

УНИВЕРЗИТЕТ У БЕОГРАДУ

ФИЗИЧКИ ФАКУЛТЕТ

Ивана Ж. Вукашиновић

Зависност дистрибуције радионуклида  
U– и Th–серије,  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$  од физичко–  
хемијских особина земљишта у систему  
земљиште–биљка

докторска дисертација

Београд, 2019.

UNIVERSITY OF BELGRADE

FACULTY OF PHYSICS

Ivana Ž. Vukašinić

Distribution dependence of U– and Th–  
series radionuclides,  $^{40}\text{K}$  and  $^{137}\text{Cs}$  on  
physico–chemical properties of soil in the  
soil–plant system

Doctoral Dissertation

Belgrade, 2019.

*Ова дисертација је урађена у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине Института за нуклеарне науке "Винча"*

**Подаци о ментору и члановима комисије**

**Ментор:**

Име и презиме: др Драгана Тодоровић

Звање: научни саветник

Институција: Универзитет у Београду, Институт за нуклеарне науке „Винча“

**Чланови комисије:**

Др Јован Пузовић, редовни професор, Физички факултет, Универзитет у Београди

Др Милош Вићић, ванредни професор, Физички факултет, Универзитет у Београди

Др Драгана Тодоровић, научни саветник, Институт за нуклеарне науке „Винча“,  
Универзитет у Београду

**Датум одбране:**

# ЗАВИСНОСТ ДИСТРИБУЦИЈЕ РАДИОНУКЛИДА U– И Th–СЕРИЈЕ, <sup>40</sup>K И <sup>137</sup>Cs ОД ФИЗИЧКО–ХЕМИЈСКИХ ОСОБИНА ЗЕМЉИШТА У СИСТЕМУ ЗЕМЉИШТЕ–БИЉКА

## Резиме

Више од 70% укупне годишње дозе јонизујућег зрачења којој је изложено становништво потиче из природних извора терестријалног и космогеног порекла, при чему више од 50% потиче из земљишта. Са становишта заштите од јонизујућих зрачења од велике је важности изложеност природним радионуклидима под називом NORM (Naturally Occurring Radioactive Material) који су у животну средину унесени под антропогено модификованим условима односно под утицајем технолошких процеса који за последицу имају повећање њихових концентрација у животној средини. Због тога је познавање садржаја радионуклида и њихове дистрибуције/редистрибуције неопходно јер земљиште није само извор континуалног излагања јонизујућем зрачењу већ и средина посредством које радионуклиди могу мигрирати у друге компартамне животне средине.

У овој докторској дисертацији истраживање је реализовано на локацијама претходно изложеним антропогеном дејству које представља извор модификације основног нивоа гама зрачења како у земљишту тако и у органима биљних врста. Истраживањем је обухваћено земљиште: а) третирано фосфатним ђубривима, б) урбаног подручја и ц) у непосредној близини термоелектрана на фосилна горива.

Утицај антропогеног дејства на основне нивое активности биљног матријала испитан је у узорцима лишћа листопадног дрвећа кестена и липе у сезонама пролеће, лето, јесен и узорцима трава и лековитих трава на крају вегетативног периода.

Анализирани радионуклиди чије је концентрације активности било неопходно познавати су били они дугог периода полураспада, природни <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>226</sup>Ra, <sup>210</sup>Pb, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K и подједнако значајни <sup>137</sup>Cs антропогеног порекла. За детекцију радионуклида је коришћен метод спектрометрије гама зрачења полупроводничким HPGe детекторима високе резолуције чиме је омогућено квалитативно и квантитативно одређивање радионуклида емитера гама зрака.

Резултат истраживања је указивао да варијације активности природних радионуклида у земљишту без обзира на врсту антропогене модификације могу бити повезане са основним физичко–хемијским особинама које земљиште карактеришу. Представљени су модели којима се предвиђају нивои концентрација активности природних радионуклида у зависности од особина земљишта: гранулометријског састава, рН вредности, садржаја органске материје/хумуса и калцијум–карбоната.

Испитана је и зависност расподеле вредности односа концентрација активности између радионуклида чланова истог низа ( $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ ), различитих низова ( $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ ,  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) и других ( $^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$ ,  $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$ ) са дубином зељишта као индикативна мера антропогеног утицаја.

У оквиру ове дисертације анализирани су и трансфер фактори земљиште–биљка. Међу испитиваним физичко–хемијским особинама, најзначајнији утицај на трансфер факторе испитиваних радионуклида је показао гранулометријски састав земљишта који је обухватио честице димензија 2000–200  $\mu\text{m}$  (крупан песак), 200–50  $\mu\text{m}$  (ситан песак), 50–10  $\mu\text{m}$  (крупан прах), 10–2  $\mu\text{m}$  (ситан прах) и <2  $\mu\text{m}$  (глина), за које је постојала индикација да су повезане са био–доступним фракцијама концентрација активности.

**Кључне речи:** природни радионуклиди,  $^{137}\text{Cs}$ , особине земљишта, дистрибуција, предикција, трансфер–фактор, гамаспектрометрија

**Научна област:** Примењена физика

**Ужа научна област:** Заштита животне средине од јонизујућег зрачења

**UDK број:**

**DISTRIBUTION DEPENDENCE OF U– AND Th–SERIES RADIONUCLIDES,  
<sup>40</sup>K AND <sup>137</sup>Cs ON SOIL PHYSICO–CHEMICAL PROPERTIES  
IN THE SOIL–PLANT SYSTEM**

**Abstract**

More than 70% of the total annual human exposures to ionizing radiation originate from natural sources of terrestrial and cosmogenic origin, while more than 50% arises from soil. Gamma dose rate assessments of terrestrial origin are associated to NORMs (Naturally Occurring Radioactive Materials) which occur due to application of technological processes enhancing their concentrations in the environment. Knowledge about radionuclides contents and their distribution/redistribution in the soil environment is necessary because soil is a source of continuous exposure to ionizing radiation while migration and transport of radionuclides in soil may influence their possible concentration in plants or transfer to other natural compartments.

In this doctoral dissertation, the research was carried out at locations previously exposed to anthropogenic activities which are a source of modification of natural background activity levels. The study covered: a) soil treated with phosphate fertilizers, b) soil from urban areas and c) soil in the immediate vicinity of coal fired power plants.

Anthropogenic effects on the background activity levels of vegetation were analyzed in the samples of leaves of deciduous trees of chestnut and linden in spring, summer and autumn and samples of grass and medicinal herbs at the end of the vegetative period.

Radionuclides which activities were necessary to assess were those with long half–lives, natural <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>226</sup>Ra, <sup>210</sup>Pb, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K and equally important <sup>137</sup>Cs of anthropogenic origin. Low levels of gamma radiation were detected by gamma–ray spectrometry method using high–resolution semiconductor HPGe detectors which allow qualitative identification and quantitative determination of radionuclides gamma emitters.

The results of the study showed that variations of natural radionuclides activity concentrations in soil may be associated to the basic physical and chemical characteristics of soil irrespective of the type of anthropogenic modification. The models that predict the levels of natural radionuclides activity concentrations based on the main soil properties: granulometric composition, pH values, contents of organic matter/humus and of calcium

carbonate are presented. A study of the depth distribution of activity concentration ratios between the radionuclides members of the same series ( $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ ), different series ( $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ ,  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) and others ( $^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$ ,  $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$ ) was conducted as an indicative measure of anthropogenic impact.

Soil-to-plant transfer factors were also analyzed in this thesis. The most significant influence on the transfer factors of investigated radionuclides showed granulometric composition of soil that included particles sizes 2000–200  $\mu\text{m}$  (coarse sand), 200–50  $\mu\text{m}$  (fine sand), 50–10  $\mu\text{m}$  (coarse silt), 10–2  $\mu\text{m}$  (fine silt) and <2  $\mu\text{m}$  (clay) which were found to be associated to the bio-available fractions of activity concentrations of radionuclides.

**Key words:** natural radionuclides,  $^{137}\text{Cs}$ , soil properties, distribution, prediction, transfer factor, gamaspectrometry

**Scientific field:** Applied physics

**Scientific discipline:** Protection of the environment from ionising radiation

**UDK number:**

## Садржај

1. Увод.....	1
2. Теоријске основе.....	4
2.1. Порекло радиоактивности у животној средини.....	5
2.1.1. Природни радиоактивни низови.....	5
2.1.2. Секуларна равнотежа у радиоактивном низу.....	8
2.1.3. Радионуклиди у терестријалном окружењу.....	10
2.1.4. Излагање јонизујућем зрачењу.....	13
2.2. Спектрометрија гама зрачења.....	15
2.2.1. Интеракција гама-зрачења са материјом.....	15
2.2.2. Интеракција гама-зрачења са детектором.....	20
2.2.3. Полупроводнички детектори гама-зрачења.....	23
2.2.4. HPGe детектори гама зрачења.....	25
2.3. Калибрација детектора и одређивање активности.....	29
2.3.1. Енергетска калибрација.....	29
2.3.2. Калибрација ефикасности.....	29
2.3.3. Одређивање активности.....	35
2.3.4. Гамаспектрометрија узорака из животне средине.....	39
2.4. Радионуклиди у систему земљиште-биљка.....	47
2.4.1. Физичко-хемијске особине земљишта.....	47
2.4.2. Присуство радионуклида у земљишту.....	50
2.4.3. Антропогени утицај и изложеност NORM.....	53
2.4.4. Трансфер радионуклида из земљишта у биљке.....	60
3. Материјали и методе.....	62
3.1. Истраживано подручје.....	62
3.1.1. Сакупљање узорака земљишта.....	63
3.1.2. Сакупљање узорака биљног материјала.....	67
3.2. Припрема узорака.....	69
3.3. Методе мерења.....	72
3.3.1. Гамаспектрометријска анализа.....	72
3.3.1.1. Калибрација детектора.....	73



3.3.1.2. Одређивање активности.....	77
3.3.1.2.1. Одређивање активности у узорцима лишћа.....	78
3.3.1.3. Трансфер фактор.....	79
3.3.2. Одређивање физичко-хемијских особина земљишта.....	80
3.4. Анализа резултата.....	80
3.4.1. Статистичка анализа.....	80
3.4.2. Вишеструка линеарна регресија.....	83
4. Резултати и дискусија.....	85
4.1. Радионуклиди у земљишту третираном фосфатним ђубривима.....	85
4.1.1. $^{137}\text{Cs}$ у земљишту третираном фосфатним ђубривима.....	91
4.1.2. Утицај физичко-хемијских особина земљишта.....	92
4.2. Радионуклиди у земљишту урбаног подручја.....	95
4.2.1. $^{137}\text{Cs}$ у земљишту Урбаног подручја.....	99
4.2.2. Утицај физичко-хемијских особина земљишта.....	101
4.3. Радионуклиди у земљишту у близини термоелектрана на угаљ.....	107
4.3.1. $^{137}\text{Cs}$ у земљишту у близини термоелектрана на угаљ.....	111
4.3.2. Утицај физичко-хемијских особина земљишта.....	112
4.3.3. Утицај удаљености од термоелектрана на угаљ.....	114
4.4. Моделовање вишеструком линеарном регресијом.....	117
4.5. Радионуклиди у узорцима лишћа листопадног дрвећа.....	128
4.5.1. Утицај особина земљишта на трансфер из земљишта у лишће...	135
4.6. Радионуклиди у узорцима траве.....	139
4.6.1. Утицај особина земљишта на трансфер из земљишта у траву...	152
5. Закључак.....	157
Литература.....	159

## 1. Увод

Природни радионуклиди у саставу земљишта или земљишних раствора континуално учествују у биогеохемијским процесима. На дистрибуцију радионуклида у животној средини утичу механизми миграције и ретенције узрокујући варијабилности њихових концентрација активности [1, 2]. Међутим, на нивое природне радиоактивности могу значајно утицати антропогена дејства повећавајући мобилност и доступност природних радионуклида, нарочито у земљишту одакле они могу доспевати у друге делове животне средине. Карактеристика немодификованог земљишта је и ненарушена секуларна равнотежа у природним радиоактивним серијама [3], а евентуално нарушавање равнотеже је најчешће могуће објаснити различитим физичко-хемијским особинама дугоживећих изотопа чланова низова [4, 5, 6, 7]. Испитивање расподеле и флукуација природне активности у земљишту изложеном антропогеном дејству предмет је новијих студија [8, 9, 10, 11], али се и даље сматра да су подаци о понашању дугоживећих радионуклида у земљишту недовољно познати [12].

За разлику од природних радионуклида који су учествовали у процесу формирања земљишта, вештачки радионуклиди потичу из атмосфере и бивају депоновани на површину већ формираног земљишта, па њихова дистрибуција зависи од земљишног окружења и климатских услова. Према томе, дистрибуције природних и произведених радионуклида у животној средини могу бити резултат природног и антропогеног дејства.

Циљ овог истраживања је да се на основу анализе узорака земљишта и биљака из животне средине добију сазнања о потенцијалној редистрибуцији природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  која је последица различитих антропогених активности. Једним истраживањем обухваћене су три врсте употребне вредности земљишта: обрадивог, индустријског и урбаног, лоцираног на подручју града Београда. На основу вредности концентрација активности природних радионуклида процењено је да ли се оне налазе на нивоу просечних вредности наведених у литератури и да ли се на локацијама на којима је узорковање извршено уочава одређени степен модификације природних нивоа.

Испитане су дистрибуције концентрација активности радионуклида  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и њихових односа активности  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ ,

$^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ ,  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$  и других с обзиром на њихову вертикалну или хоризонталну распоређеност. Предложени су модели којима се нивои концентрација активности природних радионуклида могу предвидети односно очекивати уколико су вредности изабраних основних особина земљишта познате.

На местима узорковања биљака анализиран је и утицај основних особина земљишта на варијације тзв. трансфер фактора земљиште–биљка поменутих радионуклида и испитано како се таква зависност може објаснити. Резултати овог истраживања били би од користи при одређивању параметара у студијама које се баве проценама радијационог ризика коме је изложено становништво и живи свет.

У поглављу ове тезе под називом Теоријске основе изложена су најважнија сазнања о пореклу природне радиоактивности у животној средини (подпоглавље 2.1), а затим је представљен теоријски увод везан за спектрометрију гама зрачења и начину рада полупроводничких детектора гама зрачења (2.2). Међу њима су издвојени HPGe детектори високе резолуције и описана калибрација детектора као најзначајнији корак у циљу одређивања активности радионуклида применом гамаспектрометријске методе (2.3). Под којим условима се овај метод примењује када се ради о узорцима из животне средине ниског нивоа гама зрачења детаљније је објашњено у истом подпоглављу. На крају је дат кратак преглед понашања природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  у земљишном окружењу (2.4).

У поглављу 3. под називом Материјали и методе неведене су примењене експерименталне методе истраживања које су обухватиле методе сакупљања и припреме узорака (3.1), затим методе калибрације ефикасности детектора, гамаспектрометријског мерења концентрација активности радионуклида и одређивања физичко–хемијских својстава земљишта (3.3). Наведене су статистичке методе примењене у циљу анализе резултата мерења (3.4).

У првом делу поглавља 4. Резултати и дискусија у засебним подпоглављима представљени су резултати анализе утицаја сваког појединачног антропогеног извора на дистрибуцију радионуклида у земљишту, третираном фосфатним ђубривом (4.1), урбаном (4.2) и у непоредној близини термоелектрана на угаљ (4.3). У следећем подпоглављу анализом су обухваћени сви испитивани узорци земљишта (број узорака  $n=80$ ) независно од локације и дубине њиховог узорковања. Предложени су модели којима се дистрибуције испитиваних

радионуклида ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) у земљишту могу предвиђати на основу основних физичко–хемијских особина земљишта на месту узорковања (4.4). Моделовање је извршено применом методе вишеструке линеарне регресије на скуповима нормално дистрибуираних података тј. мерених концентрација активности као зависно променљивих и особина земљишта као независно променљивих величина.

Други део поглавља 4. Резултати и дискусија посвећен је анализи концентрација активности радионуклида измерених у узорцима биљног материјала и вредности њихових трансфер фактора из земљишта у биљке. Пирсоновом корелационом анализом испитане су релације између трансфер фактора и физичко–хемијских особина земљишта и резултати су се односили на интегралне узорке биљног материјала који су се састојали од лишћа две врсте листопадног дрвећа, кестена и липе (подпоглавље 4.5) и од трава и лековитих трава (подпоглавље 4.6). За узорке самоникле вегетације (трава и лековитих трава) сакупљених у близини термоелектрана на угаљ анализирана је претпоставка линеарности трансфера из земљишта у биљке (4.6.1). Примењен је метод прости линеарне регресије користећи експерименталне податке, мерене концентрације активности радионуклида у биљном материјалу као зависно променљиве и концентрације активности у земљишту као независно променљиве величине.

Закључци ове докторске тезе представљени су 5. поглављу.

## 2. Теоријске основе

### 2.1. Порекло радиоактивности у животној средини

Сви хемијски елементи чија се атомска језгра налазе у нестабилном стању су радиоактивни и називају се радионуклидима. Радионуклиди на Земљи могу потицати из природних извора и извора антропогеног порекла. Човек и животна средина одувек су били изложени природним изворима радионуклида и радиоактивног зрачења чије порекло је двојако: примордијалног или космогеног типа. Примордијални радионуклиди настали су заједно са стабилним нуклидима у току процеса космичке нуклеогенезе која се одвијала путем термонуклеарних реакција у језгрима звезда. У току времена у коме се одвијала еволуција звезда чије је језгро нестабилно могло је доћи до звездане експлозије типа супернова што је резултирало обогаћивањем првобитног облака нуклида тешким језгрима. Из таквог првобитног облака могли су настати планетрани системи, као што је Сунчев систем, у чијем саставу су примордијални радионуклиди били заступљени. У току формирања Сунчевог система, примордијални радионуклиди постају и саставни део Земље због чега се називају терестријалним радионуклидима. Терестријални радионуклиди могу бити: *а*) чланови три природна радиоактивна низа чији су родитељи уранијум ( $^{238}\text{U}$ ), актино–уранијум ( $^{235}\text{U}$ ) и торијум ( $^{232}\text{Th}$ ), а крајњи продукти стабилни изотопи олова  $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  и  $^{208}\text{Pb}$ , респективно и *б*) изотопи елемената лакших од олова који нису чланови три поменута природна низа, а који улазе у састав земљине коре, а то је пре свега  $^{40}\text{K}$  чији садржај у укупном калијуму (смеси изотопа  $^{39}\text{K}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{41}\text{K}$ ) износи 0,0117%. Ови радионуклиди се, према томе, могу наћи у земљишту, ваздуху, води, биолошким системима, укључујући и људски организам, ако су сами дугоживећи (тј. њихово време полураспада упоредиво је са старошћу Земље) или ако су произведени у распадима својих дугоживећих предака [1, 2, 12].

