\text{Th}$  je  $230 \pm 10$  do  $250 \pm 10$  Bq/kg. Kod lokaliteta Gabrovnica koncentracije urana su od 11,61 do 21,09 ppm, a torijuma od 30,82 do 38,66 ppm. Ovde su vrednosti radioaktivnosti uzorka granita na ulazu u jamu za  $^{226}\text{Ra}$  -  $58 \pm 3$ , a granita sa halde  $206 \pm 9$ . Izmerena radioaktivnost  $^{232}\text{Th}$  granita na ulazu u jamu je  $163 \pm 8$  Bq/kg, dok granita sa haldišta iznosi  $250 \pm 10$  Bq/kg. Dakle u oba slučaja i kod Mezdreje i kod Gabrovnice koncentracije i radioaktivnost vezane za torijum su veće nego one vezane za uran. Treba napomenuti da su koncentracije Pb nešto više u Gabrovniči od 64,27 do 74,66 ppm za razliku od Mezdreje gde su koncentracije olova od 42,39 do 54,15 ppm.

Merenjima krupnih zrna ružičastog K feldspata sa lokaliteta Mezdreja, a iz kontaktne zone gabroida i granita, konstatovano je da su koncentracije urana niske od 6,5 do 6,99 ppm, dok koncentracije Th variraju od 4,56 do 9,72 ppm. Uzorak je nesprašeno zrno veličine 2 cm, mereno po bazi i preseku gde je veća koncentracija Th izmerena u preseku. Koncentracije olova su u nivou izmerenih kod uzoraka granita.

Table 2. Rezultati XRF ispitivanja elemenata indikatora radioaktivnosti u magmatskim stenama

Magmatske stene	Sr	U	Rb	Th	Pb
Mezdr_granite_mine1	636.69	12.37	79.81	36.63	53.03
Mezdr_granite_mine2	827.62	14.39	69.32	60.27	42.39
Mezdr_granite1	634.69	12.85	39.23	37.01	54.15
Mezdr_granite2	840.98	12.21	32.57	55.44	44.68
Mzd_Kfeldsp_gabb_plate	655.11	6.5	49.42	4.56	61.74
Mzd_Kfeldsp_gabb_intersec	665.36	6.99	71.2	9.72	46.64
Mezdr_silif_lim1	1962.7	0	40.26	30.25	104.22
Mezdr_silif_lim2	1850.88	0	18.84	28.42	94.31
Mzdr_clay_dump1	590.66	76.54	98.59	52.91	97.48
Mzdr_clay_dump2	749.37	77.65	54.34	43.17	103.06
Gabr_mine1	308.1	13.8	127.32	32.99	67.75
Gabr_mine2	288.82	11.61	59.35	30.82	64.27
Gabr_dump1	186.94	20.69	109.99	31.84	74.66
Gabr_dump2	189.56	21.09	56.44	38.66	69.47

Značenje skraćenica u Tabeli 2 (uzorci): Mezdr\_granite\_mine1/2 - izdanak granita kod ulaza u jamu Mezdreja; Mezdr\_granite1/2 - uzorak granita sa područija rudnika Mezdreja; Mzd\_Kfeldsp\_gabb - krupni (3cm) ružičasti K-feldspat iz gabroida kod rudnika Mezdreja (plate - proba na pljosni minerala, intersec - proba na preseku minerala); Mezdr\_silif\_lim1/2 - silifikovani i limonitisani materijal iz okoline rudnika Mezdreja; Mzdr\_clay\_dump1/2 - uzorak siromašne rude sa haldišta rudnika Mezdreja, uglavnom glinoviti materijal sa fragmentima izmenjnih granita; Gabr\_mine1/2 - granit sa izdanka kod ulaza u jamu rudnika Gabrovica; Gabr\_dump1/2 - granit sa haldišta rudnika Gabrovica

U zaglinjenom i kaolinisanom materijalu sa jalovišta ležišta Mezdreja izmerene koncentracije su više nego u svežim granitima, ali ipak niže nego u grafitom bogatim škriljcima. Vrednosti urana se kreću od 76,54 do 77,65 ppm U. U ovom slučaju Th ima manje nego U, koncentracije Th su od 43,17 do 52,91 ppm. Oovo je konstatovano u

skoro duplo višim koncentracijama nego u granitima i kreće se od 97,48 do 103,06 ppm. Pri merenju radioaktivnosti u ovom materijalu su konstatovane najviše vrednosti ekvivalenta za uran  $^{226}\text{Ra}$  od  $2600 \pm 100$  Bq/kg. Radioaktivnost  $^{232}\text{Th}$  je  $169 \pm 2$  Bq/kg i korelira sa vrednostima izmerenim kod granita Mezdreje i Gabrovnice. Kod ovog uzorka je izmerena i naveća radioaktivnost  $^{137}\text{Cs}$  od  $10,8 \pm 0,5$  Bq/kg, u odnosu na sve merene uzorke iz ovog istraživanja. U granitima Gabrovnice izmerena je radioaktivnost  $^{137}\text{Cs}$  kod jame  $2,3 \pm 0,1$ , a sa halde  $4,8 \pm 0,3$  Bq/kg. Vrednosti  $^{137}\text{Cs}$  za Mezdreju su niske i manje su od 0,6 Bq/kg.

U uzorku silifikovanog materijala iz lokaliteta Mezdreja nije konstatovan uran (LOD). Torijum je izmeren u koncentraciji od 28,42 do 30,25 ppm, a olovo od 94,31 do 104,22 što je više nego u drugim ispitivanim endogenim produktima. Interesantno je da je u ovom uzorku konstatovana najveća koncentracija kadmijuma 311,72 - 352,69 ppm. Merena radiaktivnost iznosi za  $^{226}\text{Ra}$   $400 \pm 20$  Bq/kg dok za  $^{232}\text{Th}$  je  $188 \pm 9$ .

U uzorcima materijala vezanih za granite koncentracije kalijuma su od 3,14 do 14,1 %.

## 8.2 Rezultati i diskusija analize uzorka grafitičnih škriljaca

Najveća koncentracija urana je konstatovana u grafitičnom škriljcu Inovske serije bogatom grafitičnim (organskim) materijalom 99,47 ppm, za razliku od uzorka škriljaca iste serije koji su bogatiji silikatnim materijalom i koji nose skoro 4 puta manje urana izmedju 20,99 do 27,31 ppm. Koncentracija Th je uglavnom manja od koncentracije U. Th ima skoro duplo manje kod grafitom bogatih uzoraka.

U uzorcima sa više silikatnog materijala koncentracije Th variraju od odnosa 1:2 u korist urana do 1:2 u korist torijuma. Maksimalna izmerena koncentracija Th je 42,01 ppm u grafitom bogatom uzorku. Koncentracija olova varira od 47,33 do 51,55 ppm i tada je približna koncentracijama olova u granitima, posebno lokalitetu Mezdreja, izuzetno je izmereno u intenzivno grafitičnim škriljcima (gde je i najveća koncentracija urana) 107,69 ppm Pb. Radioaktivnost je merana u obe pomenute situacije. U grafitom bogatijim škriljcima radioaktivnost  $^{226}\text{Ra}$  iznosi  $380 \pm 20$ , dok je u grafitom

siromašnjim škriljcima je  $220 \pm 10$  Bq/kg što korelira sa koncentracijama U merenim sa XRF. Radioaktivnost  $^{232}\text{Th}$  je u grafitom bogatijim škriljcima  $169 \pm 8$ , a u siromašnjim  $141 \pm 7$  Bq/kg. Izmerena radioaktivnost  $^{137}\text{Cs}$  je  $3,7 \pm 0,2$  u grafitom siromašnjem uzorku.

U grafitičnim škriljcima koncentracije kalijuma su od 3,57 do 17,57%.

Tabela 3. Rezultati XRF ispitivanja elemenata indikatora radioaktivnosti u grafitičnim škriljcima

Assays graphite schist	Sr	U	Rb	Th	Pb
Scs_grafrich1	88.88	99.47	167.62	42.01	107.69
Scs_grafrich2	115	20.99	137.85	19.29	51.55
Scs_silic1	119.65	27.31	68.6	14.35	51.11
Scs_silic2	244.78	14.69	94.96	27.06	47.33
Scs_graf_compopowder	237.61	12.52	47	20.66	50.42

Značenje skraćenica u Tabeli 3 (uzorci): Scs\_grafrich1/2 - grafitični škriljac Inovske serije sa više grafitičnog materijala; Scs\_silic1 - grafitični škriljac Inovske serije sa više silikatnog materijala; Scs\_graf\_compopowder - prah smešanog uzorka grafitičnog škriljca Inovske serije

### 8.3 Rezultati i diskusija analize uzoraka sedimenata donjeg trijasa - "šarene serije"

U sivim alevrolitima šarene serije izmerene koncentracije urana se kreću od 49,36 do 54,43 ppm, torijuma je u ovom slučaju oko 4 puta manje, izmerene vrednosti su od 11,83 do 13,13 ppm. Oovo je probližno koncentracijama Th i kreće se od 11,59 do 18,18 ppm. U ovim uzorcima su konstatovane, nešto povišene koncentracije Ba od 590,14 do 603,42 ppm. Merena radioaktivnost  $^{226}\text{Ra}$  je relativno niska  $102 \pm 5$  Bq/kg, za  $^{232}\text{Th}$  je izmereno  $97 \pm 5$ . Relativno visoke vrednosti su dobijene za  $^{40}\text{K}$  -  $2080 \pm 90$  Bq/kg. Kod ostalih uzoraka vrednosti za  $^{40}\text{K}$  su niže i iznose od  $900 \pm 40$  do  $1700 \pm$

80 Bq/kg, a najniže su kod jako silifikovanog uzorka sa limonitnim skramama iz okoline lokaliteta Mezdreja.

Crveni peščari šarene serije nose relativno male koncentracije urana od 7,78 do 12,64 ppm, a torijuma od 3,42 do 9,25 ppm. Koncentracije olova variraju od 8,42 do 11,81 ppm. Kod ovih uzoraka konstatovane su najniže vrednosti radiaaktivnosti za  $^{226}\text{Ra}$  je izmereno  $28 \pm 1$ , a vrednosti za  $^{232}\text{Th}$  iznosi  $52 \pm 3$  Bq/kg.