Природно радиоактивно зрачење потиче и од радионуклида космогеног порекла који се јављају као резултат нуклеарних реакција насталих у интеракцијама високо–енергетског космичког зрачења са Земљином атмосфером. Већина примарног космичког зрачења (интергалактичког или Сунчевог порекла) бива скренута Земљиним магнетним пољем, а део зрачења који продире у атмосферу

губи енергију у сударима са честицама атмосфере. У интеракцијама примарног космичког зрачења са елементима заступљеним у атмосфери настају тзв. космогени радионуклиди као што су  $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{32}\text{Si}$ ,  $^{32}\text{P}$ ,  $^{33}\text{P}$ ,  $^{35}\text{S}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{37}\text{Ar}$ ,  $^{39}\text{Ar}$ ,  $^{81}\text{Kr}$ . Међу њима се могу издвојити они дужег периода полураспада као што су  $^3\text{H}$  (12,33 год),  $^7\text{Be}$  (53,29 d),  $^{14}\text{C}$  (5730 год) који се редовно детектују у животној средини у узорцима падавина, аеросолних честица из приземних слојева атмосфере, биолошким материјалима итд. [2, 13].

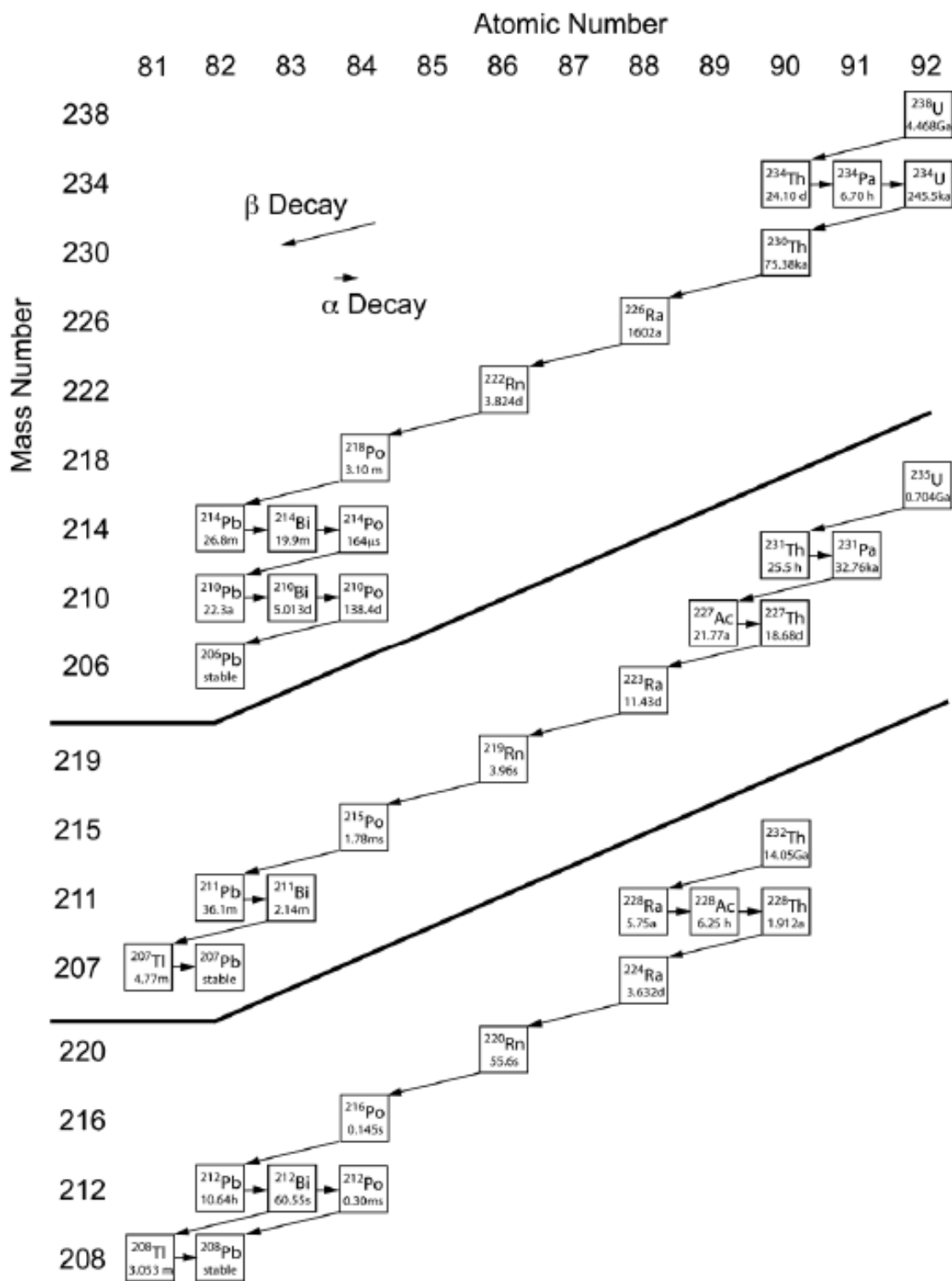
Откриће радиоактивности крајем XIX века и фисије уранијума у прошлом веку доводи до остваривања контролисане употребе нуклеарне енергије односно феномена фисије у нуклерним реакторима, што за последицу има стварање вештачких (произведених) радионуклида и њихово уношење у све фазе животне средине. Као резултат антропогених активности, произведени радионуклиди могу се јавити као последица експлоатације нуклеарних реактора (корозиони продукти:  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ; продукти у отпадним водама које хладе реактор:  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{131}\text{I}$ ) и као последица коришћења радионуклида у медицинске и индустријске сврхе. Значајан утицај имају радионуклиди – фисиони продукти ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ – $^{90}\text{Y}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ – $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{103,106}\text{Ru}$ ,  $^{129,131}\text{I}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ – $^{140}\text{La}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{147}\text{Nb}$  итд.) који су у животну средину унети током нуклеарних проба, посебно надземних, или су као последица акцидената у нуклеарним електранама на тло најчешће доспевали у форми радиоактивних падавина [13].

### 2.1.1. Природни радиоактивни низови

Елементи из природних извора чији је атомски број већи од 82 (почев од бизмута  $Z=83$  и  $N/Z=1,46$ ) припадају радиоактивним низовима, односно ланцима узастопних радиоактивних распада. Радиоактивни низови добили су назив према родоначелнику (родитељу) низа, због чега њихови продукти распада (потомци) припадају низу уранијума ( $^{238}\text{U}$ ), актино–уранијума ( $^{235}\text{U}$ ) и торијума ( $^{232}\text{Th}$ ), чија су времена полураспада реда величине старости Земље. У тзв. уранијум–радијумском низу, почев од родитеља  $^{238}\text{U}$ , након 14 трансформација (8  $\alpha$ - и 6  $\beta$ -распада) настаје стабилни изотоп олова  $^{206}\text{Pb}$ . Радионуклид  $^{238}\text{U}$  ( $t_{1/2}=4,5\cdot 10^9$  год) је зачетник  $4n+2$  низа, где је  $n$  цео број између 51 и 59, што значи да се масени број родитеља и свих чланова низа може одредити на основу поменуте формуле.

Слично, у уранијум–актинијумском или  $4n+3$  низу, при чему је  $n$  цео број између 51 и 58, почев од родитеља  $^{235}\text{U}$  ( $t_{1/2}=7,04\cdot 10^8$  god), после 11 трансформација низ се завршава стабилним изотопом олова  $^{207}\text{Pb}$ . Торијумов низ, који се може представити формулом  $4n$ , при чему је  $n$  цео број између 52 и 58, почиње родитељем  $^{232}\text{Th}$  ( $t_{1/2}=1,405\cdot 10^{10}$  god), а завршава се стабилним  $^{208}\text{Pb}$ . Предпоставља се да је постојао и низ  $4n+1$  типа који се састојао од радиоактивних елемената масених бројева који при дељењу са 4 дају остатак 1, чији је родоначелник  $^{237}\text{Np}$  ( $t_{1/2}=2,14\cdot 10^6$  god), а последњи у низу стабилни  $^{209}\text{Bi}$ , али с обзиром на његов период полураспада који је  $\sim 10^3$  пута краћи од времена старости Земље, веома је мало заступљен у природи заједно са својим потомцима [14]. Принципијелне шеме радиоактивних низова дате су на Слици 1.

У ланцима узастопних нуклеарних распада, производ потомка распада је такође радиоактиван и може настати гранањем, тј. на два начина  $\alpha$ -распадом и  $\beta$ -распадом ( $\beta^-$  најчешће) са различитом вероватноћом, при чему емисије  $\alpha$  и  $\beta$  честица представљају конкуретне процесе. Укупна вероватноћа распада језгра у јединици времена  $\lambda$  може се онда изразити збиром:  $\lambda = \lambda_\alpha + \lambda_\beta$ , где је  $\lambda_\alpha$  вероватноћа за емисију  $\alpha$ -честице и  $\lambda_\beta$  вероватноћа за емисију  $\beta$  честице. У  $\alpha$ -распаду нуклида,  $\alpha$ -честица ( $^4\text{He}^{2+}$ ) напушта језгро тунелирањем кроз потенцијалну баријеру и има дискретне вредности енергије од 4 до 10 MeV, па је њен енергетски спектар линијски. У зависности од врсте  $\beta$ -распада нуклида, честица која се емитује може бити  $\beta^-$  (електрон) или  $\beta^+$  (позитрон), док остатак енергије распада односи антинеутрино односно неутрино. Обе честице деле енергију распада статистички, због чега је њихов спектар континуалан (од нуле до до  $\sim 3,3$  MeV). Новостворена језгра настала у  $\alpha$ - и  $\beta$ -распаду обично ће се наћи у ексцитираном стању, одакле ће се најчешће деексцитивати емитовањем  $\gamma$ -кванта [14].



Слика 1. Природни низови радиоактивних распада чији су родоначелници уранијум  $^{238}\text{U}$ , уранијум  $^{235}\text{U}$  и торијума  $^{232}\text{Th}$  [15].



Радиоактивност неког извора представља број распада у јединици времена и изражава се бекерелима (Bq) тј. бројем распада у секунди. Ако је у извору број присутних радиоактивних језгара  $N$  онда се брзина радиоактивног распада односно активност  $A$  радиоактивног извора може одредити из једначине:

$$A = -\frac{dN}{dt} = N \cdot \lambda \quad \Rightarrow \quad N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1)$$

чије решење представља закон радиоактивног распада и где је вероватноћа радиоактивног распада дата константом распада  $\lambda$  односно периодом полураспада  $t_{1/2}$  који представља време потребно да се половина почетног броја језгара  $N_0$  распадне ( $\lambda = \ln 2 / t_{1/2}$ ).

### 2.1.2. Секуларна равнотежа у радиоактивном низу

У радиоактивном низу од  $n$  чланова који настају узастопним радиоактивним распадима ( $N_1 \rightarrow N_2 \rightarrow \dots \rightarrow N_n$ ), све до стварања стабилног изотопа ( $N_n$ ) којим се низ завршава, радиоактивни процес се може представити следећим диференцијалним једначинама (2):

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1 \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ &\dots \\ \frac{dN_n}{dt} &= \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n \end{aligned} \quad (2)$$

при чему је  $N_i$  број атома  $i$ -тог члана низа, а  $\lambda_i$  његова константа распада [14]. Члан  $dN_1/dt$  представља промену броја атома родитеља,  $dN_2/dt$  промену броја атома његовог потомка, а  $dN_n/dt$  промену броја атома последњег члана у низу који је стабилан ( $\lambda_n=0$ ). Решење претходног система једначина дао је Batemann (1910) [14], за почетне услове  $t=0$ ,  $N_1=N_{01}$  и  $N_{02}=\dots=N_{0n}=0$ . Будући да је број атома родитеља дат законом радиоактивног распада (3):

$$N_1 = N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (3)$$

онда је промена броја атома потомка дата једначином (4):

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (4)$$

и опште решење  $n$ -тог интеграла једначином (5):

$$N_n(t) = C_1 e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t} + \dots + C_n e^{-\lambda_n t} \quad (5)$$

Константе интеграције одређују се на основу (6):

$$\begin{aligned} C_1 &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_1} \cdot \dots \cdot \frac{\lambda_n}{\lambda_n - \lambda_1} N_{01} \\ C_2 &= \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \cdot \dots \cdot \frac{\lambda_n}{\lambda_n - \lambda_2} N_{01} \\ C_n &= \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_n} \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot \dots \cdot \frac{\lambda_n}{\lambda_{n-1} - \lambda_n} N_{01} \end{aligned} \quad (6)$$

Пошто је  $\lambda = \ln 2 / t_{1/2}$ , из једначине (4) се може закључити да се у зависности од времена полураспада радионуклида претка и потомка могу издвојити три случаја: а)  $t_{1/2}^1 \gg t_{1/2}^2$ , полу-живот претка је много већи од полу-живота потомка; б)  $t_{1/2}^1 > t_{1/2}^2$ , полу-живот претка је већи (али не и много већи) од полу-живота потомка и у)  $t_{1/2}^1 < t_{1/2}^2$ , полу-живот родитеља је мањи од полу-живота потомка.

Радиоактивни низ ће се наћи у стању радиоактивне равнотеже у оном тренутку када број атома који се распадне постане једнак броју атома који настаје распадом. Услов који би онда требало применити на чланове низа био би  $dN/dt = 0$ , који би био испуњен ако је  $\lambda=0$ . Пошто то није могуће ( $\lambda \neq 0$ ), овај услов би могао бити приближно испуњен онда када период полураспада претка тежи бесконачности ( $t_{1/2} \rightarrow \infty \Rightarrow \lambda = \ln 2 / t_{1/2} \approx 0$ ) тј. онда када је знатно већи од периода полураспада потомка:  $t_{1/2}^1 \gg t_{1/2}^2$ . Услов за приближну равнотежу у низу је према томе испуњен за низ  $^{238}\text{U}$  ( $t_{1/2}=4,5 \cdot 10^9$  god), јер је  $\lambda_1 \approx 0$  и  $N_1 = N_{01} = \text{const.}$  (3), чиме је и услов за радиоактивну равнотежу испуњен тј.  $dN_2/dt=0$ . Из једначине (7) добија се једначина за активност потомка (8):

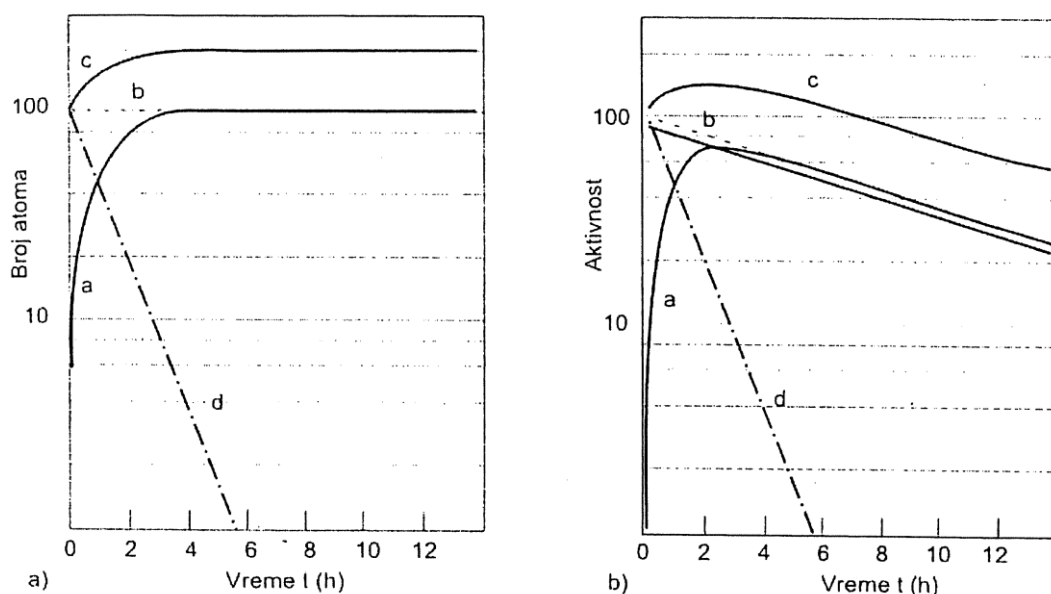
$$A = \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (7) \quad \Rightarrow \quad A = \lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 \quad (8)$$

из које следи да ће активност потомка расти са временом и да ће се после времена од одређеног броја времена полураспада потомка ( $\approx 7 t_{1/2}$ ) изједначити са активношћу претка (Слика 2). У том случају, број атома који настаје биће једнак броју атома који се распадне (8), па систем ступа у стање секуларне или трајне равнотеже.

Прелазна или транзитна радиоактивна равнотежа настаје уколико је испуњен услов  $t_{1/2}^1 > t_{1/2}^2$ , односно ако важи да је  $\lambda_1 < \lambda_2$ , због чега се члан  $e^{-\lambda_2 t}$  може занемарити у односу на  $e^{-\lambda_1 t}$  у (4), па број атома потомка постаје (9):

$$N_2 \approx \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (9) \quad \Rightarrow \quad \frac{N_2}{N_1} \approx \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (10)$$

што значи да када се равнотежа успостави, укупна активност опада са временом полураспада претка, па се однос броја атома претка и потомка након успостављене равнотеже може наћи помоћу релације (10). У трећем случају, време полураспада нуклида родитеља краће је од времена полураспада нуклида потомка ( $t_{1/2}^1 < t_{1/2}^2$ ), па нема равнотеже односно активност продукта распада се смањује у складу са сопственим временом полураспада.



Слика 2. Секуларна и прелазна радиоактивна равнотежа [14]: а) а – Нарастајућа активност потомка, б - Активност претка ( $T \rightarrow \infty$ ), с - Тотална активност, d - Распад потомка; б) а – Нарастајућа активност потомка, б - Активност претка ( $T=8,0$  h), с - Тотална активност, d - Распад потомка.

### 2.1.3. Радионуклиди у терестријалном окружењу

Времена полураспада радионуклида родоначелника три радиоактивна природна низа  $^{238}\text{U}$  ( $t_{1/2}=4,5 \cdot 10^9$  god),  $^{235}\text{U}$  ( $t_{1/2}=0,70 \cdot 10^9$  god) и  $^{232}\text{Th}$  ( $t_{1/2}=1,4 \cdot 10^{10}$  god) су веома дуги и могу се упоредити са временом које је протекло од настанка Земље. Када се ради о њиховим потомцима, и они са најдужим периодима полураспада и даље имају за неколико редова величина краће време полураспада од нуклида родитеља. Према томе, посматрајући терестијално окружење, време које је

потребно да се радиоактивна равнотежа успостави је већ протекло ( $\approx 7 t_{1/2}$ , поглавље 2.1.2), па је задовољен услов да се природни радиоактивни низови налазе у секуларној равнотежи, односно активност радионуклида зачетника једнака је активности потомака у низу.

У условима секуларне равнотеже је због тога могуће одредити активност претка на основу активности неког од његових потомака. Међутим, равнотежа у сваком од низова се природно нарушава захваљујући једној заједничкој особини сва три радиоактивна низа [14]. Низови у свом ланцу садрже изотоп инертног гаса радона који има својство да еманира из компартмана животне средине (земљиште, седименти, стене, вода). У низу уранијума  $^{238}\text{U}$  присутан је нуклид  $^{222}\text{Rn}$  ( $t_{1/2} = 3,82$  d) односно радон, у низу торијума  $^{232}\text{Th}$  јавља се торон односно нуклид  $^{220}\text{Rn}$  ( $t_{1/2} = 55,6$  s), а низ уранијума  $^{235}\text{U}$  садржи актинон односно нуклид  $^{219}\text{Rn}$  ( $t_{1/2} = 3,92$  s).

Ако у било ком прецесу различитом од радиоактивног распада неки радионуклид члан радиоактивног низа напушта низ или му се придружује, у низу ће настати одступање од радиоактивне равнотеже. Као узроци радиоактивне неравнотеже геохемијског порекла сматрају се механизми: (а) растварања односно таложења нуклида, (б) дифузије нуклида, (в) узмака продукта распада изазваних  $\alpha$ -распадом и (г) повећане растворљивости продукта распада изазваних узмаком након  $\alpha$ -распада [3]. Дакле, узрок одступања од радиоактивне равнотеже налази се у различитим физичко-хемијским особинама нуклида чланова радиоактивног низа и њиховим временима полураспада.

У земљишту, у низу уранијума  $^{238}\text{U}$  главни узрок неравнотеже је дифузни карактер члана низа  $^{222}\text{Rn}$ , племенитог гаса радона. Изотоп  $^{222}\text{Rn}$  ( $t_{1/2}=3,82$  d) се генерише алфа распадом језгра  $^{226}\text{Ra}$ , при чему може да еманира из земљишних зрна у међупростор земљишних пора захваљујући  $\alpha$ -узмаку његовог језгра након распада. Из простора пора, фракција атома радона може да дифундује у атмосферу, пре него што доживи радиоактивни распад, односно да ексхалира што доводи до нарушавања секуларне равнотеже, док остатак створених атома радона остаје заробљен у земљишту где се спонтано распада. На еманаацију и ексхалаацију утичу климатски услови (притисак, влажност, температура), али значајнији утицај имају особине земљишта у површинским слојевима као што су димензије зрна, садржај влаге и порозност [15].

Пошто је радон  $^{222}\text{Rn}$  који се нашао хемијски инертан у атмосфери и не може се уклонити неким механизмом физичког или хемијског порекла, онда је концентрација радона у атмосфери највећа у слојевима најближим тлу. Атоми радонових потомака ( $^{222}\text{Rn}$ – $^{218}\text{Po}$ – $^{214}\text{Pb}$ – $^{214}\text{Bi}$ – $^{214}\text{Po}$ – $^{210}\text{Pb}$ ) настали у атмосфери радиоактивним распадом везују се за субмикронске честице аеросола и прашине у ваздуху и у процесу влажне или суве депозиције нагомилавају се назад на површинске слојеве земљишта. При томе је најзначајнија акумулација радионуклида олова  $^{210}\text{Pb}$  ( $t_{1/2} = 22,2 \text{ god}$ ) због његовог дугог времена полураспада у поређењу са животима осталих потомака. У атмосфери, највећи део  $^{210}\text{Pb}$  се везује за аеросоле димензија 0,3 до 0,5  $\mu\text{m}$ , а процењено је да средња концентрација активности  $^{210}\text{Pb}$  у свету износи  $500 \mu\text{B m}^{-3}$  [16]. Као резултат, површински слојеви земљишта садрже веће концентрације  $^{210}\text{Pb}$  од оне које би постојала да се равнотежа са претком  $^{226}\text{Ra}$  одржала. Због тога се део активности  $^{210}\text{Pb}$  у равнотежи са  $^{226}\text{Ra}$  назива „подржана“ фракција изотопа олова („supported  $^{210}\text{Pb}$ “), а простали део који није у равнотежи је тзв. неподржана фракција („unsupported“ или „excess“  $^{210}\text{Pb}$ ). Управо ова компонента која потиче из атмосфере и доспева на тло као „fallout“ корисити се као трасер процеса и промена у земљишту и седиментима [17].

Остали узроци неравнотеже у низу могу бити повезани са физичко–хемијским ососбинама радионуклида. Као чланови групе актинида, уранијум и торијум се у земљишту појављују као четворовалентни јони радијуса поредивих димензија и понашају се слично у редукционим условима [18]. Међутим, у оксидационим условима уранијум је најчешће шестовалентни (уранил) јон чиме се његова мобилност у односу на торијум повећава што може бити узрок раздвајања низова  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  који се обично заједно појављују у природи. Радијум се у природи појављује само као двовалентни јон и понаша се слично осталим члановима групе алкалних метала, раствара се и испира из земљишних минерала што утиче на његову већу покретљивост у односу на уранијум, а тиме и на нарушавање равнотеже у  $^{238}\text{U}$  [18]. После одређеног времена (краћег од трајања геохемијских процеса), а зависно од времена полураспада радионуклида, низови се могу поново вратити у стање равнотеже захваљујући распаду потомка који се налази у вишку или порастом активности потомка распадом претка након довољно дугог времена [14–16].

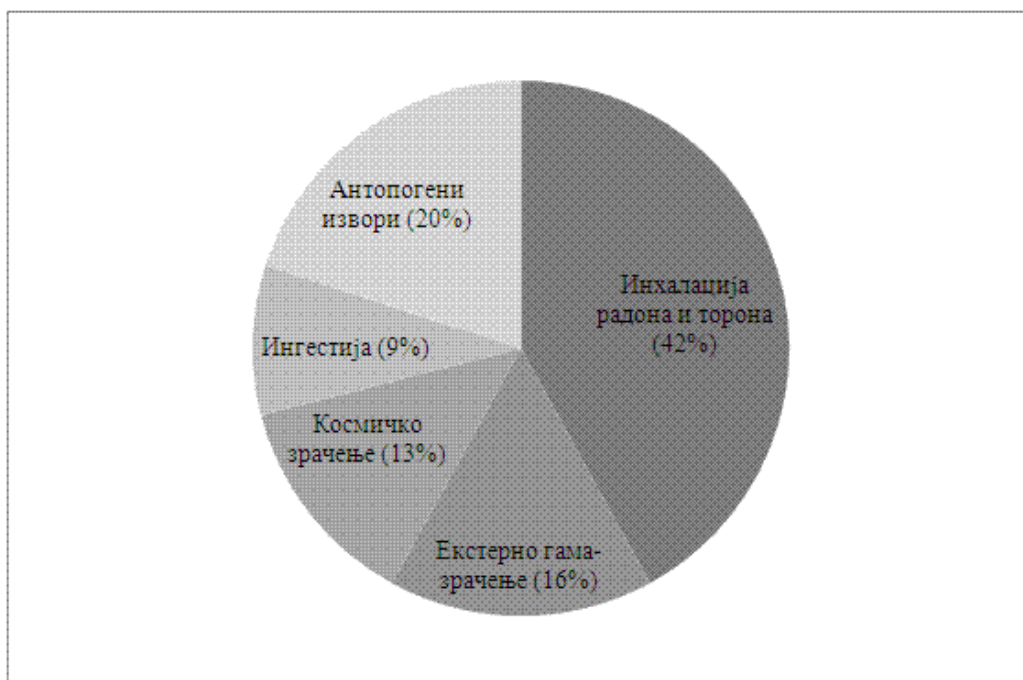
У оквиру серије  $^{232}\text{Th}$  одступање од секуларне равнотеже се не очекује јер се овај низ састоји од потомака који се не могу значајно сепаратисати од родитеља због свог веома кратког времена полураспада (Слика 1). Из овог разлога повратак у стање секуларне равнотеже у торијумовом низу одвија се врло брзо, чак и онда када је дошло до хемијске сепарације неког од елемената у низу. Слично се очекује и између родитеља уранијума  $^{238}\text{U}$  и његових потомака  $^{234}\text{Th}$  и  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ , с обзиром на кратко време полураспада потомака (Слика 1) и супротно томе, одступање од равнотеже може очекивати између  $^{238}\text{U}$  и дугоживећих потомака  $^{234}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$  и  $^{226}\text{Ra}$  (реда  $\sim 10^6$  година) у оквиру уранијум–радијумске серије. Дакле, у случају успостављене равнотеже однос активности у оквиру једног низа  $^{238}\text{U}$  или  $^{232}\text{Th}$  у природи био би једнак вредности 1. Природни однос активности између чланова два различита низа, као на пример  $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$  или  $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ , у већини узорака из животне средине сматра се да износи 1,1 [19]. Овде треба поменути и да се природно порекло уранијума може утврдити поредећи активности родоначелника уранијум–актинијумског и уранијум–радијумског низа. Пет од укупно десет изотопа уранијума, од којих су сви нестабилни, има време полураспада веће од  $10^5$  година, при чему се природни уранијум састоји доминантно од три изотопа  $^{238}\text{U}$  (99,274%),  $^{235}\text{U}$  (0,720%) и  $^{234}\text{U}$  (0,0055%). На основу изотопског састава и познатих времена полураспада  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  одређује се вредност односа активности  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  која у природном уранијуму приближно износи 0,046 [15].

#### 2.1.4. Излагање јонизујућем зрачењу

Честично зрачење које производе  $\alpha$ - и  $\beta$ -честице и електомагнетно зрачење као што је  $\gamma$ - и X-зрачење које има довољно енергије да при пролазу кроз материју доведе до јонизације атома и молекула средине, заједничким именом се назива јонизујуће зрачење. Када се ради о изворима јонизујућег зрачења којима је изложено становништво треба у обзир узети природне и изворе антропогеног порекла. Према начину излагања, извори могу бити класификовани у категорију спољашњег озрачивања када се налазе изван организма и категорију унутршњег озрачивања када доспевају у организам инхалацијом и ингестијом. Спољашњем озрачивању доминантно доприноси  $\gamma$ -зрачење из природних и вештачких извора јер је продорност честичног зрачења занемарљива. Код унутрашњег озрачивања

значајнија од ингестије је инхалација чији извор доминантно потиче од радона и његових потомака [16].

Процењује се да заступљеност појединих извора јонизујућег зрачења у укупном излагању становништва износи [16]: 80% из природних извора зрачења од чега се 42% односи на инхалацију радона и торона, 16% на излагање екстерном  $\gamma$ -зрачењу, 13% космичком зрачењу и 9% на ингестију радионуклида. Остатак од 20% чини зрачење из антропогених извора. Процентуални допринос појединих извора приказан је на Слици 3.



Слика 3. Заступљеност појединих извора у укупном излагању становништва јонизујућем зрачењу [16].

Да би се у области заштите од јонизујућих зрачења проценио радијациони ризик који настаје као последица излагања човека јонизујућем зрачењу на отвореном простору у терестријалном окружењу, величина коју је потребно одредити је јачина апсорбоване дозе. Јачина апсорбоване дозе у ваздуху одређује се на висини 1 m изнад тла и може се проценити на основу израза (11):

$$D(nGy h^{-1}) = 0,462C_U + 0,604C_{Th} + 0,0417C_K \quad (11)$$

где су  $C_U$ ,  $C_{Th}$  и  $C_K$  концентрације активности ( $Bq \cdot kg^{-1}$ ) природних радионуклида у површинском слоју земљишта. Конверзиони фактори ( $nGy \cdot h^{-1}/Bq \cdot kg^{-1}$ ) којима се преводи концентрација активности у јачину апсорбоване дозе износе: 0,462 за  $^{238}U$  ( $^{226}Ra$ ), 0,604 за  $^{232}Th$  и 0,0417 за  $^{40}K$ , сматрајући њихов допринос овој дози

доминантним [16]. Узимајући у обзир степен заступљености  $^{137}\text{Cs}$  у тлу у садашњем тренутку, препоручује се да и члан  $0,1243\text{Cs}$  буде додат претходној једначини [16].

Да би се проценила индивидуална ефективна доза на годишњем нивоу, која се не може директно измерити, користи се израз (12):

$$E(\text{mSv } \textit{god}^{-1}) = D(\text{nGy } \textit{h}^{-1}) \cdot 8760 (\textit{h } \textit{god}^{-1}) \cdot 0,2 \cdot 0,7(\text{Sv Gy}^{-1}) \quad (12)$$

у коме фигуришу конверзиони коефицијент којим се спољашња апсорбована доза преводи у ефективну дозу и чија вредност износи  $0,7 \text{ Sv/Gy}$  и фактор изложености за спољашње озрачивање чија је вредност  $0,2$ . Процењује се да ефективна доза на годишњем нивоу износи  $2,4 \text{ mSv } \textit{y}^{-1}$  из природних извора, а  $0,6 \text{ mSv } \textit{y}^{-1}$  из антропогених извора зрачења [16].

## 2.2. Спектрометрија гама–зрачења

### 2.2.1. Интеракција гама–зрачења са материјом

Језгра нуклида се могу наћи у ексцитраном (побуђеном) стању, при чему насељавање њихових виших енергетских нивоа настаје као резултат нуклеарних реакција и радиоактивних распада. У моменту деексцитације, из језгра се емитују фотони  $\gamma$ –зрачења енергија реда неколико десетина keV до неколико MeV или се енергија ексцитације предаје орбиталном електрону из омотача атома у процесу интерне конверзије. Емисија  $\gamma$ –кванта настаје када језгро прелази из побуђеног у основно или неко стање са нижом енергијом од полазног. Према томе, језгра се могу идентификовати на основу карактеристичног спектра емитованих фотона  $\gamma$ –зрака. Језгра обично имају пуно ексцитираних стања, а свако нуклеарно стање има одређену енергију, време полураспада, спин и парност. Емитоване  $\gamma$ –зраке карактерише енергија, вероватноћа прелаза и мултиполарност. Сваки  $\gamma$ –прелаз зависи од типа и мултиполарности прелаза (E1, E2, E3,... M1, M2, M3...) при чему мања мултиполарност доводи до веће вероватноће прелаза, а закони конзервације ангуларног момента и парности стања одређују које су мултиполарности дозвољене при прелазу. Вероватноћа емисије  $\gamma$ –кванта обрнуто је пропорционална периоду полураспада побуђеног стања са којег се емисија врши. Време трајања живота језгра у ексцитираном стању зависи од мултиполарности и енергије  $\gamma$ –



прелаза којим се врши деексцитација. Трајање живота побуђеног стања најчешће износи од  $10^{-9}$  s до  $10^{-15}$  s, а у неким случајевима и до неколико дана [20].

При пролазу кроз материју алфа и бета честице, гама–зрачење и X–зрачење имају довољно енергије да доведу до јонизације атома и молекула, а електрони избачени примарном јонизацијом добијају довољно кинетичке енергије да су и сами у стању да јонизују и тако стварају секундарну јонизацију. Ако алфа–честица, бета–честица и гама–зрак имају исту енергију, од на пример неколико MeV, произвешће исти број јонских парова под условом да се сва њихова енергија апсорбује у материјалу. Међутим, због разлике јонизујућих честица у масама и наелектрисању, специфична јонизација дуж трага честица ће се разликовати. Средња специфична јонизација коју посредно производе гама зраци је око 10 до 100 пута мања од оне коју производе електрони исте енергије. За разлику од алфа и бета зрачења, дOMET гама–зрака се не може одредити због њихове подложности закону атенуације при проласку кроз материјалну средину [20].

Пролаз моноенергетског снопа фотона гама–зрачења кроз материјалну средину карактерише експоненцијални закон атенуације:

$$n = n_0 e^{-\mu x} \quad (13)$$

при чему је  $n_0$  број упадних честица у јединици времена који пада нормално на површину материјала апсорбера дебљине  $x$ , затим  $n$  број трансмитованих честица у јединици времена, а  $\mu$  линеарни коефицијент атенуације. Линеарни коефицијент атенуације сразмеран је тоталном ефикасном пресеку ( $\sigma$ ) односно вероватноћи да упадна честица интерагује са материјалом, а обрнуто сразмеран средњем слободном путу честице ( $\mu_l = N \cdot \sigma = 1/\lambda$ ). С обзиром на то да линеарни атенуациони коефицијент  $\mu$  зависи од енергије гама зрачења, атомског броја ( $Z$ ) и густине материјала ( $\rho$ ), радије се користи масени атенуациони коефицијент  $\mu$  ( $\mu/\rho$ ) који не зависи од густине и који се може повезати са пресеком за интеракцију једначином:

$$\mu = \frac{N\sigma}{A} \quad (14)$$

где је  $A$ –масени број материјала, а  $N$ –број атома материјала по јединици запремине. При проласку кроз материјал фотони  $\gamma$ –зрачења интерагују путем три доминантна процеса: фотоелектричног ефекта, Комптоновог ефекта и ефекта стварања пара,

због чега ће укупни атенуациони коефицијент бити једнак збиру парцијалних коефицијената за сваки од процеса ( $\mu_l = \mu_\tau + \mu_\sigma + \mu_k$ ) [20].

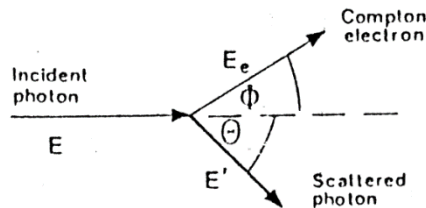
*Фотоелектрични ефекат* је процес у коме фотон интерагује са везаним електроном, при чему целокупна енергија фотона бива апсорбована, а електрон напушта атом. Енергија фотона ( $E_\gamma$ ) се делом троши на ослобађање електрона ( $B_e$ ), док остатак деле атом апсорбера ( $E_R$ ) и избачени фотоелектрон ( $E_e$ ). Према закону конзервације импулса следи да се енергија узмака атома ( $E_R$ ) може занемарити, па је енергија електрона коначно једнака:

$$E_e = E_\gamma - B_e \quad (15)$$

где је  $B_e$  – енергија везе електрона која зависи од орбите из које је избачен. Услед фотоэффекта број електрона у атому се смањује што има за последицу регруписавање електрона у омотачу које је праћено емисијом карактеристичних X–зрака или емисијом Ожеових електрона.

Када се енергија упадног фотона предаје детекторском материјалу, у случају да су енергије фотоелектрона и X–зрака или Ожеових електрона потпуно апсорбоване у детектору, онда ће произведена амплитуда сигнала на излазу бити пропорционална енергији упадног фотона, а као одговор детектора у спектру ће се јавити тзв. пик тоталне апсорпције („full energy peak“).

*Комптоново расејање* је последица интеракције упадног фотона и слабо везаног електрона при чему се електрону предаје само део енергије фотона. У овом процесу енергија везе електрона се занемарује у односу на енергију фотона ( $E_\gamma \ll B_e$ ), па се процес може сматрати расејањем фотона на слободном електрону.



Слика 4. Комптоново расејање [20].