U uzorcima "šarene serije" koncentracije kalijuma su manje nego u uzorcima vezanim za granite i grafitičnih škriljaca i iznose u crvenim peščarima 3,22 do 8,16%, a u sivim alevrolitima su od 4,07 do 4,51%.

Za sve pomenute pojave može se uslovno reći da su prirodne. Jalovište Mezdreje i haldište Gabrovnice nose ipak neprerađen materijal. Činjenica je takođe da su pomenuti prostori relativno velikih razmara i da se u kontinuitetu radioaktivni materijal svih opisanih uzoraka ocednim vodama transportuje u vodotokove.

U intenzivno silifikovanom uzorku lokaliteta Mezdreja, Slika 18., konstatovana je najveća koncentracija stroncijuma od 1850,9 do 1962,7 ppm. U uzorcima Mezdreje, i monomineralnog ružičastog K feldspata koncentracije su 634,69 do 840,98 ppm odnosno 655,11 do 665,36 ppm, što je skoro duplo nego prosek u prirodi od 360 ppm u Zemljinoj kori.

U granitima Gabrovnice koncentracije Sr su manje i iznose od 186,94 do 308,1 ppm.

U svim sedimentnim opisanim geološkim jedinicama koncentracije stroncijuma su znatno niže i iznose uglavnom između 90 i 120 ppm izuzetno 244,78 ppm u grafitičnim škriljcima Inovske serije sa manje organskog materijala.

Table 4. Rezultati XRF ispitivanja elemenata indikatora radioaktivnosti u sedimentima donjeg trijasa

Sample	Sr	U	Rb	Th	Pb
Siltst_gray1	95.84	49.36	88.05	11.83	11.85
Siltst_gray2	92.71	49.94	86.54	12.46	11.59
Siltst_redox1	96.74	54.43	178.61	13.13	12.34
Siltst_redox2	93.59	52.02	178.27	12.88	16.13
Siltst_redox_gray1	117.28	22.93	174.09	10.77	18.18
Siltst_redox_gray2	110.23	29.31	84.86	13.7	16.45
Sandst_red1	91.08	7.78	89.21	3.56	11.81
Sandst_red2	51.46	12.64	93.92	4.76	10.35
Sandst_red_orange1	47.29	8.7	92.7	3.42	10.94
Sandst_red_orange2	97.77	9.15	89.75	9.25	8.42
Sandst_orange	94.71	9.73	44.61	7.65	10.79

Značenje skraćenica u Tabeli 4 (uzorci): Siltst\_gray1/2 - sivi alevrolit; Siltst\_redox1/2 - alevrolit iz redoks granice smešani sivi i crvenkasti varijetet; Siltst\_redox\_gray1/2 - sivi alevrolit; Sandst\_red1/2 - crveni peščar; Sandst\_red\_orange1/2 - crvenkasto - narandžasti peščar; Sandst\_orange - narandžasti peščar

#### 8.4 Diskusija rezulata prikaza ispitivanja pratećih elemenata (Zr, Rb, W, Mo, Sn, Sc, Zn, Cu, As, Sb, Ba, Ni, Cr, V and Ti)

Prikazani su rezultati ispitivanja sledećih elemenata: Zr, Rb, W, Mo, Sn, Sc, Zn, Cu, As, Sb, Ba, Ni, Cr, V and Ti.

Upoređivanje sa prosečnim sadržajima in Earth's crust je rađeno uglavnom po 1. Mellor's Modern Inorganic Chemistry (1963); 2. Inorganic Chemistry (2008). 3. Lehrbuch der Anorganischen Chemie (2007) i 4. The composition of the continental crust (1995). Na osnovu pomenute literature kao prosečni sadržaji i reperi za određeni element uslovno su uzete sledeće vrednosti in ppm: Zr - 130, Rb - 90, W - 0,7 in mafic,

1,2 in intermedijate and 1,9 in acidic rocks, Mo - 1,5, Sn - 2,3, Sc - 18 to 25, Zn - 75, Cu - 55, As - 1,5, Sb - 0,2 - 0,5, Ba - 500, Ni - 80, Cr - 102, V - 80 and Ti - 5000.

Takođe napomenuli bi (Tomanec, Vakanjac 2015) da Zr, Rb, W, Mo, Sn i Sc vode poreklo i vezani su za uglavnom kisele magmatske stene (granite, riolite i sl.) kao i za postmagmatske procese vezane za kisele stene. Zn i Cu uglavnom vezani za polimetalična srednjetemperaturna hidrotermalna ležišta, au vezi sa srednjekiselim stenama. As, Sb i Ba za nisko-temperaturne hidrotermalne procese koji su u vezi sa srednje-kiselim magmatizmom. Grupa Ni, Cr, V i Ti vodi poreklo kako iz ultrabazičnih stena, dok se pored ostalog Ni koncentriše i u likvidnim segregatima koji nastaju u prvim fazama diferencijacije magme kao i sulfidnim ležištima, a Cr u kristalizacionim diferencijatima - prvim oksidima koji takođe nastaju u početnim fazama kristalizacije primarne magme.

## 8.5 Tabelarni prikazi rezultata ispitivanja pratećih elemenata uzoraka vezanih za magmatske stene

Tabela 5. Rezultati XRF ispitivanja na Zr, Rb, W and Sn u ppm u magmatskim tvorevinama na prostoru rudnika Mezdreja i Gabrovnica

Sample	Type	Zr	Rb	W	Sn
MzdGraniteMine	Soil	212.29	79.81	101.85	2214.05
MzdGraniteMine	TestAll Geo	212.7	39.23	180.69	2124.59
MzdGranite	Soil	225.79	69.32	133.03	1576.67
MzdGranite	TestAll Geo	227.84	32.57	155.96	1678.08
MzdrKfeldGabrrPlate	Soil	108.13	49.42	<LOD	15.58
MzdrKfeldGabrrSect	Soil	35.41	71.2	<LOD	<LOD
MzdSilLim	Soil	126.09	40.26	90.74	<LOD
MzdSilLim	TestAll Geo	100.08	18.84	119.3	448.03
MzdTailDump	Soil	141.26	98.59	39.54	953.4
MzdTailDump	TestAll Geo	109.15	54.34	59.34	1017.56
GabrGraniteMine	Soil	131.37	127.32	139.43	1009.51
GabrGraniteMine	TestAll Geo	121.85	59.35	117.77	1169.5
GabrTailDump	Soil	118.57	109.99	165.64	1066.04
GabrTailDump	TestAll Geo	138.11	56.44	156.57	1207.8

Značenje skraćenica u Tabelama 5 i 6 (uzorci): MzdGraniteMine - uzorak granita sa izdanka kod ulaza u rudnik Mezdreja; MzdGranite - uzorak granita sa prostora rudnika Mezdreja; MzdrKfeldGabrr - uzorak na krupnom ružičastom (3cm) K-feldspatu; MzdSilLim - silifikovan i intenzivno limonitisan uzorak sa karbonatima uzet i situ iz alterisanog dela granita sa prožilcima lokaliteta Mezdreja; MzdTailDump - siromašna ruda sa haldišta rudnika Mezdreja kaolinisani materijal sa fragmentima izmenjnog granita; GabrGraniteMine - granit sa izdanka kod jame Gabrovnica; GabrTailDump - granit sa haldišta rudnika Gabrovnica

Tabela 6. Rezultati XRF ispitivanja na Zn, Ba, Sb i Ni u ppm u magmatskim tvorevinama na prostoru rudnika Mezdreja i Gabrovnica

Sample	Type	Zn	Ba	Sb	Ni
MzdGraniteMine	Soil	59.4	21.78	70.27	63
MzdGraniteMine	TestAll Geo	56.55	83.86	98.45	41.9
MzdGranite	Soil	46.21	25.49	<LOD	43.65
MzdGranite	TestAll Geo	41.78	101.59	64.58	43.72
MzdrKfeldGabrrPlate	Soil	45.69	3654.09	28.41	113.91
MzdrKfeldGabrrSect	Soil	21.29	5634.46	12.78	91.6
MzdSilLim	Soil	55.09	35.72	<LOD	165.92
MzdSilLim	TestAll Geo	55.87	127.75	132.04	153.43
MzdTailDump	Soil	35.24	26.63	28.61	35.21
MzdTailDump	TestAll Geo	40.28	80.59	57.75	< LOD
GabrGraniteMine	Soil	40.17	18.68	<LOD	29.1
GabrGraniteMine	TestAll Geo	37.61	112.86	38.91	25.97
GabrTailDump	Soil	40.07	143.99	<LOD	<LOD
GabrTailDump	TestAll Geo	53.3	150.87	47.27	44.29

## 8.6 Tabelarni prikazi rezultata ispitivanja pratećih elemenata uzoraka iz grafitičnih škriljaca Inovske serije

Tabela 7. Rezultati XRF ispitivanja grafitičnih škriljaca na Zr, Rb, W i Sn u ppm

Sample	Type	Zr	Rb	W	Sn
InovGraph	Soil	271.15	167.62	<LOD	2242
InovGraphSiSchist	Soil	236.91	137.85	49.7	4759
InovGraphSiSchist	TestAll Geo	235.27	68.6	< LOD	4990
InovGraphSchist	Soil	174.38	94.96	107.45	4104
InovGraphSchist	TestAll Geo	159.34	47	76.41	4166

Table 8. Rezultati XRF ispitivanja grafitičnih škriljaca na Zn, Ba, Sb i Ni u ppm