Из закона конзервације енергије и импулса, може се одредити енергија комптоновски расејаног фотона ( $E'$ ):

$$E' = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} (1 - \cos\theta)} \quad (16)$$

где је  $E_\gamma$  енергија упадног фотона и  $\theta$  угао који заклапају правци упадног и расејаног фотона. Електрон добија највише енергије када се креће у упадном правцу фотона, а фотон враћа уназад ( $\varphi \cong 0^\circ$ ,  $\theta \cong 180^\circ$ ), а најмање када фотон не мења правац ( $\varphi = 90^\circ$ ,  $\theta = 0^\circ$ ). У осталим случајевима постоји континуални низ вредности за  $\theta$  и  $\varphi$  због чега се енергија Комптонових електрона мења континуално и при чему се може дефинисати тзв. Комптонова ивица (уз услов  $\theta = 180^\circ$ ) која представља максимум енергије коју фотон енергије  $E_\gamma$  може да преда расејаном електрону:

$$E^{max} = \frac{E_\gamma}{1 + 2 \frac{E_\gamma}{m_0 c^2}} \quad (17)$$

*Продукција пара* је процес у коме се целокупна енергија фотона утроши на стварање пара честица електрон–позитрон и њихову кинетичку енергију. Електрон–позитрон пар може настати уколико је задовољен услов да је енергија упадног фотона  $E_\gamma$  већа од двоструке енергије мировања електрона ( $2m_0c^2 = 1,022$  MeV), али овај ефекат се може догодити само у Кулоновом пољу језгра или електрона јер закони одржања не допуштају креирање пара без присуства неке треће наелектрисане честице која ће учествовати у деоби импулса и енергије. Као пратећи процес јавља се анихилација која настаје када се позитрон који је изгубио сву своју кинетичку енергију, у близини неког електрона анихилира, при чему се стварају два фотона енергије 511 keV, која се међусобно крећу под углом од  $180^\circ$  (закон одржања импулса).

Вероватноћа за појаву једног од три доминантна ефекта може се мерити ефикасним пресеком који првенствено зависи од енергије упадних  $\gamma$ -зрака. Може се проценити да је ефикасни пресек за фотоэффект сразмеран редном броју атома апсорбера  $Z$  и упадне енергије  $E_\gamma$  на следећи начин:

$$\sigma \sim Z^5 / E_\gamma^{3.5} \quad \text{на енергијама } E_\gamma < m_0 c^2 \quad (18)$$

$$\sigma \sim Z^5 / E_\gamma \quad \text{на енергијама } E_\gamma > m_0 c^2 \quad (19)$$

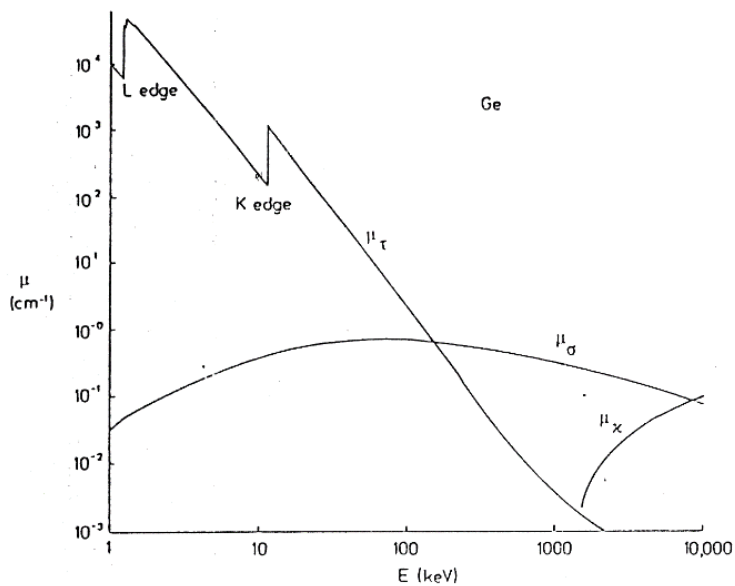
одакле се може закључити да фотоэффект доминира на ниским енергијама нарочито ако је редни број висок, а постаје занемарљив на високим енергијама. Ефикасни пресек за Комптонов ефекат може се приближно изразити као:

$$\sigma \sim Z / E_\gamma \quad (20)$$

што указује да вероватноћа не расте критично са  $Z$  и спорије опада са енергијом  $E_\gamma$  него код фотоэффекта, при чему Комптоново расејање доминира на средњим енергијама нарочито за ниске редне бројеве. Клајн–Нишина формула [20] која повезује пресек за Комптоново расејање са углом скретања фотона дате енергије показује да ће са порастом енергије фотон губити све мање енергије у расејању, а угао расејања ће се истовремено смањивати. Вероватноћа за стварање пара приближно је сразмерна квадрату редног броја атома апсорбера:

$$\sigma \sim Z^2 \quad (21)$$

при чему продукција пара почиње да доминира тоталним пресеком на високим енергијама и при високим редним бројевима, а за мање вредности редног броја  $Z$  ефекат доминира на енергијама реда десетине MeV. Са порастом енергије фотона повећава се простор око језгра у коме може доћи до стварања пара, што значи да се пресек расте и са енергијом [20, 21].



Слика 5. Зависност линерног коефицијента атенуације од енергије упадног зрачења за германијум [20].

Коефицијент атенуације  $\mu$  је сразмеран ефикасном пресеку који је са своје стране пропорционалан редном броју атома,  $Z$ . Дакле, елементи већег атомског броја обезбеђују интензивнију апсорпцију  $\gamma$ -зрачења, због чега се материјали са овом одликом (силицијум, германијум) користе за израду детекторског кристала. Зависност линерног коефицијента атенуације од енергије упадног зрачења за

германијумски кристал приказана је на Слици 5. За германијум, пресек за Комптонов ефекат (сразмеран  $\sim \mu_c$ ) упоредив је са пресеком за фотоелектричну апсорпцију ( $\sim \mu_\tau$ ) на нижим енергијама и брзо доминира тоталним пресеком на вишим енергијама, а пресек за стварање пара ( $\sim \mu_k$ ) доминира тоталним пресеком на енергијама изнад 10 MeV [20, 21].

### 2.2.2. Интеракција гама–зрачења са детектором

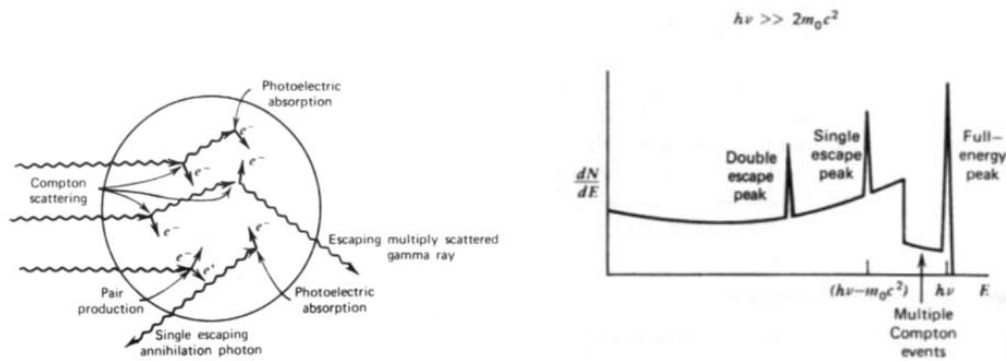
Детекција јонизујућег зрачења настаје као последица јонизације или екситације атома који чине ефикасну запремину детектора. Ефикасна запремина је материјални простор у детектору који може да пружи индикацију о проласку јонизујућег зрачења која се односи на физичке промене (топлота, електрицитет, густина, боја трага), а може се односити и на промене хемијског и биолошког порекла. У случају детекције  $\gamma$ –зрачења, интеракција фотона  $\gamma$ –зрака са детекторским материјалом одвија се доминантно путем фотоефекта, Комптоновог ефекта или ефекта стварања пара при чему се упадна енергија фотона конвертује у кинетичку енергију фотоелектрона, Комптоновог електрона и електрона (из створеног пара) који имају довољно енергије да и сами јонизују средину производећи јонске парове. Створени носиоци наелектрисања се сакупљају под дејством спољашњег електричног поља, па се на излазу детектора ствара импулс чија је амплитуда пропорционална упадној енергији фотона  $\gamma$ –зрака. Спектрална функција детектора је, према томе, спектар амплитуда добијен као одговор детектора на пролаз  $\gamma$ –зрачења одређене енергије. Одговор детектора представља однос између висина импулса излазног сигнала и упадне енергије  $\gamma$ –зрака. Спектрална функција зависи од биланса енергије за сваки појединачни акт интеракције  $\gamma$ –зрака са детекторским материјалом. Уколико је укупно секундарно зрачење које је произвео упадни фотон депоновано у ефикасној запремини, спектрална функција детектора биће представљена врхом тоталне апсорпције.

Фотоелектрична апсорпција у детектору израђеног од германијумског кристала допринеће пику тоталне апсорпције ако су X–зраци, који потичу од преуређивања атомског омотача германијума после емисије фотоелектрона апсорбовани у кристалу. Уколико напусте кристал, доприносе тзв. пику „побеглих“ X–зрака („X–ray escape peak“) који се јавља испод пика тоталне апсорпције. Ако се

енергија фотоелектрона изгуби ван осетљиве запремине кристала (закочно зрачење, побегли фотоелектрони), догађаји дају допринос континуалном делу спектра.

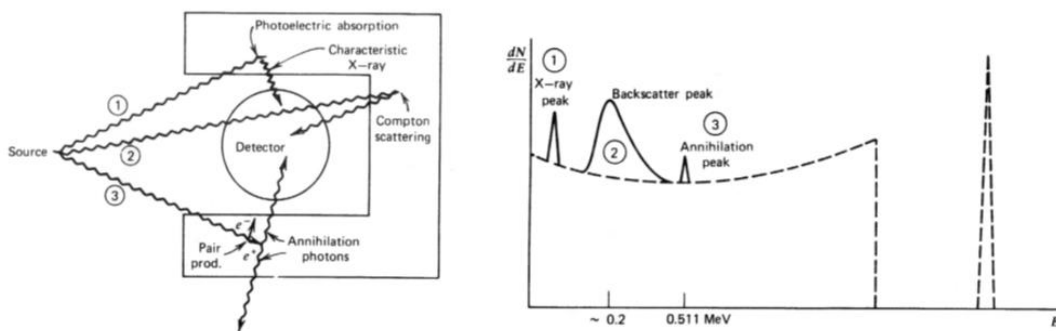
Комптонов ефекат је најчешћи процес у опсегу енергија од 150 keV до 9 MeV за Ge, док фотоелефекат доминира на нижим енергијама. Упадни фотони  $\gamma$ -зрака могу претрпети у детекторској средини вишеструка Комптонова расејања све док им се енергија не спусти довољно ниско да би се догодио фотоелефекат, па ови догађаји доприносе пику тоталне апсорпције јер је целокупна енергија депонована у детекторском материјалу. Спектрална функција се онда састоји од континуалне Комптонове расподеле која се завршава Комптоновом ивицом на максималној енергији  $E^{\max}$  и фотопика на енергији  $E_{\gamma}=h\nu$ . Ако упадни фотон интерагује узастопним Комптоновим ефектима тако да расејани фотон напусти кристал импулс ће се појавити у континууму између  $E^{\max}$  и  $E_{\gamma}$ , односно Комптонове ивице и врха тоталне апсорпције (Слика 6).

Производња пара постаје значајна на енергијама преко 1,5 MeV мада је могућа почев од 1,022 MeV. Након продукције пара, у детектору се преостала енергија  $E_{\gamma}-1,022$  MeV расподељује на кинетичку енергију електрона и позитрона, па се као резултат формира континуални спектар. Када се успорени позитрон анихилира даје два фотона енергије по 0,511 MeV који ако се депонују у ефикасној запремини доприносе пику тоталне апсорпције. Међутим, ако се догоди апсорпција једног анихилационог фотона, док други „побегне“ из детектора у спектру се јавља врх на енергији  $E_{\gamma}-m_0c^2$  (“single-escape peak”), а уколико оба анихилациона фотона напусте кристал врх се јавља на енергији  $E_{\gamma}-2m_0c^2$  (“double escape peak”). На Слици 7. су приказане могуће интеракције у реалном детектору просечних димензија и одговарајући спектар односно одзив детектора. Поред фотопика и Комптонове области у спектру се појављује и област вишеструких Комптонових догађаја смештена између Комптонове ивице и фотопика.



Слика 6. Интеракције у детектору просечних димензија и резултујући спектар [21].

Фотони емитовани из извора могу да интерагују и са материјалом који окружује кристал (заштита детектора, криостат, детекторска капа), а затим резултујући секундарни фотони могу да допру до кристала и интерагују, па ће бити придодати спектру (Слика 7). На пример, карактеристично X–зрачење које настаје као последица фотоелектричног ефекта може се наћи у спектру, а да потиче од K или L X–зрака оловне заштите, златног контактеног слоја кристала, челичног постоља извора. Комптоновски расејани фотони из околног материјала имају континулану расподелу у зависности од угла скретања, при чему фотони скренути на околном материјалу “уназад” обично доминирају и стварају врх повратног расејања (“back scattering peak”) на ниским енергијама ( $\leq 0,25$  MeV). Такође, анихилациони фотони који прате стварање пара које се догодило у интеракцији са околним материјалом доприносе пику на 0,511 MeV у спектру извора (Слика 7).



Слика 7. Интеракције фотона са материјалом који окружује детекторски кристал [21].

### 2.2.3. Полупроводнички детектори гама зрачења

Сваки детектор карактерише густина, запремина и атомски број материјала од кога је израђен. Ове величине су повезане са вероватноћом за интеракцију  $\gamma$ -зрачења са детекторским материјалом и вероватноћом да целокупна енергија фотона буде депонована у детекторској запремини. Код детектора израђеног од полупроводничког материјала за стварање пара електрон–шупљина потребно је  $\sim 3$  eV, па је за дато упадно зрачење број створених носилаца наелектрисања много већи него код било ког другог детектора што резултира њиховом високом енергетском резолуцијом.

Код полупроводничких материјала, кристална решетка се састоји се од валентне и проводне зоне које су одвојене енергијским процепом односно забрањеном зоном (ширине  $\sim 1$  eV за Ge материјал). Валентни ниво је попуњен електронима, а насељеност проводног нивоа је мала под нормалним условима. Ако се електрони побуђују термално, онда имају довољно енергије да савладају процеп и да прелазе из валентног у проводни ниво, остављајући за собом позитивна наелектрисања односно шупљине. При интеракцији полупроводника и фотона  $\gamma$ -зрака, доступна енергија је много већа од јонизационе, па се електрони пребацују из дубине попуњених нивоа, преко валентног на много више нивое у проводној области. Коначно, распоред шупљина и побуђених електрона је такав да шупљине попуњавају врх валентног нивоа, а електрони дно проводног нивоа. Тако се јавља велики број носилаца наелектрисања који када се крећу под дејством спољашњег електричног поља стварају електрични импулс чији је интензитет пропорционалан упадној енергији фотона [20, 21].

Проводне особине чистог полупроводника се могу изменити допирањем тј. увођењем примесних атома у кристалну решетку који могу да утичу на ширину забрањене зоне. Те тзв. нечистоће могу да буду донорског (слободни електрони) и акцепторског (слободне шупљине) типа, при чему се формирају полупроводници  $n$ - и  $p$ -типа, респективно и чиме се у оба случаја енергијски процеп сужава. Ако се такви полупроводници  $n$ - и  $p$ -типа споје, долази до рекомбинације (шупљине дифудују у  $n$  страну, а електрони у  $p$  страну), формира се  $p$  и  $n$  спој који при томе уопште не садржи носиоце наелектрисања и на месту додира споја ствара се испражњени слој („depletion region“) који служи за детекцију зрачења. Добијена



расподела наелектрисања ствара природну разлику потенцијала дуж споја, тзв. контактни напон, који је реда величине енергетског процепа ( $\sim 1$  eV за Ge) и таквог смера да се супротставља даљој дифузији носилаца наелектрисања.

При проласку фотона  $\gamma$ -зрака кроз ову област, стварају се електрон-шупљински парови који веома брзо бивају избачени под дејством постојећег електричног поља. Њихово кретање ствара основни електрични сигнал који је веома слаб због чега се примењује спољашњи напон тако да дебљина испражњене области расте, а самим тим и ефикасна запремина детектора. За дати спољашњи напон већа дебљина испражњене области (реда центиметра) се може постићи само ако је концентрација нечистоћа веома мала. То се може постићи применом процеса тзв. зонског рафинирања у коме се добија ултра-чисти германијум (hyper-pure Ge) са концентрацијама од једног атома примесе на  $10^{10}$  атома Ge у  $\text{cm}^3$  који затим служи за израду HPGe (High Purity Germanium) детектора.

Димензије и облик полупроводничког детектора зависе од величине доступних кристала и постигнуте дебљине беспримесне области. Конфигурација детектора може бити планарна или коаксијална и облика јаме, а  $p$  или  $n$  типа у зависности од слоја постављеног ближе оси цилиндричне геометрије. У пракси, детектори се израђују од полупроводника једног типа на који се поставља тзв.  $p^+$  или  $n^+$  контакт при чему се ствара спој. Ови  $p^+$  или  $n^+$  електрични контакти детектора су веома високо допирани полупроводници велике проводности, а добијају се у процесу напаравања ( $p^+$ ) или јонског бомбардовања ( $n^+$ ). Код германијумског детектора од довољно чистог Ge-материјала, беспримесна област може се постићи напаравањем јона Li на једну страну  $p$ -типа Ge, тако да јони кратко време дифундују на мало растојање стварајући диодску структуру. Да би се максимирала осетљива запремина детектора, на такав  $n^+-p$  спој примењује се реверзибилни напон који гура главне носиоце наелектрисања ван споја стварајући испражњени регион чије је формирање завршено онда када се електростатичко поље које стварају непокретна наелектрисања изједначи са спољашњим пољем.

При детекцији, пре него што фотон  $\gamma$ -зрака доспе до осетљиве запремине детектора, може доћи до губитка његове упадне енергије услед апсорпције у улазном прозору детектора или мртвом слоју ("*dead layer*") који настаје у процесу формирања  $p^+$  и  $n^+$  контаката. Током производње  $n^+$  контакта (нпр. дифундовањем

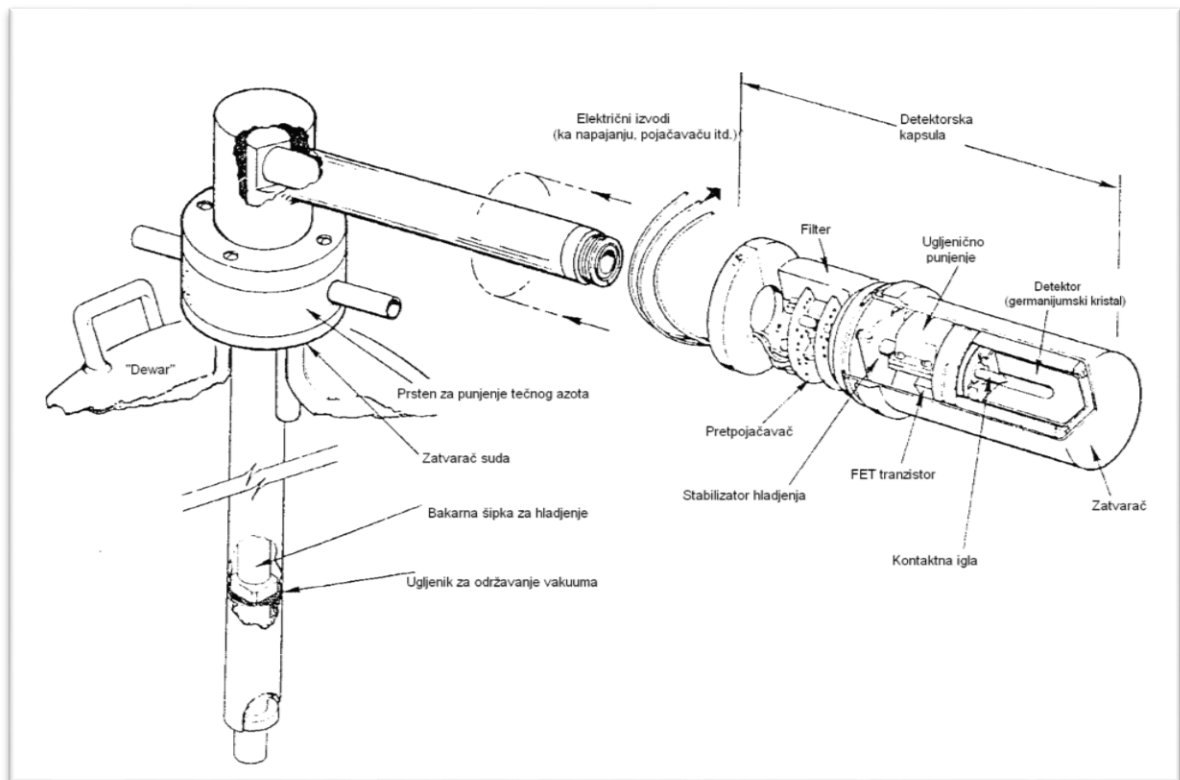
Li-јона) ствара се мртав слој дебљине  $\sim 600 \mu\text{m}$ , а у процесу производње  $p^+$  контакта (нпр. јонском имплантацијом јона бора) дебљина слоја је  $\sim 0,3 \mu\text{m}$ . Прозор детектора је обично слој алуминијума дебљине  $1,5 \text{ mm}$  или берилијума дебљине  $0,5 \text{ mm}$ . Према томе, за детекцију фотона енергија нижих од  $40 \text{ keV}$  нису погодни Ge детектори  $p$  типа са Al прозором већ детектори са Be прозором и  $p^+$  контактом страни кристала на коју зраци упадају [20, 21].

#### 2.2.4. HPGe детектори гама зрачења

Међу полупроводничким детекторима, најчешће је у употреби ултра-чисти германијумски (HPGe) детектор захваљујући својој високој резолуцији. За правилно функционисање детектора мора бити обезбеђено хлађење детектора, високи вакуум, изолација од спољашњих вибрација и улазни прозор за фотоне. На Слици 8. је приказан HPGe детектор у хоризонталној форми који је постављен на један крај бакарне шипке док се други њен део потапа у суд (“dewar”) напуњен течним азотом. Детектор се поставља у евакуисани криостат у коме се трајно подржава вакуум да би се спречила топлотна проводљивост између кристала и спољашњег ваздуха и обезбедила заштита површине кристала од нечистоћа. Детектор се одржава на ниској температури од  $77 \text{ K}$  (температура течног азота), у циљу елиминисања електронског шума и спречавања индукције површинских струја које би могле бити термално изазване. Претпојачавач се директно монтира на криостат јер је важно да буде што ближи детектору да би се хладио заједно са њим и да би се тако смањили шум и капацитивно оптерећење на улазу [20]. Испред самог детектора, на комори криостата, налази се прозор удаљен око  $5 \text{ mm}$  од детекторског кристала који служи да би се умањила атенуација  $\gamma$ -зрака на путу до детектора. При мерењу ниских енергија користи се прозор од Be који пропушта “меке” фотоне, али онда детекторски кристал постаје осетљив на механичка и хемијска оштећења.

У спектрометрији  $\gamma$ -зрачења полупроводничким детекторима, основни делови детекторског система су детектор одржаван на температури течног азота, детекторска заштита и придружени електронски систем. Задатак електронског система је да прикупи носиоце наелектрисања на излазу детектора, измери њихову количину и сачува о томе информацију. Повезани рачунар служи за контролу

мерења и чување података односно за обраду снимљених спектра и прорачун за време или после мерења. На Сlici 9. је приказан типичан електронски систем једног HPGe детектора. *Извор* високог напона детектора који служи за напајање детектора може бити до  $\pm 5000 \text{ V DC}$ , при чему се са порастом напона колекција наелектрисања побољшава. *Претпојачавач* који се налази на криостату непосредно уз детектор служи за појачавање слабих сигнала добијених из детектора, преношење и очување њихових карактеристика.

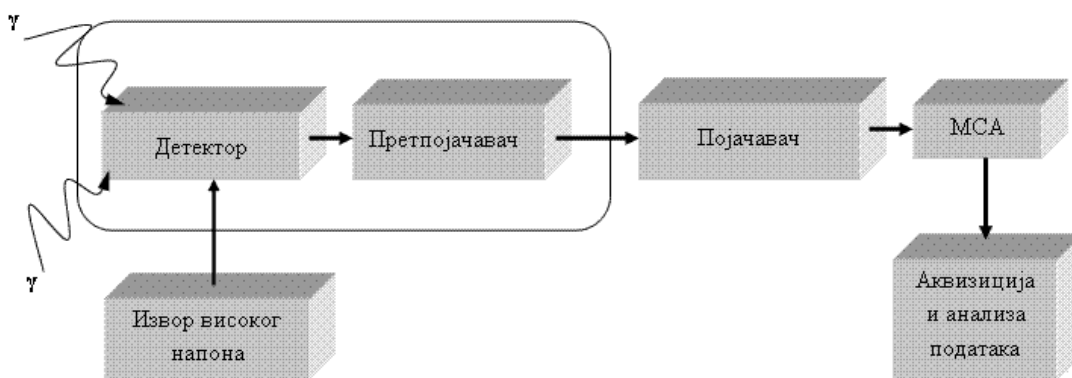


Слика 8. Германијумски детектор у хоризонталној конфигурацији [20].

*Линерани појачавач* служи за појачање електричних сигнала до нивоа потребних за даљу обраду тако да се линераност појачања одржава односно пропорционалност односа висина сигнала на улазу и излазу. Њему припада “*pile-up rejector*“, електронско коло које одбија временски блиско поређане импулсе који се гомилају у појачавачу, а настају услед тзв. случајне коинциденције (фотони који се детектују симултано не могу се раздвојити као различити догађаји у оквиру временске резолуције детектора). ADC или аналогно–дигитални конвертор служи за претварање аналогног у дигитални сигнал, односно мери дистрибуцију висина

импулса на излазу појачавача и претвара је у дигитални број, што је главни задатак у спектрометрији  $\gamma$ -зрачења. Вишеканални анализатор МСА (Multi Channel Analyser) служи да улазне импулсе пристигле из ADC конвертора, односно дигиталне бројеве пропорционалне амплитуди импулса, одбројава и меморише у одговарајућем каналима МСА. За германијумске системе оптималан број МСА канала је 8192. Информација о висини импулса из ADC треба да буде сачувана тако да на дисплеју буде приказан укупан број импулса опсервираних по сваком каналу [20, 21].

*Временска резолуција* детектора дефинише се као време које је потребно да се након сакупљања носилаца наелектрисања насталих у интеракцијама са упадним зрачењем генерише напонски сигнал. У току овог времена детектор није осетљив на ново упадно зрачење. Потребан је коначан временски интервал да би детектор обрадио пристигле сигнале који је обично једнак времену трајања напонског сигнала, а назива се *мртво време* јер ограничава могућност детектора да региструје стваран број упадних фотона. За Ge детекторе свака информација о фотону који упадне у детектор у току мртвог времена је изгубљена. Мртво време може се одредити као разлика између реалног времена и живог времена мерења.



Слика 9. Шема електронског система HPGe детектора.

*Енергетска резолуција*  $w_t$  је карактеристика полупроводничког детектора која је представљена ширином линије на половини максимума FWHM (Full Width at Half Maximum). Резолуција је величина којом се одређује колико близу у спектру се могу налазити две линије блиских енергија, а да их спектрометар може разликовати. Уколико је њихова енергетска разлика унутар вредности FWHM линије се не могу раздвојити. Енергетска резолуција зависи од енергије депоноване

у ефикасној запремини детектора и како енергија расте тако и број произведених јонизација расте, а релативне флукуације се смањују. Код полупроводничких детектора ширење пика зависи од фактора статистичког ширења у броју носилаца наелектрисања  $w_d$ , варијација у ефикасности сакупљања наелектрисања  $w_x$  и електронског шума  $w_e$ . Пошто сваки од наведених фактора има Гаусову расподелу, тотална ширина пика је збир квадрата појединачних ширина:  $w_t^2 = w_d^2 + w_x^2 + w_e^2$  [20, 21].

*Однос пика и Комптонове ивице* полупроводничког детектора дефинише се за извор  $^{60}\text{Co}$  као однос максималне амплитуде сигнала у пику тоталне апсорпције на 1332 keV и средње амплитуде сигнала у области Комптоновог расејања између 1040 и 1096 keV (област Комптоновог континуума). Овај однос расте са побољшањем резолуције и са порастом димензија детекторског кристала при чему се већи број Комптоновски расејаних фотона апсорбује и доприноси пику тоталне апсорпције.

*Заштита детектора* одређене дебљине израђена од материјала великог атомског броја којим се постиже битна атенуација спољашњег  $\gamma$ -зрачења служи да редукује утицај позадинског зрачења (фона) на детектор. Природни фон у околини детектора потиче од: а) природних радионуклида конституената конструкционог материјала лабораторије (грађевински материјал, земљиште), б) радиоактивности атмосфере у окружењу детектора (радон, торон, њихови потомци, вештачки произведени фисиони продукти), ц) природних радионуклида конституената материјала од кога израђен детектор, његова пратећа опрема, укључујући и детекторску заштиту, д) примарних и секундарних компоненти космичког зрачења. Током мерења нативних узорака, најчешће ниских нивоа активности, коришћењем HPGe детектора потребно је раздвојити позадинско зрачење од оног које потиче од мереног узорка. Заштитни материјал који опкољава активну запремину детектора обично се израђује од олова, материјала велике густине и атомског броја који се прекрива танким слојем кадмијума који апсорбује X-зраке настале у интеракцијама позадинског  $\gamma$ -зрачења са оловним материјалом заштите, а затим слојем бакра који апсорбује X-зраке кадмијума. Облагањем танким слојевима се такође умањује „backscattering“ ефекат [20, 21].

## 2.3. Калибрација детектора и одређивање активности

### 2.3.1. Енергетска калибрација

Током детекције полупроводничким детекторима, фотони емитовани из извора интерагују са детекторским кристалом и уколико бивају потпуно апсорбовани производе импулсе чија је амплитуда пропорционална њиховој упадној енергији. У спектру амплитуда импулса, позиција амплитудског врха је мера енергије фотона, а површина испод врха мера брзине емитовања фотона. Ако је систем калибрисан на енергију, онда се ове информације могу користити за идентификацију присуства радионуклида у извору и одређивање њихове активности односно концентрације.

Да би се спектар амплитуда импулса могао користити потребно је сваком каналу вишеканалног анализатора придружити одређену енергију односно одредити калибрациону криву која представља функцију енергије од броја канала у спектру. За калибрацију детектора у енергетском опсегу фотона од 60 keV до 3 MeV најчешће се користе примарни тачкасти извори као што су  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{22}\text{Na}$  и  $^{88}\text{Y}$  (Табела 1), тако што се каналима на којима се налазе центроиде врха тоталне апсорпције карактеристичних линија гама-зрака придружују одговарајуће енергије. Да би се одредила калибрациона крива гама спектрометра узима се да је енергија ( $E$ ) квадратана функција канала ( $x$ ):

$$E(x) = a_1 + a_2 \cdot x + a_3 \cdot x^2 \quad (22)$$

где су  $a_i$  коефицијенти одређени применом методе најмањих квадрата. За калибрацију је такође погодан и радионуклид  $^{152}\text{Eu}$  (13,5 год) који у интервалу енергије од 50 keV до 1500 keV има велики број линија, а у интервалу изнад 1500 keV до 3500 keV могу се користити  $^{226}\text{Ra}$  (1600 год) и  $^{56}\text{Co}$  (77,27 d) [20].

### 2.3.2. Калибрација ефикасности

Калибрацију ефикасности детекције потребно је извршити због комплексног начина интеракције гама зрачења са детекторским материјалом који је најчешће германијумски. Из историјских разлога обично се релативна ефикасност наводи као карактеристика детектора која представља однос ефикасности детекције линије

Табела 1. Примарни и секундарни радионуклиди за калибрацију енергије

Радионуклид	Време полураспада	Енергија (keV)	Вероватноћа прелаза (%)
<sup>241</sup> Am	432,2 god	59,541	35,90
<sup>210</sup> Pb	22,3 god	46,539	99,98
<sup>109</sup> Cd	462,6 god	88,04	3,61
<sup>57</sup> Co	271,79 d	122,064	85,60
		136,474	10,68
<sup>139</sup> Ce	137,64 d	165,864	80
<sup>203</sup> Hg	46,612 d	279,197	81
<sup>113</sup> Sn	115,09 d	391,69	64
<sup>85</sup> Sr	64,84 d	514,00	96
<sup>134</sup> Cs	2,065 god	604,72	97,62
		795,86	85,53
<sup>137</sup> Cs	30,07 god	661,657	85,1
<sup>54</sup> Mn	312,3 d	834,848	99,98
<sup>60</sup> Co	5,271 god	1173,237	99,974
		1332,501	99,986
<sup>22</sup> Na	2,60 god	1274,53	99,94
<sup>88</sup> Y	106,65 d	898,042	93,7
		1836,063	99,2

1332 keV тачкастог извора <sup>60</sup>Co датог детектора и сцинтилационог детектора са Na(J)Tl кристалом димензија 7,62 cm × 7,62 cm. Међутим, неопходно је познавати апсолутну ефикасност детектора која је функција енергије упадног зрачења и на основу које се могу извршити корекције броја импулса у секунди регистрованих на излазу детектора. Апсолутна ефикасност детекције дате енергије фотона дефинише се као однос броја регистрованих фотона у пику тоталне апсорпције и укупног броја фотона дате енергије које емитује извор. Она зависи од више параметара: *а)* енергије упадног гама зрачења, *б)* димензија и конструкције детектора, *ц)*

геометрије мерења односно просторног односа извор–детектор,  $\delta$ ) физичко–хемијских особина узорака (матрикс, густина, агрегатно стање).

При детекцији гама зрачења, само део зрачења успева да напусти извор и доспе до детекторске запремине, а само део тог зрачења које је захваћено детектором генерише сигнал на излазу детектора. Зато се ефикасност германијумског детектора може представити као производ сопствене (“intrinsic”) ефикасности,  $\varepsilon_{int}$ , геометријске ефикасности,  $\varepsilon_{geom}$  и ефикасности која се односи на узорак,  $\varepsilon_{uzor}$  [22]:

$$\varepsilon = \varepsilon_{int} \cdot \varepsilon_{geom} \cdot \varepsilon_{uzor} \quad (23)$$

Сопствена ефикасност представља вероватноћу да фотон гама зрачења енергије  $E_\gamma$  који упада у детектор интерагује у ефикасној запремини детекторског материјала тако да генерише сигнал који доприноси врху тоталне апсорпције и иста не зависи од геометрије мерења. Геометријска ефикасност одређена је геометријом мерења и представља фракцију фотона захваћену детектором, при чему не зависи од енергије фотона већ од просторног угла под којим детектор види извор. Ефикасност која се односи на узорак пропорционална је фракцији фотона која ће напустити узорак и доспети до детектора. Фотони који потичу из волуминозних извора могу бити потпуно или делимично заустављени у материјалу самог узорка са којим доживљавају интеракције, а степен атенуације зависиће од масеног атенуационог коефицијента матрикса, дебљине и густине узорка.

Ефикасност је комплексна функција различитих параметара с’бзиром да су узорци из животне средине запремински извори (чија маса и запремина нису занемарљиве као у случају тачкастих извора) и који се обично међусобно разликују према садржају радионуклида и њиховим нивоима активности. Ако се установи тзв. стандардни референтни материјал који има исте физичко–хемијске особине, геометријски облик, врсту радионуклида и нивое активности као и узорци чија се активност одређује онда је за калибрацију ефикасности најприхватљивији експериментални приступ. Ефикасност детекције  $\varepsilon$  фотона гама зрачења енергије  $E$  за дате услове мерења се онда екпериментално одређује као:

$$\varepsilon = \frac{N}{A \cdot p_\gamma \cdot t} \quad (24)$$



где је  $N$  укупан број детектованих фотона испод пика тоталне апсорпције,  $A$  активност радионуклида калибрационог извора,  $p_\gamma$  вероватноћа емисије фотона енергије  $E$ , а  $t$  време мерења [20].

### *Ефекти самоапсорпције*

У идеалном случају (при истој геометрији мерења, хемијској композицији, густини матрикса) спектар висина врхова тоталне апсорпције калибрационог извора и испитиваног узорка директно би се поредио, међутим то најчешће није могуће са обзиром на бројност и разноврсност узорака из животне средине. Такође, ефикасност на сложен начин зависи од енергије, функција  $\ln \varepsilon = f(\ln E)$  расте у интервалу 60 keV до 200 keV, затим линеарно опада од 200 до 2000 keV, док на енергији око 600 keV постоји слабо уочљив минимум [22, 23], па је често је немогуће калибрисати детектор на ефикасност у читавом интервалу енергија од интереса користећи само један калибрациони стандард. Због тога је неопходно установити калибрациону криву ефикасности у функцији енергије тако што би се вредности ефикасности добијене на доступним енергијама користиле за интерполацију криве ефикасности у ширем енергетском интервалу. За интерполацију односно фитовање експерименталних вредности  $\varepsilon(E)$  аналитичком функцијом, најчешће се користи полиномна функција типа:

$$\ln \varepsilon = \sum_{i=0}^n a_i (\ln E)^i \quad (25)$$

где је  $\varepsilon$  ефикасност детекције на енергији  $E$  фотона гама зрака, а  $a_i$  нумерички коефицијенти добијени фитом [24]. Ефикасност у функцији енергије може се одредити и директно математичким путем применом аналитичког метода који даје најбоље резултате за тачкасте изворе, али у случају нетачкастих извора неопходно је применити полу–емпиријски метод. За одређивање ефикасности нумеричким путем најчешће се користи Монте Карло метода која је заснована на симулацији појединачних интеракција фотона [24, 25].