Sample	Type	Zn	Ba	Sb	Ni
InovGraph	Soil	207.23	467.2	38.01	154.1
InovGraphSiSchist	Soil	136.37	58.83	173.73	45.66
InovGraphSiSchist	TestAll Geo	142.41	178.41	274.09	59.2
InovGraphSchist	Soil	61.89	52.06	122.25	29.35
InovGraphSchist	TestAll Geo	55.36	122.97	149.75	44.46

Table 9. Rezultati XRF ispitivanja grafitičnih škriljaca na Mo, Cu, i As u ppm

Sample	Type	Mo	Cu	As
InovGraph	Soil	93.95	107.71	54.23
InovGraphSiSchist	Soil	<LOD	73.82	38.49
InovGraphSiSchist	TestAll Geo	4.47	64.08	46.6
InovGraphSchist	Soil	10.8	20.67	52.8
InovGraphSchist	TestAll Geo	6.08	19.14	45.87

Značenje skraćenica u Tabelama 7, 8 i 9 (uzorci): InovGraph - Inovska serija grafitični škriljac skoro potpuno izgrađen od grafitičnog (organskog) materijala; InovGraphSiSchist - Inovska serija, grafitični škriljac sa više silikatnog materijala; InovGraphSchist - Inovska serija, grafitični škriljac sa više grafitičnog materijala

## 8.7 Tabelarni prikaz rezultata ispitivanja pratećih elemenata uzoraka sedimenata donje trijaske starosti

Tabela 10. Rezultati XRF ispitivanja crvenih peščara prostora Jelovica-Dojkinci na Zr, Rb, Sb, Sn i Zn u ppm

Sample	Type	Zr	Rb	Sb	Sn	Zn
JelDojsandstred	Soil	131.5	89.21	10.83	6.04	20.02
JelDojsandstred	TestAll Geo	62.42	93.92	16.07	8.8	25.46
JelDojsandstLredt	Soil	54.39	92.7	18.13	10.72	14.02
JelDojsnastorange	Soil	156.11	89.75	49.23	2481.98	33.66
JelDojsnastorange	TestAll Geo	150.47	44.61	49.37	2490.72	30.14

Table 11. Rezultati XRF ispitivanja crvenih peščara prostora Jelovica-Dojkinci na Ba, Cr, V, Ti i Ni u ppm

Sample	Type	Ba	Cr	V	Ti	Ni
JelDojsandstred	Soil	685.94	22.5	20.37	1631.61	20.03
JelDojsandstred	TestAllGeo	785.53	56.2	41.16	2204.46	48.31
JelDojsandstLredt	Soil	743.06	18.45	12.2	635.77	46.95
JelDojsnastorange	Soil	30.35	< LOD	10.72	< LOD	35.74
JelDojsnastorange	TestAllGeo	67.81	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD

Značenje skraćenica u Tabelama 10 i 11 (uzorci): JelGsilstRedox - Jelovica sivi alevrolit iz redoks zone (slike 50 i 51); JelGsilst - Jelovica sivi alevrolit; JelGsilstmica - Jelovica sivi alevrolit sa liskunima.

Table 12. Rezultati XRF ispitivanja sivih alevrolita prostora Jelovica-Dojkinci na Zr, Rb, Mo, Zn, Cu i As u ppm

Sample	Type	Zr	Rb	Mo	Zn	Cu	As
JelGsilstRedox	TestAll Geo	215.29	88.05	5.11	85.87	21.18	9.73
JelGsilstRedox	Soil	216.94	178.61	3.83	85.54	16.88	8.62
JelGsilst	TestAll Geo	217.27	86.54	5.49	87.16	21.55	10.95
JelGsilst	Soil	216.31	178.27	6.17	84.14	20.06	5.4
JelGsilstmica	TestAll Geo	250.66	84.86	3.29	79.8	23.39	10.99
JelGsilstmica	Soil	274.92	174.09	4.63	91.09	27.84	10.09

Table 13. Rezultati XRF ispitivanja sivih alevrolita prostora Jelovica-Dojkinci na Ba, Cr, V, Ti i Ni u ppm

Sample	Type	Ba	Cr	V	Ti	Ni
JelGsilstRedox	TestAll Geo	603.42	<LOD	<LOD	4678.11	76.91
JelGsilstRedox	Soil	748.93	75.95	173.81	4741.4	85.78
JelGsilst	TestAll Geo	590.14	179.3	305.18	4662.12	96.96
JelGsilst	Soil	746.69	69.17	199.04	4713.5	90.38
JelGsilstmica	TestAll Geo	163.81	< LOD	< LOD	< LOD	45.36
JelGsilstmica	Soil	68.68	< LOD	< LOD	< LOD	51.74

Značenje skraćenica u Tabelama 12 i 13 (uzorci): JelGsilstRedox - Jelovica sivi alevrolit iz redoks zone; JelGsilst - Jelovica sivi alevrolit; JelGsilstmica - Jelovica sivi alevrolit sa liskunima.

## 8.8 Diskusija rezulata distribucije pratećih elemenata u ispitivanim stenama

### 1. Distribucija Zr, Rb, W, Mo i Sn

Povišeni grade Zr su konstatovani u uzorcima granita Mezdreje, grafitičnim škriljcima Inovske serije i sivim alevrolitim šarene serije, konstatovan je u crvenim peščarima

donjeg trijasa, ali u manjoj meri. Kako je zircon prilično rezistentan mineral moguće je da je u alevrolite transportovan tokom formiranja šarene serije i da je na sličan način stigao, a kasnije zadržao svoju formu u metamorfitima Inovske serije. Koncentracije Rb uglavnom niže od prosečne zastupljenosti u Zemljinoj kori. Povišene su međutim konstatovane u granitima Gabrovnice, u grafitičnim škriljcima i to u partijama bogatijim grafitičnim materijalom, kao i u sivim alevrolitima kada je mereno u soil modu. Tungsten je konstatovan kao izrazito povišen (i do 100x u odnosu na abundance in Earth's crust) kod svih uzoraka vezanih za granite osim u monomineralnom uzorku ružičastog K-feldspara, gde izostaje. Povišen je i u škriljcima, ali nije konstatovan u svim uzorcima, koncentracije se kreću od 49,7 do 107,45 ppm. Mo je relativno slabo zastupljen, skoro da izostaje u uzorcima granita, soim u glinovitom materijalu sa tailing dump Mezdreje (7,32 - 7,76 ppm). Prisutan je u svim uzorcima sivog alevrolita od 3,29 do 6,17 ppm što je 2 do 4x veća koncentracija od prosečne in Earth's crust. Kalaj u granitima im do 1000x povišene koncentracije od prosečnih, u 2214 ppm a u grafitičnim škriljcima je konstatovan i do 4990 ppm. U crvenim peščarima je konstatovan takođe u povišenim vrednostima u "narandžastom varijetetu". U rifeo - kambrijskim škriljcima je konstatovan u koncentraciji od 24,13 ppm.

## 2. Distribucija Zn i Cu

Cink je prisutan u skoro svim uzorcima, međutim uglavnom je ispod prosečne srednje vrednosti za litosferu. Nešto povišene vrednosti su u sivim alevrolitima i grafitičnim škriljcima do 2 puta, kao i u rifeo - kambrijskom škriljci takođe do dva puta. Bakra u uzorcima granita uglavnom nema, konstatovan je u sivim alevrolitima i grafitičnim škriljcima nešto više nego prosečne vrednosti, a najviše je izmereno u uzorku škriljaca jako bogatom grafitičnim materijalom 107,71 ppm.

## 3. Distribucija As, Sb i Ba

As i Sb su prirodi u pomenutim slučajevima često u asocijaciji (Rujevac u zapadnoj Srbiji). Znatno povišeni sadržaji arsena su konstatovani u grafitičnim škriljcima do 54,23 ppm i nešto manje u sivim alevrolitima do 10,99 ppm. Antimon ima povišen

sadržaj u svim jedinicama, s tim što ga ima najviše u grafitičnim škriljcima do 274,09 ppm. Najviše barijuma ima u ispitivanoj monomineralnoj frakciji ružičastog K feldspar 0,56%, takođe povišeni sadržaji su konstatovani i u sedimentima donjeg trijasa kako u crvenim peščarima - do 785,53 ppm tako i u sivim alevrolitima do 748,93 ppm.

#### 4. Distribucija Ni, Cr, V i Ti

Najviši sadržaji ovih elemenata su konstatovani u rifesko - kambrijskim škriljcima, Ti čak 3 do 10x (1,5% do 5,3%) više od proseka (slike 12 i 13) uzetih uz Jelovičku reku a na profilu koji ulazi u donjo trijaske sedimente nosioce prirodne radioaktivnosti (crvene peščare i sive alevrolite). Titana oko srednjih vrednosti takođe ima u sivim alevrolitima. Nikla oko srednjih vrednosti za Earth crust ima u sivim alevrolitima, a takođe vanadijuma i hroma.

Dodali bi da su povišene koncentracije skandijuma konstatovane u granitima do 74,63 ppm (prosek za Earth crust is 16 ppm) i u rifejsko-kambrijskim škriljcima do 65,68 ppm. Povišene koncentracije skandijuma su takođe konstatovane u rifejsko-kambrijskim škriljcima do 65,58 ppm.

Na kraju, u metamorfitima zelene serije, u blizini granice sa šarenom serijom donje trijaske strarosti je na poprečnum preseku u silifikovanoj partiji, mereno upravno škriljavost, izuzetno konstatovano je 6,73 ppm Au. U istočnoj Srbiji u zelenim škriljcima poznate su povišene koncentracije, pa i ležišta zlata (Blagojev kamen). Pomenuto treba imati u vidu u smislu detaljnijih istraživanja npr. na zlato u budućnosti u metamorfitima zelene serije.