Фотони емитовани из волуминозног извора незанемарљивих димензија подложни су ефекту самоатенуације у материјалу самог извора из кога потичу, па у детектор не доспевају са својом карактеристичном енергијом и тиме у спектру не доприносе врху тоталне апсорпције. Фактор самоатенуације фотона у самом извору

може се израчунати у идеалном случају ако се посматра танак цилиндрични извор са хомогено распоређеном активношћу и атенуационим материјалом који је коаксијално постављен на некој удаљености од детектора. Ако су трајекторије свих емитованих фотона нормалне на површину извора, онда је број фотона  $N$  емитованих у просторном углу под којим детектор види извор:

$$N = \int_0^d N_0 e^{-\mu_l x} \frac{dx}{d} = N_0 \frac{1 - e^{-\mu_l d}}{\mu_l d} \quad (26)$$

где је  $d$  дебљина извора, а  $\mu_l$  линеарни коефицијент атенуације [25]. Фактор самоатенуације  $f_s(\mu, d, \rho)$ , односно фракција фотона која ће напустити узорак, онда зависи од масеног коефицијента апсорпције  $\mu$  ( $\mu = \mu/\rho$ ), дебљине  $d$  и густине  $\rho$  узорка:

$$f_s = \frac{N}{N_0} = \frac{1 - e^{-\mu d \rho}}{\mu d \rho} \quad (27)$$

За дате експерименталне услове, фактор самоатенуације  $f_s$  се може одредити путем мерења ефикасности пика тоталне апсорпције [26] на енергији  $E$ :

$$f_s = \frac{\varepsilon(\mu, E)}{\varepsilon_0(E)} \quad (28)$$

где је  $\varepsilon(\mu, E)$  ефикасност детекције фотона енергије  $E$  датог извора и геометрије мерења и  $\varepsilon_0(E)$  ефикасност детекције идеалног вакуумског извора мереног у истој геометрији при чему је  $\varepsilon_0(E) = \varepsilon(\mu = 0, E)$ . Фактор самоатенуације је практичније одредити експерименталним путем јер се употребом измерене ефикасности узимају у обзир специфичности мерне опреме, а избегава потреба за прецизним подацима о детекторском кристалу [25].

У идеалним условима, када су испитивани и калибрациони извор истих димензија, геометрије, густине и хемијског састава матрикса онда је и атенуација фотона у самом извору иста. Уколико се матрикс калибрационог и мереног узорка разликује, разликоваће се и фракције фотона заустављене у материјалу извора и да би ефикасност детектора била правилно калибрисана врши се корекција на самоатенуацију [23, 26]. Корекциони фактор  $K_{SA}$  на самоатенуацију одређује се као однос фактора самоатенуација узорка ( $'s'$ ) и калибрационог стандарда ( $'c'$ ):

$$K_{SA} = \frac{f_s^s(\mu, d, \rho)}{f_s^c(\mu, d, \rho)} \quad (29)$$

### *Ефекти коинцидентног сумирања*

При калибрацији ефикасности детектора треба у обзир треба узети и ефекте коинцидентног сумирања јер се побуђени нивои језгра настали радиоактивним распадом често деексцитују сукцесивном емисијом више фотона гама зрака различитих енергија. Ако су два или више фотона емитована у каскади детектована у току интервала поредивог или мањег од временске резолуције детектора, онда њихова симултана детекција представља тзв. право коинцидентно сумирање („*true coincidence summing*“). С обзиром на то да су типични животи побуђених стања језгара много краћи од временске резолуције детектора, уместо индивидуалних сигнала од који потичу од појединачних емисија, излазни сигнал одговара укупној енергији депонованој у активној запремини детектора. Право коинцидентно сумирање има за последицу да из врхова тоталне апсорпције неки фотони буду „изгубљени“ (вредност амплитуда је мања од коректне – „*summing out*“ ефекти) или се у врховима тоталне апсорпције јавља додатни одброј на енергијама једнаким збиру енергија коинцидентних фотона (вредност амплитуда је већа од коректне – „*summing in*“ ефекти). У оваквим случајевима неопходно је извршити корекцију на коинцидентно сумирање [27].

Коинциденције су такође могуће међу фотонима X и гама зрака, као и међу фотонима X зрака међусобно. Ефекти коинцидентног сумирања зависе од шеме распада датог радионуклида, типа детектора, ефикасности детектора, просторног угла који извор и детектор заузимају. Вредности корекционих фактора на коинцидентно сумирање се могу смањити ако је ефикасност детекције мања односно ако су растојања извор–детектор већа. Коришћење детектора све већих вредности ефикасности заступљеним у данашњим мерењима утиче на повећање ефеката коинцидентног сумирања [20, 21].

У Маринели геометрији, која се често користи у испитивању узорака из животне средине, извор се налази непосредно уз детектор и покрива га из свих праваца, па се вероватноћа да два или више каскадна гама зрака буду апсорбована у активној запремини детектора повећава. Један од начина да се детектор правилно калибрише на ефикасност у том случају је снимање спектра низа калибрационих извора у Маринели геометрији који садрже хомогено распоређене радионуклиде који не емитују фотоне у каскади већ појединачне фотоне као што су  $^{241}\text{Am}$  (59,5

keV),  $^{109}\text{Cd}$  (88,0 keV),  $^{139}\text{Ce}$  (165,9 keV),  $^{51}\text{Cr}$  (320,1 keV),  $^{85}\text{Sr}$  (514,0 keV),  $^{137}\text{Cs}$  (661,7 keV),  $^{54}\text{Mn}$  (834,8 keV) [27], а затим се фактор корекције на коинциденцију може одредити као однос апсолутне ефикасности детекције на енергији  $E_\gamma$  датог радионуклида и ефикасности на истој енергији у одсуству ефекта коинциденције.

### 2.3.3. Одређивање активности

Ако је у извору број присутних радиоактивних језгара  $N$ , онда се брзина радиоактивног распада односно активност радиоактивног извора  $A$  може одредити из једначине (30). Међутим, да би се активност непознатог извора одредила, број распада који је могуће детектовати зависиће од спектрометарског система који се користи при мерењу односно активност ће зависити од ефикасности детекције. Када се примењује метод спектрометрије гама-зрачења полупроводничким детекторима онда важну предност представља могућност одређивања активности радионуклида директно у нативном узорку. У случају испитивања активности узорака из животне средине, сама припрема узорака је недеструктивна и без потребе за претходном хемијском обрадом [20]. Ако је гама-спектрометријски систем калибрисан на ефикасност, активност  $A$  радионуклида садржаним у узорку може се одредити на основу броја импулса  $N$  измерених у врху тоталне апсорпције карактеристичне енергије:

$$A = \frac{N}{\varepsilon \cdot p_\gamma \cdot t_s} \quad (30)$$

где је  $\varepsilon$  – ефикасност детектора на датој енергији,  $p_\gamma$  – вероватноћа прелаза фотона гама-зрака дате енергије, а  $t_s$  – време мерења односно снимања спектра зрачења датог узорка. Примењујући експериментални приступ калибрације ефикасности у случају узорака из животне средине активност би била одређена на идеалан начин уколико би радиоактивни стандард коришћен за калибрацију и испитивани узорак били истих димензија тј. геометрије мерења, хемијске композиције и густине матрикса. Међутим, пошто се детектори обично калибришу на ефикасност радиоактивним стандардима са нуклидима чије се енергије гама-зрака разликују од оних које потичу од узорка, а могу постојати разлике и у односу на геометрију, густину, врсту и композицију матрикса корекције ефикасности је неопходно извршити.

У испитиваном узорку концентрација активности  $A_c(\text{Bqkg}^{-1})$  датог радионуклида одређује из израза:

$$A_c = \frac{\frac{N_s}{t_s} - \frac{N_b}{t_b}}{\varepsilon \cdot p_\gamma \cdot m \cdot D \cdot K} \quad (31)$$

где је  $N_s$  – број импулса испод врха тоталне апсорпције у спектру узорка,  $N_b$  – број импулса испод одговарајућег врха тоталне апсорпције у спектру основног зрачења (фона),  $t_s$  – време снимања узорка,  $t_b$  – време снимања фона,  $m$  – маса узорка и  $D$  – корекциони фактор распада нуклида [28]. Корекциони фактор  $D$  односи се на радиоактивни распад који се догодио у временском интервалу  $t_d$  протеклом од тренутка колекције узорка до почетка мерења ( $e^{-\frac{\ln 2 \cdot t_d}{t_{1/2}}}$ ), као и на распад који се догодио током времена мерења  $t_s$  ( $\frac{1 - e^{-\frac{\ln 2 \cdot t_s}{t_{1/2}}}}{\frac{\ln 2 \cdot t_s}{t_{1/2}}}$ ). Будући да је  $\lambda = \ln 2 / t_{1/2}$ , корекција

на распад за дугоживеће радионуклиде може се одредити из израза:

$$D = e^{-\lambda t_d} \cdot \frac{1 - e^{-\lambda t_s}}{\lambda t_{ds}} \approx e^{-\lambda (t_d + \frac{t_s}{2})} \quad (32)$$

јер је тада испуњено да је  $t_s \ll t_{1/2}$  [28, 29]. Остале корекције  $K$  које је неопходно применити односе се на ефекте самоатенуације ( $K_{sa}$ ), на импулсе изгубљене због ефекта случајног сумирања ( $K_{rs}$ ) и на ефекте правог коинцидентног сумирања ( $K_{cs}$ ) за нуклиде који се распадају у каскади или сукцесивним фотонским емисијама, тј.  $K = K_{sa} \cdot K_{rs} \cdot K_{cs}$ . Очигледно, корекције нису потребне уколико се матрикс и густина калибрационог и мереног узорка не разликују ( $K_{sa} = 1$ ) или ако калибрациони и мерени узорак садрже исте радионуклиде ( $K_{cs} = 1$ ). Корекције на ефекте случајног сумирања могу се одредити ако је позната временска резолуција спектрометарског система, али за ниске брзине бројања ова корекција није потребна ( $K_{rs} = 1$ ) [29].

Предпоставимо да излазна величина  $Y$  коју треба одредити зависи од низ улазних променљивих  $X_1, X_2, \dots, X_N$  чије се вредности могу мерити тако да важи релација:  $Y = f(X_1, X_2, \dots, X_N)$ . Након извршеног мерења, вредности  $x_1, x_2, \dots, x_N$  добијене мерењем користе се за одређивање вредности  $y$ , тј. важи  $y = f(x_1, x_2, \dots, x_N)$ . Комбинована стандардна мерна несигурност величине  $y$  која је

функција независно променљивих  $x_i$ , при чему је  $f(x_1, x_2, \dots, x_N)$  дифернцијабилна, може се наћи из закона пропагације мерне несигурности [28]:

$$u_c^2(y) = \sum_{i=1}^N \left( \frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i) + 2 \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N \frac{\partial f}{\partial x_i} \frac{\partial f}{\partial x_j} u(x_i, x_j) \quad (33)$$

где су величине  $u^2(x_i)$  варијансе променљивих  $x_i$ , а  $u(x_i, x_j)$  коваријансе променљивих  $x_i$  и  $x_j$ . Величина  $u_c^2(y)$  представља комбиновану варијансу мерене величине  $y$  и њен позитивни квадратни корен представља комбиновану стандардну несигурност одређивања величине  $y$ . Ако променљиве  $x_1, x_2, \dots, x_N$  нису у међусобној корелацији, формула пропагације мерне несигурности се редукује:

$$u_c^2(y) = \sum_{i=1}^N \left( \frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i) \quad (34)$$

Такође, често се користи тзв. проширена мерна несигурност на нивоу поверења  $\alpha$  која се добија множењем комбиноване стандардне мерне несигурности фактором поверења  $k_\alpha$ , што значи да ће се вредност мерене величине налазити у интервалу  $y \pm u(y)$  на изабраном нивоу поверења  $\alpha$  [28, 29]. Може се издвојити специјална форма закона пропагације мерне несигурности за релацију типа:  $y = \frac{f(x_1, x_2, \dots, x_N)}{z_1 z_2 \dots z_m}$ , дефинисану за величине које нису међусобно корелисане и за вредности параметара  $z_i$  различитим од нуле за коју се изводи следећа комбинована стандардна мерна несигурност [28]:

$$u_c^2(y) = \frac{u_c^2(f(x_1, x_2, \dots, x_N))}{z_1^2 z_2^2 \dots z_m^2} + y^2 \left( \frac{u^2(z_1)}{z_1^2} + \frac{u^2(z_2)}{z_2^2} + \dots + \frac{u^2(z_m)}{z_m^2} \right) \quad (35)$$

Примењујући метод гама–спектрометрије, услови мерења се могу подесити тако да је  $K = K_{sa} \cdot K_{rs} \cdot K_{cs} = 1$ , па се онда концентрација активности испитиваног радионуклида може одредити комбинујући (31) и (32) на основу израза (36):

$$A_c = \frac{\frac{N_s}{t_s} - \frac{N_b}{t_b}}{\varepsilon \cdot p_\gamma \cdot m \cdot e^{-\lambda \left( t_d + \frac{t_s}{2} \right)}} \quad (36)$$

Пошто је активност радионуклида одређена на овај начин функција више међусобно независних величина, онда свака понаособ носи своју несигурност. Из израза за пропагацију мерне несигурности (35) следи да је комбинована стандардна мерна несигурност величине  $A_c$ :

$$u(Ac) = \sqrt{\frac{\frac{u^2(N_S)}{t_S^2} + \frac{u^2(N_B)}{t_B^2}}{m^2 \varepsilon^2 p_\gamma^2 e^{-2\lambda(t_d+t_s/2)}} + Ac^2 \left( \frac{u^2(\varepsilon)}{\varepsilon^2} + \frac{u^2(m_s)}{m_s^2} + \frac{u^2(p_\gamma)}{p_\gamma^2} \right)} \quad (37)$$

при чему је у претходном изразу узето у обзир да се несигурности мерења времена  $t_b$ ,  $t_s$ ,  $t_d$  могу занемарити, као и несигурности одређивања времена полураспада радионуклида ( $\ll 1\%$ ). Несигурност вероватноће за емисију гама фотона  $p_\gamma$  дефинисана је и дата у литератури уз саму вредност и углавном је реда величине 0,1%, док је несигурност мерења масе узорка повезана је са тачношћу аналитичке ваге која је обично 0,1 g [28–30].

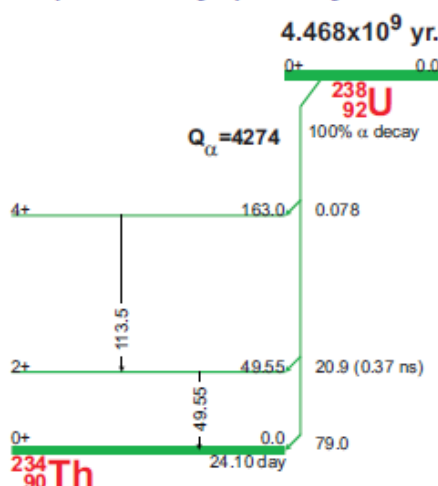
Допринос мерној несигурности који потиче од статистике бројања је највећи и најзначајнији. Историјски названа „грешка бројања“ је компонента укупне несигурности мерења узрокована случајном природом радиоактивног распада и његове детекције. Радиоактивни распад је случајан процес у смислу да ће два идентична атома истог радионуклида доживети распад у различито време, а бројање тих распада такође је случајан процес, осим ако ефикасност датог инструмента не износи 100%. Ако се претпостави да врх тоталне апсорпције и континуум имају Поасонову расподелу, онда се несигурност измереног броја импулса  $N$  може проценити стандардном девијацијом  $\sqrt{N}$  за дугоживеће радионуклиде и велики број забележених импулса. Несигурности броја импулса  $u(N_S)$  и  $u(N_B)$  се најчешће процењују коришћењем софтвера за обраду спектра везаног за спектрометарски систем након одређивања броја импулса испод врха тоталне апсорпције [28, 29].

Ако се ефикасност детектора калибрише експерименталним путем, при чему се за калибрацију користи референтни радиоактивни материјал, утицај свих параметара који утичу на мерну несигурност ефикасности такође је дат комбинованом стандардном мерном несигурношћу која зависи од несигурности активности стандардног радиоактивног раствора датај у сертификату од стране произвођача, несигурности одређивања површине испод пика тоталне апсорпције и несигурности различитог порекла које настају у процесу израде референтних радиоактивних материјала [30].

### 2.3.4. Гамаспектрометрија узорака из животне средине

Одређивање активности значајних природних радионуклида присутних у узорцима из животне средине методом спектрометрије гама-зрачења засновано је на претпоставци радиоактивне равнотеже која је успостављена у природним радиоактивним низовима. Када је радиоактивни низ у равнотежи, активности чланова низа су једнаке тј. сви чланови низа се распадају истом брзином, па се активност претка може одредити на основу активности неког од потомака [20]. Будући да услови радиоактивне равнотеже у пост-радоновском делу низа могу бити нарушени као резултат еманиације изотопа радона, равнотежу је неопходно поново успоставити. Држањем узорака који се испитују у херметички затвореним посудама у трајању од приближно  $\sim 10$  полуживота изотопа радона (за радон  $\sim 40$  дана, за торон  $\sim 10$  минута, за актинон  $\sim 40$  секунди) спречава се губитак фракције изотопа радона која би из узорка еманирала и обезбеђује секуларна равнотежа.