## **9. KARAKTERISTIKE PRIRODNE I ANTROPOGENO IZAZVANE RADIOAKTIVNOSTI LITOLOŠKIH PREDSTAVNIKA**

Po podacima Arms Control Association, do danas (kraj 2017) se dogodilo 2056 nuklearnih proba (<https://www.armscontrol.org/factsheets/nucleartesttally>, Daryl Kimball, Executive Director) na planeti zemlji (2058 nuklearnih eksplozija, uključujući i bombe bačene na Hirošimu i Nagasaki). Sjednjene Američke države 1030, SSSR/Rusija 715, Velika Britanija 45, Francuska 2015, Kina 45 itd.

Takođe dokodilo se više "mirnodopskih" nuklearnih incidenata gde bi naveli najpoznatije (<http://www.ucsusa.org/nuclear-power/nuclear-power-accidents/history-nuclear-accidents#.WgIXdVWnFhE>): Cumberland oktobar 1957, Los Angeles juli 1959, Idaho falls januar 1961, Frenchtown Charter Township, Michigan oktobar 1966, Three Mile Iceland - Pensilvania Mart 1978, Černobil April 1986, Fukušima Mart 2011.

Iznad Evrope (i Srbije) je po navodima Agencije za zaštitu od ionizujućih zračenja i nuklearnu sigurnost Srbije u periodu od 29. septembra do 5. oktobra 2017. u Srbiji detektovano u vazduhu prisustvo rutenijuma 106, ali da izmerene vrednosti nisu imale uticaj na zdravlje. Rutenijum 106 nije prirodan radionukleid. Prepostavlja se da je ovaj radionuklid u atmosferu dospeo najverovatnije iz nekog od industrijskih ili medicinskih objekata gde se ovaj radioizotop koristi", navodi Agencija i dodaje da se to nalazi i u izveštaju Francuskog instituta za zaštitu od zračenja i nuklearnu sigurnost (IRSN). Takođe na mnogim sajтовима 10 i 11 novembra 2017 se pojavila vest da je iznad Evrope detektovan oblak "bezopasnog" radioaktivnog zračenja koja je potekla iz istog izvora (Institut de Radioprotection et de Surete Nucléaire).

Pri istraživanju urana u pustinjskim sredinama, dešava se da se isplaka sa mesta bušenja razlije po okolini. Sedimenti sa radioaktivnim materijalom kod "neprofitabilnih" buština mogu biti, debljine npr. 30 cm, ali koncentracija urana je oko 600 ppm i taj materijal, iako ga je malo, ipak ostaje u kontaktu sa atmosferilijama, biljkama, životinjama i ljudima.

Problematika zaštite životne sredine zbog navednih primera postaje sve aktuelnija, posebno u područjima gde je do narušavanja prirodne ravnoteže došlo kao posledica čovekovih aktivnosti.

Status radiacionog rizika je "promenjen" i dalje se menja od 1945 do danas i u suštini raste.

## **9.1 Ispitivanja parametra radiacionog rizika karakterističnih geoloških jedinica nosioca radioaktivnosti Stare planine**

Rezultati dobijeni merenjem radioaktivnosti uzoraka (Tabela 1) su iskorišćeni za izračunavanje sledećih parametara radijacionog rizika: ukupne apsorbovane doze gama zračenja u vazduhu na visini 1 m od tla ( $D$ ,  $\text{nGz}$ ,  $\text{h}^{-1}$ ), radijumi ekvivalentne aktivnosti ( $\text{Ra}_{\text{eq}}$ ,  $\text{Bq kg}^{-1}$ ), indeksa spoljašnjeg hazarda ( $H_{\text{ex}}$ ) i godišnje efektivne doze spoljašnjeg zračenja  $\text{AED}_{\text{outdoor}}$ ,  $\mu\text{Sv}$ ).

### **9.1.1 Specifične aktivnosti $^{226}\text{Ra}$ , $^{232}\text{Th}$ i $^{440}\text{K}$ i najvažniji parametri radijacionog rizika**

Koncentracije navedenih (značajnih) radioizotopa u uzorcima ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ), tj. njihove specifične aktivnosti ( $A$ ), određene su iz gamaspektrometrijskih merenja kako je dato u poglavlju o metodologiji. Definicije i načini izračunavanja ovih parametra su dati u tekstu koji sledi. Pomoću tih parametra može se izvršiti odgovarajuća procena rizika po ljudi koji bi boravili u istraživanom području. Parametri koji su bliže povezani sa zdravlјem kao što su procenjene doze za specifične organe ili rizik za pojavu karcinoma nisu ovde izračunavane jer su ispitivane lokacije nenaseljene.

Redosled navedenih parametara je dat kao i do sada u radu, od geoloških jedinica vezanih za granite, zatim metamorfita Inovske serije i na kraju sedimenata "šarene serije". Dobijene vrednosti su prikazane u Tabelama 14 i 15.

Napomenućemo da su prva merenja sa ekološkog aspekta vršena još 1992 godine (Kovačević, Srbljanović). Sledi kratak prikaz rezultata. U okviru ležišta Mezdreja

radioaktivnost je merena na tri jalovišta H1, H2 i H3. Haldište H-1 nalazi se neposredno ispod okna rudnika i zahvata površinu od oko  $2.800 \text{ m}^2$ , a sadrži oko  $16.500 \text{ m}^3$  jalovine. Na ovom haldištu vršeno je kontinuirano merenje radioaktivnosti na 45 tačaka. Vrednosti radioaktivnog merenja kreću se od 70 cps do 170 cps i to je u granicama fona za ovu vrstu stena. Haldište H-2 nalazi se 300 m od okna nizvodno sa leve strane Debeštičke reke. Ovo haldište zahvata površinu od oko  $280 \text{ m}^2$  i sadrži oko  $1.800 \text{ m}^3$  izvađenog materijala. Vršeno je kontinuirano merenje radioaktivnosti na 47 tačaka. Vrednosti radioaktivnog merenja kreću se od 270 do 600 cps. Potrebno je konzerviranje ovog odlagališta radi sprečavanja migracije urana iz istog. Haldište H-3 nalazi se u donjem delu Gradeškog dela, a udaljeno je od okna rudnika oko 800 m. Ovo haldište je najveće na ovom delu terena (područja Mezdreje). Njegova površina iznosi oko  $3.200 \text{ m}^2$  materijala. Ukupno je izmereno 89 tačaka, a vrednosti radioaktivnih merenja kreću se od 130 do 280 cps. Imajući u vidu vrste stena i odakle potiču, mogu se izmerene vrednosti uzeti kao realne i ne predstavljaju opasnost po okolnu. Sa uže lokalnosti „Mezdreja“ rađena je i radiometrijska analiza uzoraka prikupljenih sa najinteresantnijih mesta. U dva uzorka izmerena je povećan koncentracija urana u ppm 171,195 i 187,225, torijuma u ppm 33,335 i 25,260 i radijuma - eRa u ppm 176,813 i 384,704. S obzirom da se radi o materijalu koji se nalazi neposredno pored starih postrojenja, a da je vađen iz rudnika, dobijene vrednosti su očekivane. Na lokalnosti rudnika Gabrovica izvršen je radiometrijski premer na preko 100 tačaka. Od okna prema šahti u koju je sipana ruda, a onda mlevena, izmerene vrednosti radioaktivnosti su povećane i kreću se od 450 do 500 cps. Iza kruga rudnika od crkve pa nizvodno nalaze se dva veća haldišta, dužine oko 120 m. Vrednosti radiometrijskog premera kreću se od 110 do 250 cps. Naviše vrednosti koncentracije su za uran u ppm 36,25 i 29,85, za torijum u ppm 34,9 i 31,3 i za eRa 57,74 i 83,61. Povećane vrednosti radijuma (eRa) u odnosu na uran ukazuju na ispiranje urana iz te sredine. U nastavku su rezultati naših ispitivanja.

### 9.1.2 Apsorbovanje doza gama zračenja

Koncentracije radionuklida od značaja  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  i  $^{40}\text{K}$  u uzorcima, koje su određene iz merenja, mogu se koristiti za procenu apsorbovane doze gama zračenja iz zemljišta na 1 m iznad tla ( $\text{nGy h}^{-1}$ ). Za određivanje apsorbovane doze su korišćeni konverzionalni

faktori ( $\text{nGy h}^{-1}$  per  $\text{Bq kg}^{-1}$ ) (UNESCAR, 2000). Iako je moguće koristiti i druge preporučene vrednosti (Saito and Jacob, 1995, Clovas et al, 2000, Quindos et al, 2004). Vrednost D je potrebna i za izračunavanje "Godišnje efektivne doze spoljašnjeg zračenja". Svetski prosek iznosi  $59 \text{ nGy h}^{-1}$  per  $\text{Bq kg}^{-1}$ .

$$D = 0,462 \cdot A_{Ra} + 0,6044 \cdot A_{Th} + 0,042 \cdot A_K$$

gde je:

$D$  - apsorbovana doza gama zračenja

$A_{Ra}$  - aktivnost radona

$A_{Th}$  - aktivnost torijuma

$A_K$  - aktivnost kalijuma

Tabela 14. Apsorbovane doze gama zračenja

uzorak	D: ( $\text{nGy h}^{-1}$ per $\text{Bq kg}^{-1}$ )
Mezdr_granite_mine1	$276,2 \pm 11,8$
Mezdr_sil_lim1	$323,6 \pm 15,9$
Mezdr_granite2	$235,4 \pm 10,5$
Mzdr_clay_dump1	$1355,4 \pm 53,6$
Scs_silic1	$246,4 \pm 11,4$
Scs_grafrc2	$315,4 \pm 15,8$
Gabr_mine1	$196,6 \pm 9,6$
Gabr_dump1	$317,2 \pm 13,6$
Siltst_gray1	$193,1 \pm 9,1$
Sandst_red2	$97,7 \pm 4,8$
Svetski prosek	59

Kako se vidi iz Tabele 14. Sve ispitane lokacije imaju povećanu D - apsorbovane doze gama zračenja, gde je najmanja vezana za crvene peščare "šarene serije", a najveća je 23 puta od svetskog proseka, na poziciji uzorka Mzdr\_clay\_dump1, tj. deponiji otkopane rude - glinovitog materijala sa fragmentima izmenjenih granita rudnika Mezdreja. U ostalim sličajevima povećana vrednost D je 3 do 5,4 puta veća od svetskog proseka. Što se tiče uzoraka Mezdr\_granite2, Scs\_silic1, Scs\_grafrc2, Siltst\_gray1 i Sandst\_red2 radi se isključivo o prirodnjoj radioaktivnosti materijala sa izdanak "in situ".

### **9.1.3 Radijumu ekvivalentna aktivnost**

Pojam radijumu ekvivalentna aktivnosti je uveden da bi se opisalo postojanje gama emisije iz različitih smeša uranijuma (odnosno radijuma), torijuma i kalijuma u materijalima, tj. da bi se aktivnost prisutnih prirodnih radionuklida u materijalima izrazila preko jedne veličine, koja adekvanto opisuje zbirni radijacioni rizik.

Iz vrednosti koncentracija radionuklida određenih na osnovu merenja radioaktivnosti  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  i  $^{40}\text{K}$ , izračunavana je radijumi ekvivalentna aktivnost ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ), primenom sledeće jednačine (39):

$$\text{Ra}_{\text{eq}} = \text{A}_{\text{Ra}} + 1,43\text{A}_{\text{Th}} + 0,077\text{A}_{\text{K}}$$

Ova veličina je definisana podrazumevajući da  $370 \text{ Bq kg}^{-1}$   $^{226}\text{Ra}$ , ili  $256 \text{ Bq kg}^{-1}$   $^{232}\text{Th}$ , ili  $4810 \text{ Bq kg}^{-1}$   $^{40}\text{K}$  proizvodi istu dozu gama zračenja. Otuda i odgovarajući faktori u jednačini ( $1,43 = 370 : 259$  i  $0,077 = 370 : 4810$ ). Limit po OECD (Organization for Economic Cooperation and Development) iznosi  $370 \text{ Bq kg}^{-1}$  (Hassan et al, 2014). Dobijene vrednosti su prikazane u Tabeli 15.

### **9.1.4 Indeks spoljašnjeg hazarda**

Indeks spoljašnjeg hazarda je vrednost za procenu potencijalnog hazarda zbog postojanja gama zračenja koja emituju radionuklidi Ra, Th i K. On predstavlja zbir odnosa radioaktivnih koncentracija razmatranih izotopa sa njihovim referentnim vrednostima, koje su određene kao prihvatljivi nivoi rizika. Indeks spoljašnjeg hazarda ( $H_{\text{ex}}$ ) se izračunava iz jednačine (Beretka and Mathew, 1995):

$$H_{\text{ex}} = \text{A}_{\text{Ra}}/370 \text{ A}_{\text{Th}}/259 + \text{A}_{\text{K}}/4810$$

Kada je vrednost ovog indeksa iznad 1, tada je rizik iznad prihvatljivog nivoa. U tom slučaju bi trebalo preduzeti neke mere da se radijumi ekvivalentna aktivnost i srednja godišnja doza održe ispod dozvoljenih nivoa odnosno 1 mSv. (UNESCAR, 1998). Dobijene vrednosti su prikazane u Tabeli 15.

### **9.1.5 Godišnja efektivna doza spoljašnjeg zračenja**

Godišnja efektivna doza spoljašnjeg zračenja ( $AED_{outdoor} \mu\text{Sv}$ ) se dobija iz apsorbovane doze gama zračenja primenom faktora koji uzimaju u obzir kategoriju izloženog stanovništva (odrasli) i prosečno vreme koje se provodi u ispitivanoj oblasti (outdoor occupancy factor). Za preporučene vrednosti ovih faktora od  $0,7 \text{ Sv Gy}^{-1}$  i  $0,2$  (UNSCEAR) (UNESCAR, 1998)  $AED_{outdoor}$  je dato kao:

$$AED_{outdoor} = D * N_h * 0,7 * 0,2$$

Gde je  $D$  - apsorbovana doza gama zračenja u vazduhu ( $\text{nGy h}^{-1}$ ), a  $N_h$  – broj sati u jednoj godini (8760). Svetski prosek iznosi  $70 \mu\text{Sv}$ . Dobijene vrednosti su prikazane u Tabeli 15

Tabela 15. Radijumu ekvivalentna aktivnost ( $Ra eq$ ), indeks sproljašnjeg hazarda (Hex) i godišnja efektivna doza spoljašnjeg zračenja ( $AED_{outdoor}$ )

uzorak	$Ra eq$ ( $\text{Bq km}^{-1}$ )	Hex	$AED_{outdoor}$ ( $\mu\text{Sv}$ )
Mezdr_granite_mine1	$610 \pm 26$	$1,644 \pm 0,070$	$339 \pm 14$
Mezdr_sil_lim1	$716 \pm 35$	$1,932 \pm 0,095$	$397 \pm 20$
Mezdr_granite2	$524 \pm 23$	$1,414 \pm 0,063$	$289 \pm 13$
Mzdr_clay_dump1	$2938 \pm 116$	$7,937 \pm 0,314$	$1662 \pm 66$
Scs_silic1	$532 \pm 25$	$1,434 \pm 0,067$	$302 \pm 14$
Scs_grafrc2	$692 \pm 35$	$1,867 \pm 0,093$	$387 \pm 19$
Gabr_mine1	$423 \pm 21$	$1,140 \pm 0,056$	$241 \pm 12$
Gabr_dump1	$695 \pm 29$	$1,873 \pm 0,080$	$389 \pm 17$
Siltst_gray1	$401 \pm 19$	$1,083 \pm 0,052$	$237 \pm 11$
Sandst_red2	$200 \pm 10$	$0,540 \pm 0,027$	$120 \pm 6$
Svetski prosek	ref. v. - $370 \text{ Bq/kg}$	ref. vrednost - 1	svetski prosek - 70

Može se zaključiti da vrednost manju od limita po OECD za **radijumu ekvivalentne aktivnosti** ( $Ra eq$ ) imaju samo crveni peščari "šarene serije", dok ostali imaju povećanu vrednost do 2 puta, osim u slučaju glinovitog materijala sa fragmentima granita sa haldišta rudnika Mezdreja gde je vrednost veća za skoro 8 puta.

**Indeks sproljašnjeg hazarda** je manji od referentne vrednosti kod crvenih peščara "šarene serije", malo je povišen kod uzorka granite uzetog sa izdnaka rudnika Gabrovnica i kod sivih alevrolita "šarene serije". Kod ostalih je povećan od 0,414 do 0,873 - skoro duplo kod uzorka Scs\_grafrc2 (grafitčnog škriljca sa dosta organskog

materijala). Najviše vrednosti, skoro 8 puta veće su konstatovane na jalovištu rudnika Mezdreja.

**Godišnja efektivna doza spoljašnjeg zračenja** je najveća na jalovištu rudnika Mezdreja - skoro 24 puta je veća od svetskog proseka, međutim interesantno je da su na svim mestima uzorkovanja povećane vrednosti u odnosu na svetski prosek. Naglasili bi da uzorci Mezdr\_sil\_lim1 - silifikovan i limonitisan materijal iz okoline rudnika Mezdreja, Scs\_grafrc2 - grafitični škriljac Inovske serije sa više organsko materijala i Gabr\_dump1 - uzorak granita sa jalovišta rudnika Gabrovnica imaju vrednosti oko 5,5 puta veće od svetskog proseka.

## **10 ZAKLJUČNA RAZMATRANJA UTICAJA PRIRODNE I ANTROPOGENE RADIOAKTIVNOSTI KARAKTERISTIČNIH GEOLOŠKIH ČLANOVA STARE PLANINE NA ŽIVOTNU SREDINU**

U ovoj disertaciji obrađeni su karakteristični geološki članovi nosioci radioaktivnosti na prostoru Stare planine, generalno graniti i za njih vezane geološke jedinice, grafitični škriljci i sedimentne stene - crveni peščari i sivi alevroliti šarene serije.

Ispitani uzorci vezani za granite su uzeti sa prostora nekadašnjih rudnika Mezdreja i Gabrovnica i to: graniti, gabroid, K-feldspat - čist koliko je to bilo moguće, silifikovan i limonitisan materijal - produkt hidrotermalnih aktivnosti i kaolinisan materijal sa fragmentima izmenjenih granita sa haldišta rudnika Mezdreja.

Od uzoraka grafitičnih škriljaca Inovske serije uzeti su primerci 1. sa više grafitičnog materijala i 2. sa više silikatnog materijala.

Iz "šarene serije" uzeto je više uzoraka kako crvih peščara, nijansi od tamno sivo-crvene do narandžaste i sivih alevrolita - svetlijih i nešto tamnijih. Uzorci su sa lokaliteta Jelovica - Dojkinci.