#### $^{238}\text{U}$ ( $4.47 \times 10^9$ yr.) Decay Scheme

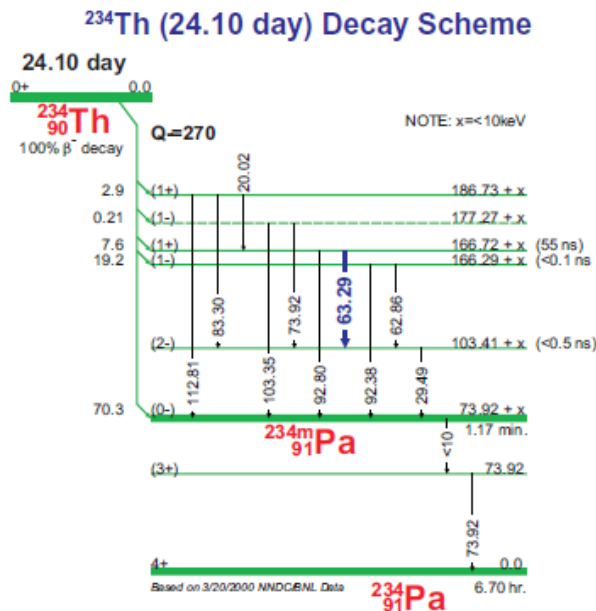


Слика 10. Шема распада  $^{238}\text{U}$  [31]

При трансформацији језгра  $^{238}\text{U}$  алфа-распадом (Слика 10), 20,9% алфа-распада води на побуђени ниво  $^{234}\text{Th}$  на енергији 49,5 keV. Емисија фотона гама зрачења ове енергије се не може користити за одређивање  $^{238}\text{U}$  због веома малог интензитета прелаза (0,064%). Активност  $^{238}\text{U}$  се онда може одредити на основу активности његових потомака  $^{234}\text{Th}$  и  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  у секуларној радиоактивној равнотежи. Сматра се да је у узорцима из животне средине секуларна равнотежа између  $^{238}\text{U}$  и  $^{234}\text{Th}$  најчешће већ успостављена због кратког времена полураспада  $^{234}\text{Th}$  ( $t_{1/2} = 24,1$  d) и торијумове ограничене мобилности и релативне нерастворљивости у узорцима



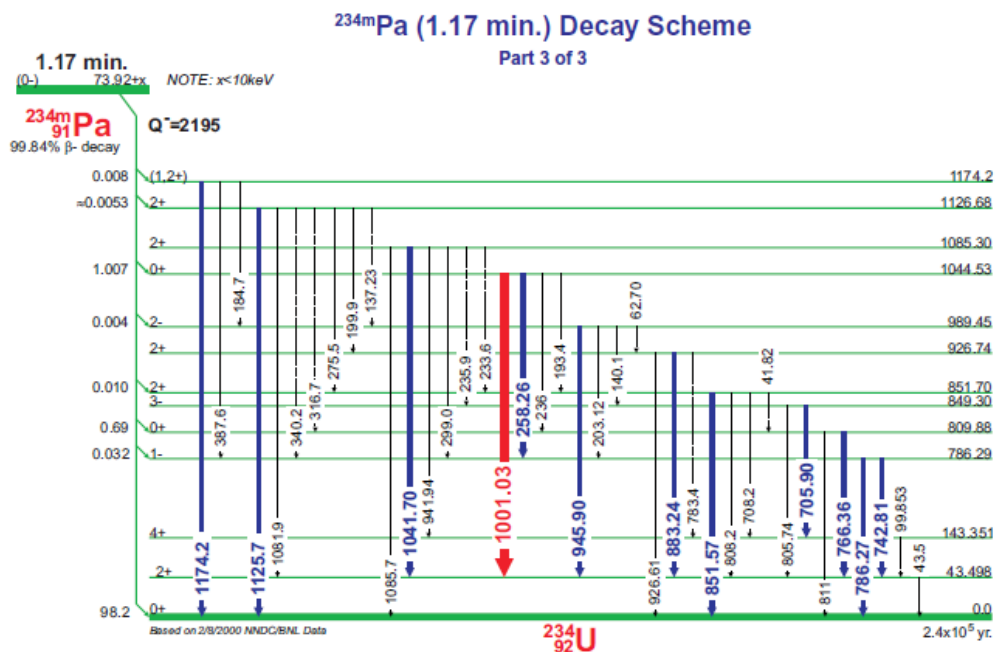
стена, седимената и земљишта, а равнотежу је могуће и осигурати у лабораторијским условима после времена од 4 месеца. У том случају директно мерење нуклида  $^{234}\text{Th}$  детекцијом фотона гама-зрака који прате трансформацију  $^{234}\text{Th}$  у  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  бета-распадом омогућено је применом методе гамаспектрометрије. За детекцију се користе две главне емисије фотона гама-зрака које се налазе на енергијама 63 keV (дублет 62,8 keV + 63,3 keV) и 92,5 keV (дублет 92,3 keV + 92,8 keV) са вероватноћама распада 3,75% и 5,57% респективно (Слика 11). При томе је и ефикасност германијумских детектора највећа управо у интервалу енергија од 40 до 120 keV. Међутим, у истом интервалу енергија, на трансмисију фотона критичан утицај има композиција матрикса, густина и геометријска конфигурација узорка због чега је при одређивању активности неопходно извршити корекције на самоатенуацију [32].



Слика 11. Шема распада  $^{234}\text{Th}$  [31]

На енергији 63 keV, допринос пику тоталне апсорпције може потицати и од  $^{232}\text{Th}$  (0,255%) и  $^{235}\text{U}$  (односно  $^{231}\text{Th}$  (0,023%)), али се овај може лако проценити пошто се при истом мерењу методом гама-спектрометрије  $^{232}\text{Th}$  може одредити путем свог потомка  $^{228}\text{Ac}$ , а  $^{235}\text{U}$  на основу сопствених гама-зрака енергије 143 keV и 163 keV (под условима секуларне равнотеже и у низовима  $^{232}\text{Th}$  и  $^{235}\text{U}$ ). Што се тиче фотона енергије 92,5 keV, они имају већу вероватноћу и за емисију и за трансмисију, али се налазе у области у којој се јавља велики број фотона X-зрака који могу потицати од олова ( $K\alpha_1$  72,8 keV,  $K\alpha_2$  75,0 keV,  $K\beta_1$  84,9 keV), бизмута

( $K\alpha_1$  77,1 keV,  $K\alpha_2$  74,8 keV,  $K\beta_1$  87,3 keV) и торијума ( $K\alpha_1$  93,3 keV). Из ових разлога коришћење фотона енергије 92,5 keV се најчешће избегава, нарочито због тешкоћа које настају када се врши корекција на торијум који не потиче од нуклида  $^{234}\text{Th}$  [32].

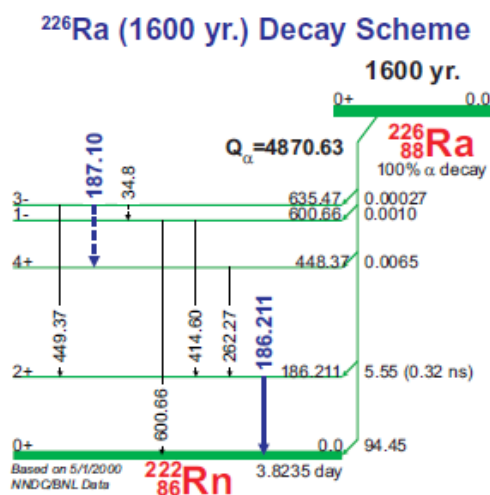


Слика 12. Шема распада  $^{234m}\text{Pa}$  [31]

Због веома кратког времена полураспада,  $^{234m}\text{Pa}$  ( $t_{1/2} = 1,17$  min) је увек у равнотежи са претком  $^{238}\text{U}$ , па фотони енергије 1001,03 keV из распада  $^{234m}\text{Pa}$  могу бити корисни за одређивање активности нуклида претка (Слика 12). Међутим, исти имају ниску вероватноћу прелаза од 0,835% [33], а истовремено ефикасност германијумских детектора је мања на вишим енергијама. Низак принос ових фотона доводи до немогућности њиховог издвајања из спектра природног фона при мерењу узорка из животне средине под нормалним условима када се ова линија најчешће не може детектовати. Фотони енергије 1001 keV јесу корисни јер су ефекти самоатенуације тих фотона минимално изражени и интерферирање са другим линијама одсутно, али само уз постигнуто довољно дуго време мерења (нпр. реда 2 дана за узорке земљишта).

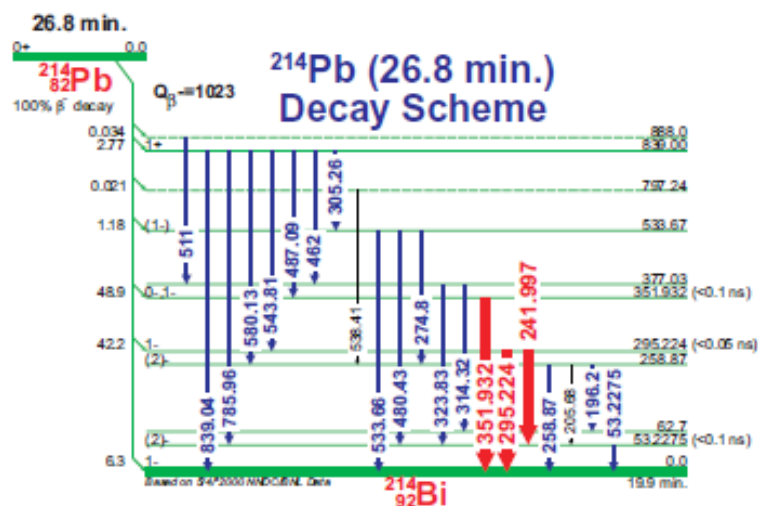
За постизање равнотеже у пост-радонском делу низа односно низу продуката распада нуклида  $^{226}\text{Ra}$ , довољно је време од приближно месец дана, са обзиром на то да следећих осам потомака има много краће време полураспада (у интервалу 162  $\mu\text{s}$  до 27 min) у односу на претка  $^{226}\text{Ra}$  ( $t_{1/2} = 1600$  god). У самом

распаду  $^{226}\text{Ra}$  јављају се фотони гама-зрака на енергији 186,2 keV чији је интензитет прелаза довољно велики (3,59%), међутим (Слика 13), овом пику значајан допринос даје емисија гама-зрака на енергији 185,7 keV вероватноће прелаза од 57,2% која потиче из распада  $^{235}\text{U}$ , при чему је раздвајање ове две линије ограничено резолуцијом садашњих германијумских детектора [33]. Због тога се у условима успостављене секуларне равнотеже у узорцима из животне средине одређивање  $^{226}\text{Ra}$  базира на детекцији његових потомака  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ . Вероватноће прелаза веће од 5% имају фотони енергије 241,9 keV (7,43%), 295,2 keV (19,3%), 351,9 keV (37,6%) из распада  $^{214}\text{Pb}$  (Слика 14) и 609,3 keV (46,1%), 1120,3 keV (15,1%), 1764,5 keV (15,4%), 2204,2 keV (5,08%) из распада  $^{214}\text{Bi}$  (Слика 15).

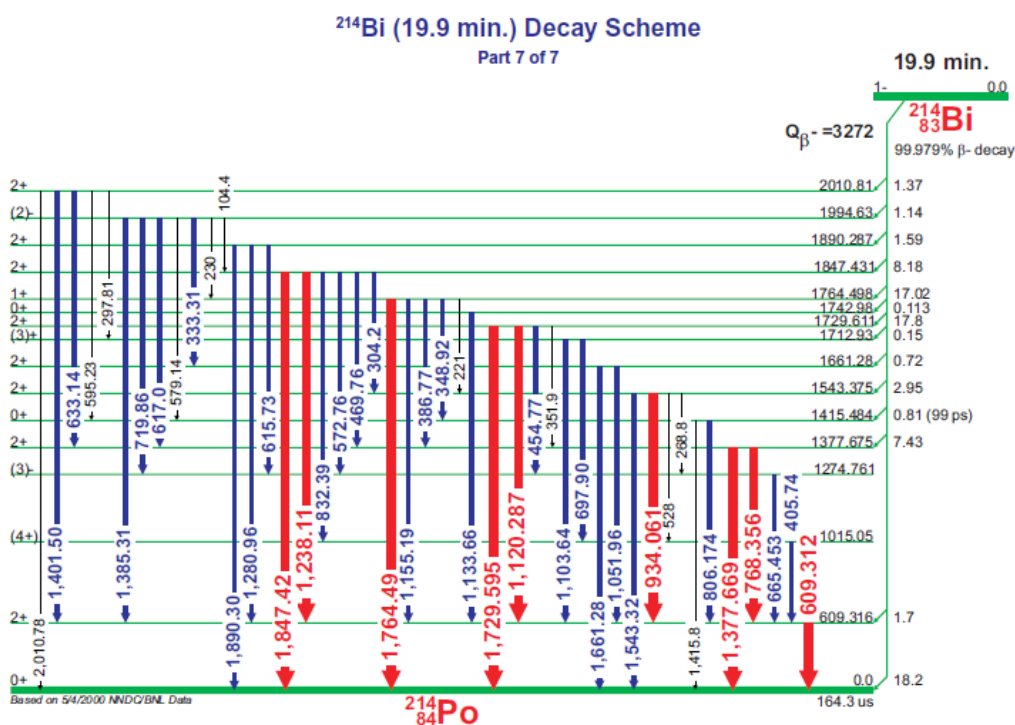


Слика 13. Шема распада  $^{226}\text{Ra}$  [31]

Радионуклид  $^{210}\text{Pb}$  у природном низу уранијума  $^{238}\text{U}$  произведен је као резултат распада краткоживећег  $^{222}\text{Rn}$  и настаје на два начина, као продукт алфа-распада (99,98%)  $^{214}\text{Po}$  и бета-распада (0,02%)  $^{210}\text{Tl}$  (из  $^{214}\text{Bi}$ ). Сам  $^{210}\text{Pb}$  ( $t_{1/2} = 22,3$  god) је подложен бета-распаду у  $^{210}\text{Bi}$ , при чему је овај процес праћен емисијом фотона гама-зрака енергије 46,5 keV (Слика 16). На крају, после бета-прелаза ( $^{210}\text{Bi}$  у  $^{210}\text{Po}$ ) и једног алфа-распада низ се завршава формирањем стабилног изотопа олова  $^{206}\text{Pb}$ . Уколико је секуларна равнотежа у пост-радонском делу низа постигнута, фотони енергије 46,5 keV (интензитета прелаза од 4,05%) користе се за одређивање активности  $^{210}\text{Pb}$ .



Слика 14. Шема распада  $^{214}\text{Pb}$  [31]

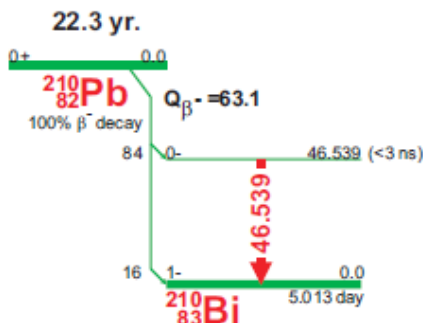


Слика 15. Шема распада  $^{214}\text{Bi}$  [31]

Међутим, на емисију фотона ниске вероватноће прелаза који се налазе у ниско-енергетском делу спектра могу утицати интерферирања са Комптоновим спектром, спектром фона, затим случајне коинциденције, а у највећем степену ефекат самоатенуације. У том случају је најбоље калибрацију детектора извршити у интервалу ниских енергија користећи референтни материјал датог матрикса, густине и геометрије који садржи нуклиде  $^{210}\text{Pb}$  (46 keV),  $^{241}\text{Am}$  (59,5 keV) и  $^{109}\text{Cd}$  (88 keV). Корекцију на самоатенуацију је неопходно извршити користећи метод

емпиријски, семи–емпиријски или Монте–Карло симулацију које се сви базирају на познавању композиције матрикса.

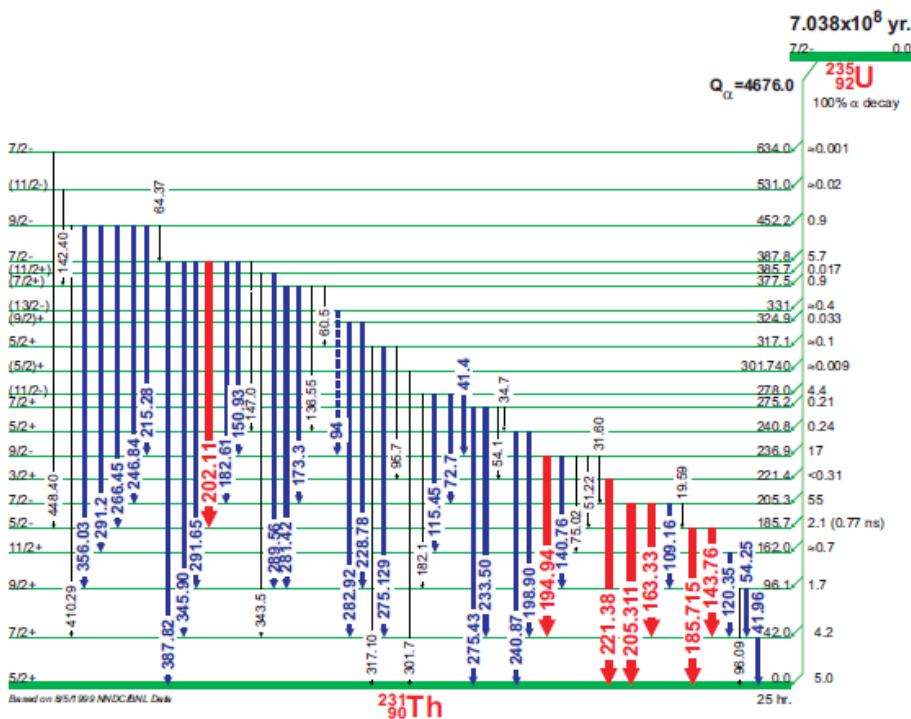
### $^{210}\text{Pb}$ (22.3 yr.) Decay Scheme



Слика 16. Шема распада  $^{210}\text{Pb}$  [31]

Ако се сматра да секуларна равнотежа између уранијума  $^{235}\text{U}$  ( $7,04 \cdot 10^8$  год) и његовог потомка из алфа–распада  $^{231}\text{Th}$  није нарушена, онда би се гама–фотони енергија 143,76 keV (10,96%), 163,33 keV (5,08%), 185,72 keV (57,2%) и 205,31 keV (5,01%) који прате овај процес могли користити за одређивање активности родитеља  $^{235}\text{U}$  (Слика 17).