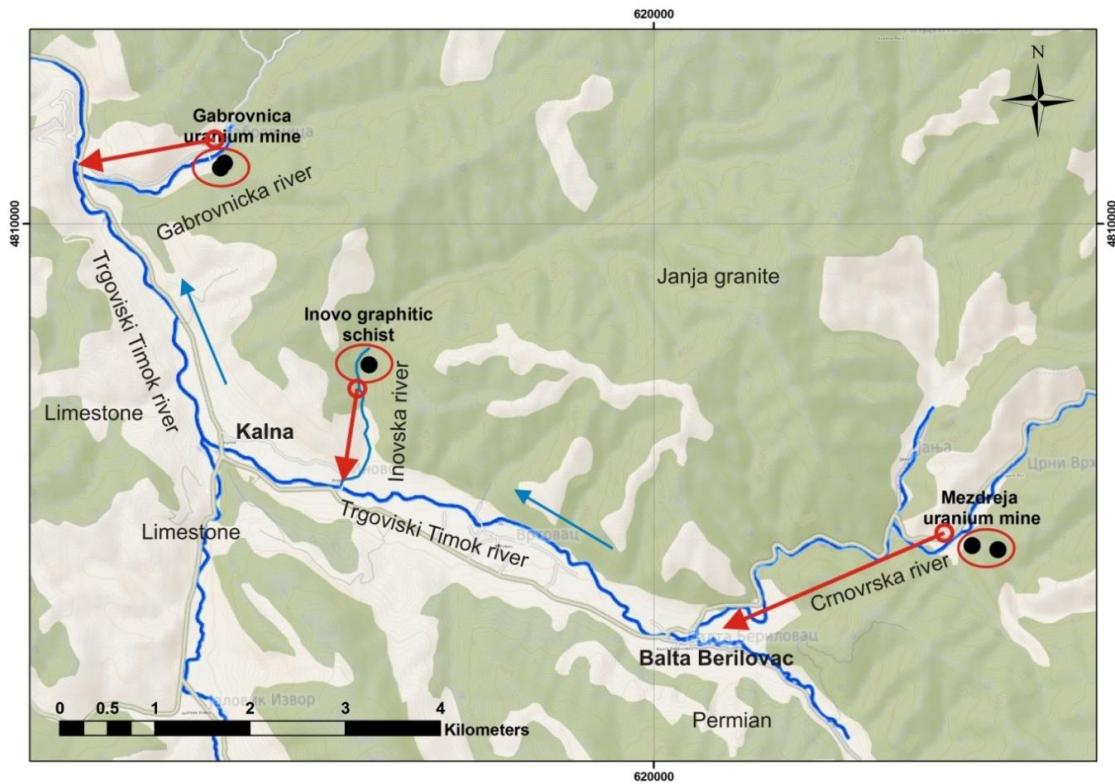
Najviša koncentracija urana je konstatovana u uzorku glinovitog materijala sa haldišta rudnika Mezdreja 77,65 ppm. Takođe ovaj uzorak pokazuje i najveću radioaktivnost  $^{226}\text{Ra}$  -  $2600 \pm 100 \text{ Bq/kg}$ , kao i  $^{137}\text{Cs}$  -  $10,8 \pm 0,5$ . Napominjemo da ovo nije prerađena ruda, ali je antropogeni uticaj prisutan u smislu da je materijal rudarskim aktivnostima deponovan na ovom prostoru, podložan atmosferskim uticajima i ocednim vodama se prenosi u životnu sredinu. Takođe apsorbovana doza gama zračenja za ovaj uzorak iznosi  $1355,4 \pm 53,6 \text{ nGy h}^{-1}$  per  $\text{Bq kg}^{-1}$  što je 23 puta više od svetskog proseka, radijumu ekvivalentna aktivnost je kod ovog uzorka 8 puta veća nego što je svetke referentne vrednosti što važi i za indeks spoljašnjeg hazarda, ovde je i najveća godišnja efektivna doza spoljašnjeg zračenja - 24 puta veća od svetskog proseka. Referentna koordinata je 623497 istočno i 4806589 severno. Razdaljina od vodotoka - Crnovrške

reke opservacionih tačaka iznose od 170 do 360m, što je veoma malo rastojanje u smislu prenošenja polutanata ocednim vodama.

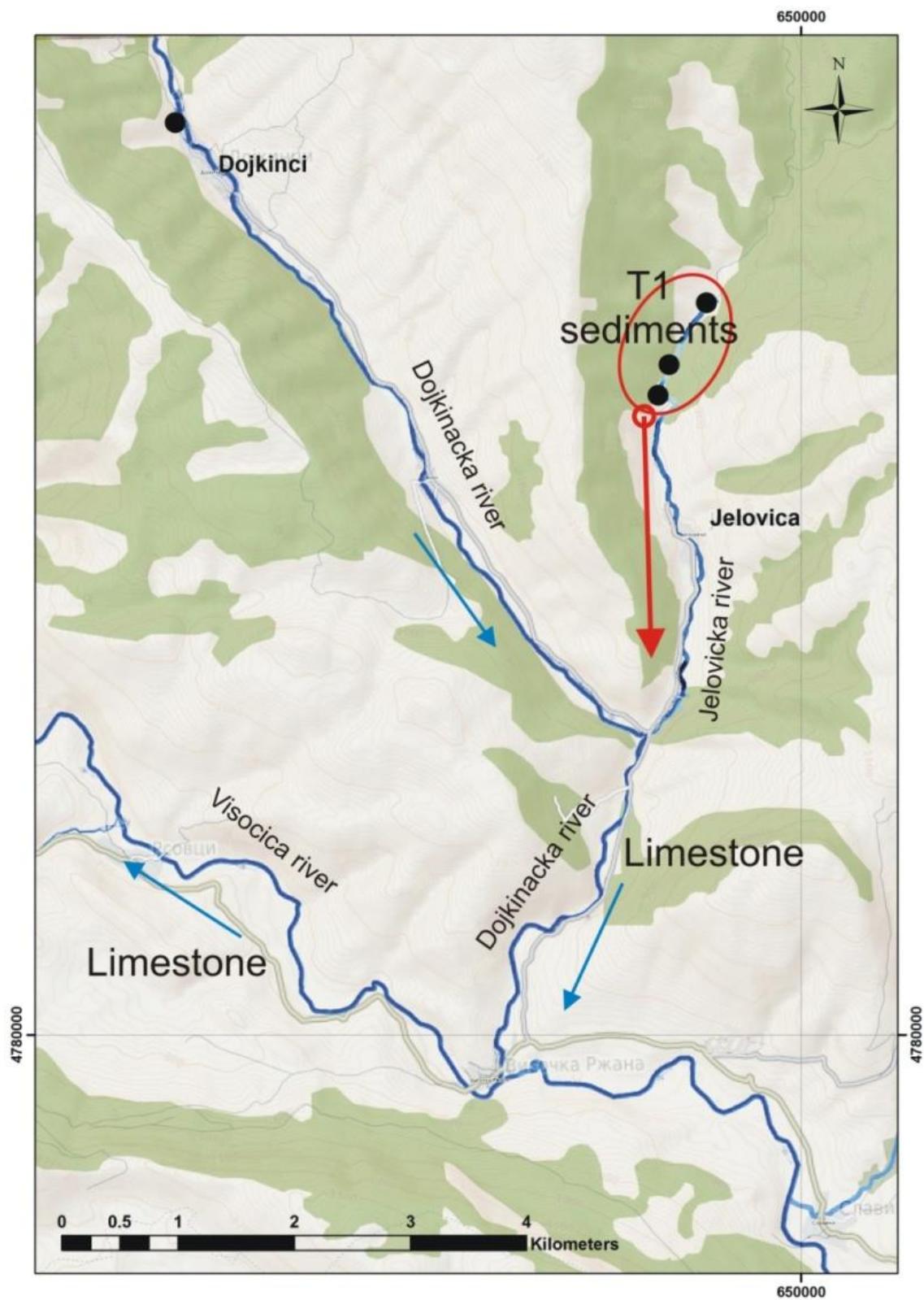
Radi poređenja uzorci granita sa haldišta rudnika Gabrovica, takođe antropogenog porekla pokazuju, u odnosu na uzorak sa haldišta rudnika Mezdreja, znatno nižu radioaktivnost  $^{226}\text{Ra}$   $206 \pm 9 \text{ Bq/kg}$ . Iako je niža, apsorbovana doza gama zračenja kod ovog uzorka iznosi  $317,2 \pm 13,6 \text{ nGy h}^{-1}$  per  $\text{Bq kg}^{-1}$ , što je 5,4 puta više od svetskog proseka. Isto je sa vrednostima radijumu ekvivalentne aktivnosti koja 1,87 puta veća od svetske referentne vrednosti kao i kod indeksa spoljašnjeg hazarda i najveća godišnja efektivna doza spoljašnjeg zračenja je 5,56 puta veća od svetskog proseka. Referentna koordinata je 615469 istočno i 4810616 severno. Razdaljina opservacionih tačaka iznosi 115 do 135m, pozicije polutanata su vrlo blizu vodotoka - Gabrovničke reke (Slika 5).

Svi ostali uzorci su prirodnog porekla, ali je kod nekih konstatovana izrazito povišena radioaktivnost. U ovu grupu spadaju grafitični škriljci, sivi alevroliti i silifikovani limonitisani produkti kod rudnika Mezdreja (kojih je jako malo pa se neće uzimati u obzir).

Prirodne koncentracije urana u granitima se kreću od 6,5 do 20,09 ppm i prirodnog su porekla (uzeti su uzroci sa izdanaka "in situ"). Vrednosti, su povišene od 1,5 do skoro 5 puta u odnosu na prirodnu distribuciju urana u granitima 4,4 ppm (Krauskopf 1979). Ispitani i uzorkovani graniti su u neposrednoj blizini vodotokova pomenutih ranije (Slika 55). Izmerene prirodne maksimalne koncentracije urana u izdanaku grafitčnog škriljca "Inovske serije" je 27,31 ppm, što je 18,2 puta više od prosečne koncentracije urana 1,5 ppm (Krauskopf 1979) u gnajsevima i škriljcima. Apsorbona doza gama zračenja je 5,4 puta veća od svetskog proseka. Takođe radijumu ekvivalentna aktivnost za ovaj uzorak iznosi  $692 \pm 35 \text{nGy h}^{-1}$  per  $\text{Bq kg}^{-1}$  što je 1,87 puta više od svetskog proseka ista vrednost je i za indeks spoljašnjeg hazarda, godišnja efektivna doza spoljašnjeg zračenja je 5.53 puta veća od svetskog proseka. Referentna koordinata je 617008 istočno i 4808515 severno, razdaljina od vodotoka (Inovska reka) je 30 do 34 m.



Slika 55. Pozicije izvora radioaktivnih komponenti - zagađivača na prostoru rudnika Mezdreja i Gabrovnica i grafitičnih škriljaca Inovske serije, crvene strelice su pravci kretanja polutanata, plave pravac vodotoka, raster osnova je SASPlanet OSM  
 (opnvkarte.de)



Slika 56. Pozicije izvora radioaktivnih komponenti - zagađivača na prostoru "šarene serije" donje trijaske starosti, crvene strelice su pravci kretanja polutanata, plave pravac vodotoka, raster osnova je SASPlanet OSM (opnvkarte.de)

Sivi alevroliti "šarene serije" nose maksimalno izmerenih 54,43 ppm urana, što je skoro 22 puta više od prosečnog sadržaja urana u sedimentnim stenama (<http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/uranium-resources/supply-of-uranium.aspx> (Updated December 2016). Apsorbona doza gama zračenja je 3,3 puta veća od svetskog proseka. Takođe radijumu ekvivalentna aktivnost za ovaj uzorak iznosi  $401 \pm 19 \text{ nGy h}^{-1}$  per  $\text{Bq kg}^{-1}$  što je za 31 jedinicu više od svetskog proseka, indeks spoljašnjeg hazarda je vrlo malo povišen (za 0,083 više od referentne vrednosti) i godišnja efektivna doza spoljašnjeg zračenja je 3,38 puta veća od svetskog proseka. Referentna koordinata je 649769 istočno i 4785534 severno, razdaljina od vodotoka (Jelovička reka) je 5 do 7 m. Treba uzeti u obzir i da koncentracije sivih alevrolita nisu homogene, i ne pružaju se kao koherentan sloj određene debljine. Izdanci interkalacija sivih i crvenih alevrolita sa crvenim prščarima se mogu pratiti u dužini od 1 do uslovno 1,5km.

Dakle objekti nastali antropogenom aktivnošću imaju najviše vrednosti pomenutih parametara. Preporuka je da se objekati saniraju i zaštite od transporta radioaktivnog materijala u životnu sredinu.

Treba na kraju napomenuti da ocedne vode iz rudnika Mezdreja i Gabrovica, kao i grafitičnih škriljaca spiraju materijal u vodotokove Crnovrške, Gabrovničke i Inovske reke vode Trgoviškog Timoka koji prolazi kroz krečnjake donje kredne starosti  $K_1^{3,4}$ , ova sredina obara koncentracije urana iz vodotokova. Uslovno trebalo bi detaljno ispitati stanje aluviona i vodotoka na poziciji ušća Crnovške reke u Trgoviški Timok na poziciji Balta Berilovac (Slika 55). Ovde treba pomenuti da ispitivanjima Nikić i dr. (2012) je konstatovano da nizvodno od zatvorenih rudnika dolazi do drastičnog smanjenja koncentracija radioaktivnih elemenata u vodama, a da je osnovni razlog i prinos malih količina voda iz napuštenih rudnika 0,2 do 0,3 l/s. Slična je situacija i sa izdancima povišene radioaktivnosti Jelovičke reke koja se uliva u Dojkinačku (Slika 56), 3,8 km posle zone sa radioaktivnim izdancima donje trijaske starosti ( $T_1$ ) km vodotok ulazi u krečnjake (Nikić et al 2002) jurske starosti (od  $J_1^4$  do  $J_3^3$ ), po tom teče kroz krečnjake donje krede ( $K_1^{1,2}$ ). Kroz krečnjake, a do ušća sa Visočicom vodotok je dužine 2,7 km tako da je i u ovom slučaju uran oboren pre gusto naseljenih mesta.

## LITERATURA

1. Abiye, T.; Shaduka, I. Radioactive Seepage through Groundwater Flow from the Uranium Mines, Namibia, *Hydrology* 2017, 4(1), 11; doi:10.3390/hydrology4010011
2. Anand, R., Paine M., 2002: Regolith Geology of the Yilgarn Craton, Western Australia (abstract)". Australian Journal of Earth Sciences An International Geoscience Journal of the Geological Society of Australia, doi.org/10.1046/j.1440-0952.2002.00912.x, Volume 49, Issue 1.
3. Andjelković, J.; Krstić ,B.; Cirić, A.; Jadranin, M.; Milošaković, P.; Milenković, V.; Fotić, V.; Jovanović, V.; Martinović, D.; Bogdanović, P. *Geological Map 1:100000*, Sheet Pirot and Breznik, Federal Geological Survey, Belgrade, Yugoslavia
4. Babatunde, B.B.; Sikoki, F.D.; Hart, I. Human Health Impact of Natural and Artificial Radioactivity Levels in the Sediments and Fish of Bonny Estuary, Niger Delta, Nigeria, *Challenges* 2015, 6(2), 244-257; doi:10.3390/challe6020244
5. Bai, H.; Hu, B.; Wang, C.; Bao, S.; Sai, G.; Xu, X.; Zhang, S.; Li, Y. Assessment of Radioactive Materials and Heavy Metals in the Surface Soil around the Bayanwula Prospective Uranium Mining Area in China, *Int. J. Environ. Res. Public Health* 2017, 14(3), 300; doi:10.3390/ijerph14030300
6. Beretka J., Mathew P.J., 1995 Natural radioactivity of Australian building materials, industrial wastes and byproducts (Mineral raw materials), p 264-299
7. Brajendra Mishra B., Gubel N.R., Bhola R., 2013.: Uranium Processing and Properties, Springer New York, editors Morrel S.J., Jackson M.J., ISBN 978-1-4614-7590-3, DOI 10.1007/978-1-4614-7591-0, pp. 12-172
8. Brookins, D. G. 1988. Eh-pH Diagrams for Geochemistry. Berlin: Springer.
9. Clouvas A., Xanthos S., Antonopoulos-Domis M., Silv J., 2000.: Monte Carlo calculation of dose rate conversion factors for external exposure to photon emitters in soils. *Health Phys.* 78, p 295-302
10. Eggers, M.J.; Moore-Nall, A.L.; Doyle, J.T.; Lefthand, M.J.; Young, S.L.; Bends, A.L.; Crow Environmental Health Steering Committee; Camper, A.K., Potential Health Risks from Uranium in Home Well Water: An Investigation by the Apsaalooke (Crow) Tribal Research Group, *Geosciences* 2015, 5, 67-94; doi:10.3390/geosciences5010067
11. Dragović, S.; Janković Mandić, Lj.; Momčilović, M.; Onjia, A. Population doses from terrestrial gamma exposure in Serbia. *Arch. Oncol.* 2007, 15, 78–80.

12. Ervanne H., 2004.: Oxidation States Analyses of Uranium With Emphasis on Chemical Speciation in Geological Media, University of Helsinki Faculty of Science Department of Chemistry Laboratory of Radiochemistry Finland, ISSN 0358-7746 ISBN 952-10-1825-9 (nid.) ISBN 952-10-1826-7 (PDF)
13. Ferguson, J., & Goleby, A.B., 1979: Uranium in the Pine Creek Geosyncline: Proceedings of the International Uranium Symposium on the Pine Creek Geosyncline, Sydney, 4-8 June 1979. International Atomic Energy Agency, Vienna 1980. pp. 417-437.
14. Gertik S., 1984.: Istraživanje urana na području permo - trijaskih seimenata Stare planine (1984-1988), izveštaji Radošević S. i Stojanović M., za 1984 godinu.
15. Gertik, S., 2003.: *Uranium deposits and occurrences at Stara Planina mountain*, Dedraplast, Serbia, 1-176. ISBN 86-904013-0-X (in Serbian)
16. Gržetić, I.; Jelenković, R. Natural radioactive elements, geological origin and forms of appearing and migrations, In *Ionizing radiation from nature*, ed. Kovačević, M., Yugoslav Society for Radiation Protection, Serbia, 1995, 3-83. ISBN 86-80055-75-1
17. Hammond, C. R. (2000). The Elements, in Handbook of Chemistry and Physics (PDF) (81st ed.). CRC press. ISBN 0-8493-0481-4
18. Hassan A.K., S. Fares and M. Abd El-Rahma, 2014. Natural Radioactivity Levels and Radiation Hazards for Gypsum Materials Used in Egypt. Journal of Environmental Science and Technology, DOI: 10.3923/jest.2014.56.66, URL: <http://scialert.net/abstract/?doi=jest.2014.56.66>.
19. HASL-300, EML Procedures Manual, New York, 1983.
20. IRSN\_Information-Report\_Ruthenium-106-in-europe\_20171109
21. James R., 2014: Raymond James Analyst's Four Top Picks for the Coming Uranium Upswing Interview
22. Jelenković R., Serafimovski T., 1996: Ležišta metaličnih mineralnih sirovina: Retki i radioaktivni metali. Rudarsko-geološki fakultet, Kat. za Ekonomsku geologiju, 410 str.
23. Kogler, F., Bianconi, F., Buttner, W., 1983. Geochemical behaviour of uranium in latentic profiles in southern Tanzania. Uranium Exploration in Wet Tropical Environments: Proceedings of an Advisory Group Meeting on Uranium Exploration in Wet Tropical Environments, Vienna, 16-19 November 1981. International Atomic Energy Agency, 1983. pp 119-135.

24. Kovačević, J., 2006.: *Metalogeny of Stara Planina Mt. region*, Faculty of Mine and Geology, Belgrade, PhD thesis (in Serbian).
25. Kovačević, J; Nikić, Z; Papić, P. Genetic model of uranium mineralization in the Permo-Triassic sedimentary rocks of the Stara Planina eastern Serbia. *Sedimentary Geology* 2009; 219:252-261. doi: 10.1016/j.sedgeo.2009.05.015
26. Kovačević J., Srbljanović P., 1992.: Geoekološka istraživanja nivoa koncentracija prirodnih radioaktivnih elemenata u okolini bivših rudnika urana kod Kalne. Geoinstitut, Beograd, s 40.
27. Krauskopf K. B., 1979: Introduction to geochemistry (2d ed.): New York, MaGraw-Hill, Inc, p 617
28. Krneta, S.; Ciobanu, C.L.; Cook, N.J.; Ehrig, K.; Kontonikas-Charos A. Rare Earth Element Behaviour in Apatite from the Olympic Dam Cu–U–Au–Ag Deposit, South Australia, *Minerals* 2017, 7(8), 135; doi:10.3390/min7080135
29. Krstić, B.; Rakić, B.; Kalenić, A.; Divljan, M.; Maslarević, Lj.; Đorđević, M.; Dolić, D.; Đorđević, M.; Antonijević, I.; Raičević, D.; Dolić, D. *Base Geological Map 1:100000*, Sheet Knjaževac and Belogradčig, 1976, Savezni geoloski zavod, Beograd
30. Lawrence, L.M., 1991. Distribution of gold and ore-associated elements within lateritic weathering profiles of the Yilgarn Block, Western Australia. (unpub) Ph.D. Thesis, University of Western Australia.
31. Mathuthu, M.; Kamunda, C.; Madhuku, M. Modelling of Radiological Health Risks from Gold Mine Tailings in Wonderfonteinspruit Catchment Area, South Africa, *Int. J. Environ. Res. Public Health* 2016, 13(6), 570; doi:10.3390/ijerph13060570
32. Meija, J.; et al. (2016). "Atomic weights of the elements 2013 (IUPAC Technical Report)". *Pure Appl. Chem.* 88 (3): 265–91. doi:10.1515/pac-2015-0305
33. Milovanovic, B.; Ćirić, B.; *Geological Map of Serbia 1:200000*, Knjaževac-Zaječar and Priština-Niš sections, 1966. Geokarta, Beograd.
34. Mirion Theologies <https://www.mirion.com/introduction-to-radiation-safety/types-of-ionizing-radiation/>
35. Momčilović, M.; Kovačević, J.; Dragović, S. 2008.: Population doses from terrestrial exposure in the vicinity of abandoned uranium mines in Serbia, *ELSIVER Radiation Measurements*, 45 (2010), 225–230, doi.org/10.1016/j.radmeas.2010.01.035

36. Myers, J.S. Geology of granite, Journal of the Royal Society of Western Australia, 1997, 80(3)
37. Muto, T.; Hirono, S.; Kurata, H. Some aspects of fixation of uranium from natural waters, *Min. Geol.*, Tokio, 1965, Vol. 15(74), 287-298, and in: *Nuclear Scienece of Japan - Translations* (1968), No. 91 - Chemistry.
38. Nikić Z., Letić Lj., Kovačević J., Nikolić V. 2012. *State of elements of the environment in the broader area of former uranium mines in the catchment of the Trgoviski Timok*. Bulletin of the Faculty of Forestry 107: 163-174.
39. Nikić, Z.; Kovačević, J.; Papić, P. Uranium in the Groundwater of Permo-Triassic Aquifers of the Visok region, Stara Planina, Eastern Serbia. *Water Air Soil Pollut* 2008, 192:47-58. doi 10.1007/s11270-008-9633-z
40. Nikić Z., Kovačević J., Radošević B. (2002) Uranium content in ground water in Stara Planina Triassic sediments. In: Merkel B.J., Planer-Friedrich B., Wolkersdorfer C. (eds) *Uranium in the Aquatic Environment*. Springer, Berlin, Heidelberg, [https://doi.org/10.1007/978-3-642-55668-5\\_11](https://doi.org/10.1007/978-3-642-55668-5_11), p 99-106
41. Peng, X.; Min, M.; Qiao, H.; Wang, J.; Fayek, M. Uranium-Series Disequilibria in the Groundwater of the Shihongtan Sandstone-Hosted Uranium Deposit, NW China, *Minerals* 2016, 6(1), 3; doi:10.3390/min6010003
42. Quindos L.S., Fernandez P.L., Rodenas C., Gomez'Arozamena J., Arteche J., 2004.: Conversion factors for external gamm dose derivated from natural radionucleides in soils. *Radioact.* 71, p 139-145
43. Rich, R.A.; Holland, H.D.; Peterson, U. *Hydrothermal uranium deposits*, In: *Developments in Economic Geology*, 1977, Vol. 6, Elsevier, Amsterdam
44. Rose A.W. 1994. Drainage geochemistry in uranium exploration. . In Hale M. and Plant J.A. eds., *Drainage Geochemistry, Handbook of Exploration Geochemistry*, v. 6, pp 559-599. Elsevier.
45. Needham, S., 2009.: "Yeelirrie uranium deposit in Western Australia". *Parliamentary Library*. Canberra: Parliament of Australia.
46. René, M.; Dolníček, Z. Uraninite, Coffinite and Brannerite from Shear-Zone Hosted Uranium Deposits of the Bohemian Massif (Central European Variscan Belt), *Minerals* 2017, 7(4), 50; doi:10.3390/min7040050
47. Rogers J.J.W.; Ragland, P.C.; Nishimori, R.K.; Greenberg, J.K.; Hauck, S.A. Varieties of Granitic Uranium Deposits and Favorable Exploration Areas in the Eastern United States, *Economic Geology* 1978, Vol. 73, 1978, pp. 1539-1555
48. Ronald M., 2013: Earth's Evolving Systems: The History of Planet Earth, Jones and Barlet Learning, ISBN 978-0-7637-8001-2, 6048, pp 277-283

49. Rutherford, N. F., 2006: Uranium Deposits: Geochemistry, Radiometrics and Models. Notes to accompany workshop presented to: Batu Mining Monolia LLC and Gobi Coal and Energy LLC, Ulaanbaatar 94 p.
50. Saito K., Jacob P., 1995.: Gamma raz fields in the air due to sources in the ground. *Radiat. Prot. Dosim.* 58, p 29-45
51. Stephen P. Jackson, S., P., 2002: "Sensing and repairing DNA double-strand breaks," *Carcinogenesis*, Vol. 23, No. 5, 687-696, May 2002, Oxford University Press.DNA Replication, Repair and Recombination
52. Stulberg A.,N., Fuhrmann J., 2013: Matthew William Busby Vaundet Hopes The Nuclear Renaissance and International Security - edited by, Standfrod University press p.124
53. Todorović, D.; Radenković, M.; Popović, D.; Ivanov, S.; Djurić, G. Contents of radionuclides in the region of Stara Planina. In: M. Todorović, D. Veselinović, eds. Proc. IV Yugoslav Symposium Chemistry and Environment, pp. 431-433, Zrenjanin, 2001. The Serbian Chemical Society.
54. Vakanjac B.B, Ristic Vakanjac R., V., Rutherford F., N., Damjanovic V., 2015: Regional Setting and Correlation of Exploration Results for the Naarst Uranium Deposit Dornogobi Province, South East Mongolia, Springer, Arabian Journal of Geosciences ISSN 1866-7511 Arab J Geosci DOI 10.1007/s12517-015-1791-x
55. United Nations Scientifis Committe on the Effects of Atomic Radiation (UNESCAR). Sources, effects and riscs of ionizing radiation. United Nations, New York (1998).
56. United Nations Scientifis Committe on the Effects of Atomic Radiation (UNESCAR). Exposure from natural radiation sources. United Nations, New York (2000).
57. Vranješ, B.; Mitrović, B.; Andrić, V.; Grdović, S. Radioactivity in environment of Stara Planina mountain, in area of summer school for mountain animal breeding, RAD Conference Proceedings, 2016, vol. 1, pp. 75-78
58. Wang J., 1984.: Natural Organic Matter and Its Implications in Uranium Mineralization, *Acta Geochimica*, Springer, Geochemistry, July 1984, Volume 3, Issue 3, pp 260–271
59. Wang, X.; Feng, Q.; Sun, R.; Liu, G. Radioactivity of Natural Nuclides (40K, 238U, 232Th, 226Ra) in Coals from Eastern Yunnan, China. *Minerals* 2015, 5(4), Special Issue Minerals in Coal, 637-646; doi:10.3390/min5040513

60. Wilde, A.; Otto, A.; Jory, J.; MacRae, C.; Pownceby, M.; Wilson, N.; Torpy, A. Geology and Mineralogy of Uranium Deposits from Mount Isa, Australia: Implications for Albite Uranium Deposit Models, *Minerals* 2013, 3(3), 258-283; doi:10.3390/min3030258
61. Xu, Q.J.; Ye, F.W.; Liu, S.F.; Zhang, Z.X.; Zhang, C. Hyperspectral Alteration Information from Drill Cores and Deep Uranium Exploration in the Baiyanghe Uranium Deposit in the Xuemisitan Area, Xinjiang, China, *Remote Sens.* 2017, 9(5), 451; doi:10.3390/rs9050451
62. [http://www.slate.com/articles/news\\_and\\_politics/explainer/2003/07/what\\_is\\_yel\\_lowcake\\_anyway.html](http://www.slate.com/articles/news_and_politics/explainer/2003/07/what_is_yel_lowcake_anyway.html).
63. <http://uraniuminvestingnews.com/16985/uranium-outlook-2014-will-be-the-year-of-uranium.html>
64. [http://www.energyfuels.com/investors/uranium\\_information/](http://www.energyfuels.com/investors/uranium_information/)
65. <https://investingnews.com/daily/resource-investing/energy-investing/uranium-investing/uranium-stocks-to-watch-in-2014-raymond-james-top-picks/>
66. <http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/uranium-resources/geology-of-uranium-deposits.aspx>
67. <https://www.armscontrol.org/factsheets/nucleartesttally>, Daryl Kimball, Executive Director
68. <http://www.ucsusa.org/nuclear-power/nuclear-power-accidents/history-nuclear-accidents#.WglXdVWnFhE>
69. <http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/uranium-resources/supply-of-uranium.aspx> (Updated December 2016)