### $^{235}\text{U}$ ( $7 \times 10^8$ yr.) Decay Scheme



Слика 17. Шема распада  $^{235}\text{U}$  [31]

Међутим, у узорцима из животне средине број детектованих импулса на енергији 143 keV, 163 keV и 205 keV ће најчешће бити испод границе детекције HPGe детектора због њихових ниских вероватноћа прелаза и ниске заступљености изотопа  $^{235}\text{U}$  од 0,72% у укупном уранијуму. Зато је могуће користити само фотоне веће вероватноће прелаза, а то су они енергије 185,72 keV, иако припадају мултиплетном пику тоталне апсорпције заједно са фотонима 186,25 keV из распада  $^{226}\text{Ra}$  који су увек истовремено присутни у узорцима из природе [33]. Због тога је неопходно извршити корекцију укупног броја импулса за допринос који потиче од  $^{226}\text{Ra}$ :

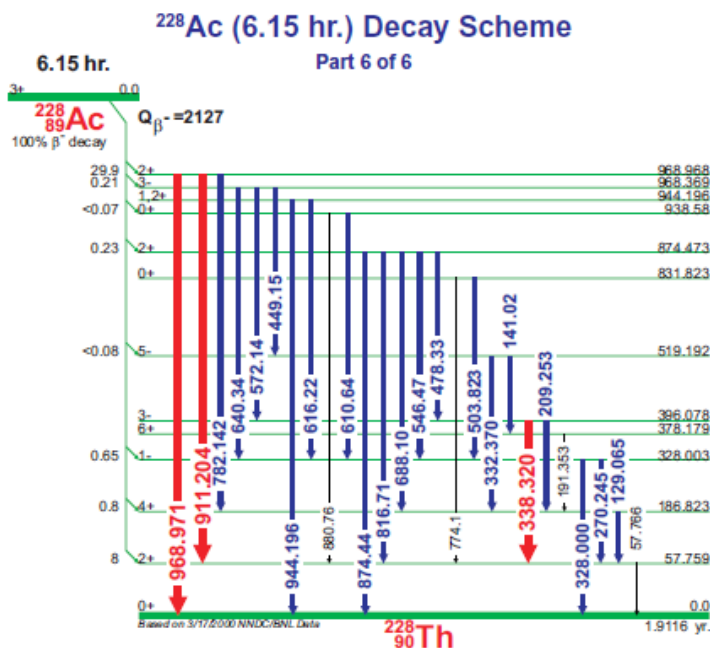
$$N_{235-U(186\text{ keV})} = N_{total(186\text{ keV})} - N_{226-Ra(186\text{ keV})} \quad (38)$$

тако што се број импулса  $N_{226-Ra(186\text{ keV})}$  одређује на основу његове познате, претходно одређене активности  $A_{226-Ra(186\text{ keV})}$ :

$$N_{226-Ra(186\text{ keV})} = A_{226-Ra} \cdot \varepsilon_{186\text{ keV}} \cdot p_{\gamma 226-Ra(186\text{ keV})} \cdot t \quad (39)$$

где је  $\varepsilon_{186\text{ keV}}$  – ефикасност детектора на енергији 186 keV,  $p_{\gamma 226-Ra(186\text{ keV})}$  – интензитет гама прелаза  $^{226}\text{Ra}$  (3,56%),  $t$  – време мерења спектра. Активност  $^{235}\text{U}$  се онда налази из (40):

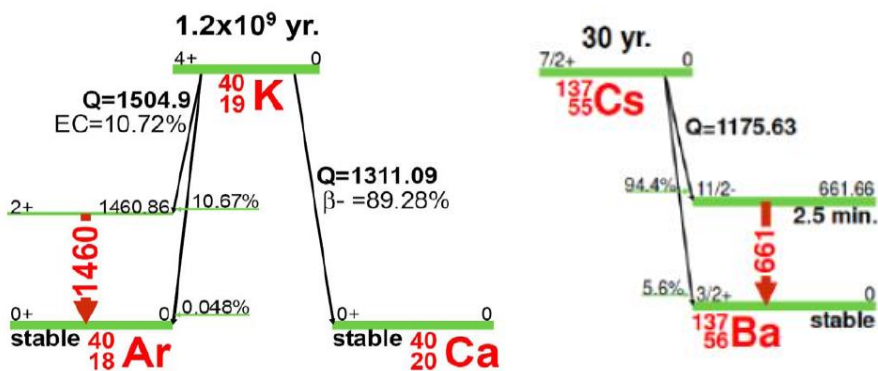
$$A = \frac{N_{235-U(186\text{ keV})}}{\varepsilon_{186\text{ keV}} \cdot p_{\gamma 235-U(185,7\text{ keV})} \cdot t} \quad (40)$$



Слика 18. Шема распада  $^{228}\text{Ac}$  [31]

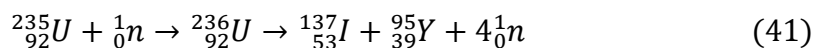
Пошто је у природи секуларна равнотежа најчешће постигнута у низу  $^{232}\text{Th}$  ( $1,4 \cdot 10^{10}$  год), онда се потомци нуклиди  $^{228}\text{Ra}$  (5,75 год) (из алфа–распада  $^{232}\text{Th}$ ) односно  $^{228}\text{Ac}$  (6,15 h) (из бета–распада  $^{228}\text{Ra}$ ) могу користити за одређивање активности нуклида претка  $^{232}\text{Th}$ . Најинтензивније линије енергије 338,3 keV (11,3%) и 911,2 keV (25,8%) које се користе настају у бета распаду  $^{228}\text{Ac}$  (Слика 18). Ако се секуларна равнотежа додатно осигура у херметички затвореној посуди у току времена од  $\sim 10$  минута, могу се користити и продукти пост–торонског низа,  $^{212}\text{Pb}$  (238,6 keV) и  $^{208}\text{Tl}$  (583,1 keV).

Један од најзначајнијих примордијалних радионуклида који не припада природним радиоактивним низовима је изотоп калијума  $^{40}\text{K}$  ( $t_{1/2}=1,28 \cdot 10^9$  год), веома дугог времена полуживота. Калијум се састоји од смеше три изотопа од којих су  $^{39}\text{K}$  и  $^{41}\text{K}$  стабилни, а радиоактивни изотоп  $^{40}\text{K}$  се у укупном калијуму садржи 0,0117%. Радиоактивни  $^{40}\text{K}$  се трансформише на два начина, бета распадом у  $^{40}\text{Ca}$  и електронским захватом у  $^{40}\text{Ar}$  са односима гранања 89,28% и 10,72%, респективно (Слика 19). У гама–спектрометрији,  $^{40}\text{K}$  се одређује користећи једине доступне фотоне енергије 1460,86 keV.

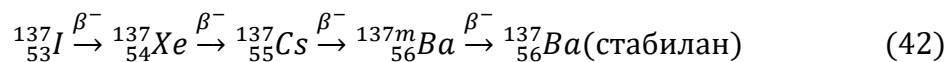


Слика 19. Шема распада  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$  [31]

Међу произведеним радионуклидима, најзначајнији гама–емитер који је битно заступљен у животној средини је  $^{137}\text{Cs}$  ( $t_{1/2}=30,2$  год), у којој ће се дуго задржати због своје дужине полураспада, па је његово одређивање значајно у истој мери као и одређивање природних радионуклида.  $^{137}\text{Cs}$  је фисиони продукт и један од начина његове продукције је фисиони процес коме подлеже изотоп  $^{235}\text{U}$ :



после чега следи ланац бета–распада:



${}^{137}\text{Cs}$  у процесу бета–распада (94,6%) остварује прелаз у метастабилни нуклеарни изомер  ${}^{137m}\text{Ba}$ , а остатак језгара бета–распадом директно насељава основно стабилно стање  ${}^{137}\text{Ba}$  (Слика 19). Период полураспада  ${}^{137m}\text{Ba}$  износи 2,55 минута и 85,1% деексцитација води у основно стање  ${}^{137}\text{Ba}$  емитовањем фотона енергије 661,7 keV. Због тога се у гама–спектрометрији ова изолована гама–линија из распада метастабилног баријума користи за одређивање активности  ${}^{137}\text{Cs}$ .

## 2.4. Радионуклиди у систему земљиште–биљка

У области заштите животне средине од јонизујућих зрачења важан аспект представља проучавање миграције радионуклида у земљишту, као и трансфера из земљишта у биљке ради свеобихватнијег познавања њиховог кретања кроз ланац исхране. На интензитет усвајања из земљишта у биљке утичу фактори као што су концентрација радионуклида у земљишту, физичко–хемијске карактеристике радионуклида, тип и биолошке особине биљака, количина падавина, температура ваздуха [34,35,37]. Међутим, у тако комплексном систему као што је земљиште–биљка на понашање радионуклида најзначајнији утицај имају тип и својства земљишта. Свако земљиште може се окарактерисати на основу својих главних физичких (текстура, структура, порозност, садржај воде, ваздуха, размена топлоте) и хемијских (минералозна и хемијска композиција, рН, салинитет, капацитет измењивости катјона, садржај органске материје) особина [35, 36].

### 2.4.1. Физичко–хемијске особине земљишта

Земљиште представља растресити део Земљине коре које је настало деловањем педогенетских фактора на стенску масу у току одређеног временског периода. Значај земљишта се огледа у томе што представља средину која омогућава раст и развој виших биљака, омогућава задржавање воде и хранљивих састојака и садржи микрофлору која активно мења изумрле органске остатке образујући у земљишту хумус. Земљиште представља трофазни систем који се састоји од чврсте, течне и гасовите фазе који су заступљени у различитим односима. Могло би се условно рећи да удео чврсте фазе износи 50%, а течне и гасовите заједно осталих 50%. Чврста фаза земљишта се састоји од минералних материја које потичу од



матичног супстрата и од органских материја које воде порекло из биосфере. У саставу чврсте фазе земљишта може се условно проценити да је минерални удео 45%, а органски 5% у односу на целокупан трофазни систем. Минералне и органске материје које чине чврсту фазу земљишта чине честица различитих димензија [36].

*Механички састав* земљишта подразумева процентуално учешће механичких фракција односно група елементарних земљишних честица сличних димензија. Груписањем елементарних честица према величини врши се класификација механичких фракција у земљишту. Према класификацији Међународног друштва за проучавање земљишта (ISSS), Одељења Сједињених Америчких Држава за Пољопривреду (USDA) ситне земљишне честице (<2 mm) имају следеће димензије: фракцији песка припадају честице димензија 2–0,05 mm, фракцији праха димензије 0,05–0,002 mm и фракцији глине честице <0,002 mm. Ова класификација обухвата и фракције скелета које се састоје од шљунка (2–20 mm) и камена (>20 mm). Механички састав се још назива гранулометријски или текстурни састав (текстура). На основу различитог механичког састава земљишта издвајају се четири основне текстурне класе: глина (глинуша), песак (пескуша), прах и иловача. Песковита земљишта су лака и релативно инертна, добре водопрпусности, у којима преовлађују примарни минерали, док су глиновита земљишта слабије водопрпусности и велике вододрживости, у којима преовлађују глиновити (секундарни) минерали [36].

Како се димензије честица смањују тако расте њихова специфична површина (површина честице по јединици масе), па код крупнијих честица као што је песак она износи реда  $\sim 1 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ , док је код честица глине и до  $\sim 10^4$  пута већа. Честице глине, због својих малих димензија имају већу специфичну површину и веће површинско наелектрисање (најчешће негативно) и тиме већу моћ сорпције катјона из земљишних раствора, што се у огледа у већем капацитету измене катјона. У земљишту су механички елементи примарне честице које се адхезијом међусобно повезују у структурне агрегате које представљају секундарне честице земљишта, а облик, величина и заступљеност структурних агрегата представља структуру земљишта.

*Реакција* земљишта (pH реакција) одређена је својствима течне и чврсте фазе земљишта. Концентрација слободних  $\text{H}^+$  јона у земљишном раствору (течна фаза)

представља активну киселост земљишта и може се одредити у суспензији суве материје земљишта са дестилованом водом (pH у H<sub>2</sub>O). Потенцијална киселост земљишта је киселост чврсте фазе земљишта. Она може бити измењива (супституциона) и хидролитичка, у зависности од јачине везаности H<sup>+</sup> јона за колоидну честицу. Супституциона киселост се одређује супституцијом дела слабије везаних H<sup>+</sup> јона из дифузног слоја колоидне мицеле коришћењем раствора неке хидролитички неутралне соли (KCl, CaCl<sub>2</sub>). Заменом K<sup>+</sup> јона из раствора са H<sup>+</sup> јонима, концентрација H<sup>+</sup> јона у раствору постаје већа, те је вредност супституционе киселости увек мања од вредности активне киселости.

*Садржај калцијум карбоната* у земљишту потиче преваходно од минерала калцита (CaCO<sub>3</sub>) и доломита CaMg(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, који су такође извор неорганског угљеника у земљишту. Присуство CaCO<sub>3</sub> у земљишту даје земљиштима базни карактер. Карбонатни минерали су минерали мање тврдоће због чега су лакше растворљиви и имају тенденцију испирања дуж профила земљишта. Процес испирања CaCO<sub>3</sub> је веома спор, па се на основу његове расподеле дуж земљишних профила може закључивати о генези земљишта и другим променама које су се у земљишту догодиле током времена.

*Органска материја* у земљишту коју називамо *хумусом* обухвата органске остатке земљишта из којих су изузети неразложени биљни и животињски остаци. Честице хумуса су честице колоидне величине. Оне су у земљиштима повезане са минералним делом земљишта образујући органо–минерални комплекс земљишта. Процес трансформације органске материје у земљишту тече у правцу минерализације и хумификације органске материје. У процесу хумификације органске материје настају хуминска једињења као што су фулво киселине, хуминске киселине и хумини. Хумусна једињења су тамне боје и представљају фонд резервних хранљивих материја за биљке, један су од фактора стабилности структурних агрегата у земљишту и имају висок капацитет адсорпције катјона.

Носиоци хумификоване органске материје у земљиштима су хумусно–акумулативни хоризонти који имају највећи садржај хумуса. Хумусне материје су комплексна органска синтетизована једињења која су веома стабилна у условима неутралне реакције земљишта. У условима јако киселе и јако алкалне реакције ова једињења се испирају по дубини земљишног профила. Површински

слој земљишта се стално обогаћује новом органском материјом, па је ту њен садржај највећи [36].

*Сорпција* је термин који се користи у ширем смислу представљајући било коју форму партиције радионуклида на граници између чврсте фазе и воденог раствора земљишта [28]. Као мера степена сорпције може да служи дистрибуциони коефицијент земљишта  $K_d$  ( $L \cdot kg^{-1}$ ) који представља однос концентрације радионуклида ( $Bq \cdot kg^{-1}$ ) у чврстој фази земљишта и концентрације у земљишном раствору ( $Bq \cdot L^{-1}$ ) при чему се предпоставља постојање идеалне реверзибилне равнотеже (брзина сорпције једнака је брзини десорпције) [37, 38]. Ретенција односно акумулација радионуклида у земљишту се може одвијати путем физичке сорпције (адсорпција) која је реверзибилан процес и којом управљају некомпензована нелектрисања на површинама земљишних честица и путем хемијске сорпције која је најчешће неревверзибилан процес (апсорпција). Ревверзибилна сорпција одвија се најчешће под утицајем слабе Ван дер Валсове интеракције, а пример неревверзибилног сорпционог процеса је уграђивање радионуклида у кристалну решетку земљишних минерала [37]. Најважнији минерали укључени у процесе сорпције радионуклида су глиновити минерали (хидратисани алумосиликати) чија је листаста кристална структура трослојног (1:2) (илит, смектит, вермикулит, хлорит) или двослојног (1:1) типа (каолинит).

#### 2.4.2. Понашање дугоживећих радионуклида у земљишту

*Уранијум* природног порекла у земљиште доспева у процесима распадања стена физичким, хемијским или биолошким дејством који се одвијају током дугог временског периода [1, 37]. Уранијум није редак елемент јер је процењено да је есенцијални конституент више од 5% свих познатих минерала земљине коре [18]. Природни уранијум се састоји од изотопа  $^{238}U$  (99,274%),  $^{235}U$  (0,720%) и  $^{234}U$  (0,0055%) који припадају природним радиоактивним серијама. Уранијум се појављује у +3, +4, +5 и +6 оксидационим стањима, а у стањуима +4 и +6 се најчешће јавља у земљишту [28]. Јони четворовалнетног уранијума  $U(+IV)$  су заступљени у редукционим условима, веома су нерастворљиви и слабо покретљиви. У оксидационим условима земљишта преовлађује шестовалентни уранијум  $U(+VI)$  чији је доминатни облик уранил јон ( $UO_2^{2+}$ ) велике

растворљивости [2]. На миграцију уранијума важан утицај имају сорпциони процеси јер уранијум интерагује са свим компонентама земљишта (глине, оксиди, хидроксиди, органска материја), а главни утицај на степен сорпције има земљишна рН вредност [37, 38]. Дистрибуциони коефицијент  $K_d$  односно сорпција уранијума расте са порастом рН од 3 до 5, достиже максимум у интервалу рН од 5 до 7 ( $4000 \text{ L kg}^{-1}$ ), а затим опада на вредностима рН већим од 7 [38]. У неутралним и алкалним условима и у присуству карбоната у земљишту, уранил јони граде веома растворљиве и покретљиве уранил–карбонатне комплексе [12]. Карбонатни комплекси су као главна неорганска форма у условима  $\text{pH} > 6,5$  од великог значаја јер ограничавају могућност ретенције и битно утичу на повећање мобилности уранијума. Органске материје могу путем сорпције да утичу на смањивање покретљивости уранијума (специјално  $\text{U(IV)}$  на  $\text{pH} < 6,5$ ), али након формирања органских комплекса очекује се повећање покретљивости [38,12].

*Радијум* се у природи појављује само као продукт радиоактивног распада уранијумове и торијумове природне серије [15]. Најзначајнији изотопи,  $^{226}\text{Ra}$  (1600 год) и  $^{228}\text{Ra}$  (5,75 год) су дугог времена полураспада, а мање су значајни  $^{223}\text{Ra}$  (11,4 d) и  $^{224}\text{Ra}$  (3,63 d) чија се времена полураспада мере у данима. Као члан групе земно–алкалних метала, радијум се јавља у земљишту као двовалентни јон ( $\text{Ra}^{2+}$ ) и понаша се слично осталим члановима своје групе (Ba, Sr, Mg, Ca). Сорпциони процеси су за радијум веома значајни [38] и одвијају се на глинама и минералним оксидима, нарочито у земљишту  $\text{pH} \geq 7$ , а нека истраживања су показала да је адсорпција радијума на честицама органске материје била до 10 пута већа него на фракцијама глине [15]. У поменутом истраживању је указано да је мера ретенције радијума повезана са капацитетом измењивости катјона земљишних честица, али није једнозначно одређено којом особином земљишта би степен сорпције могао бити описан [12, 15]. Због тога се оцењује да је већина радијума у земљишту непокретна јер се Ra превасходно налази у резидуалним фазама земљишта инкорпориран у кристалним решеткама минерала [39]. Сорпција радијума на компонентама земљишта је ефикасан и најчешће реверзибилан процес [37], због чега се битан удео радијума може наћи и у најлабилнијим фракцијама земљишта које су обично доступне биљкама.

Торијум као члан групе актинида, у природи се појављује као четворовалентни јон  $\text{Th}(+IV)$ , сличан јону уранијума  $\text{U}(+IV)$  чији су радијуси приближно истих димензија [18]. У природном торијуму садржи се 99,5% изотопа  $^{232}\text{Th}$ . Торијум се у земљишту увек јавља у оксидационом стању +4 и понаша се слично +4 јону уранијума, што значи као непокретљив и веома мало растворљив елемент и ако се нађе у земљишном раствору брзо се адсорбује на чврстој фази земљишта [37]. Сматра се да је за сорпцију торијума одговорна органска материја, а не минералне компоненте земљишта [12]. Дистрибуциони коефицијент  $K_d$  земљишта у случају торијума расте са порастом рН од 3 до 5, достиже максимум у рН интервалу од 5 до 8 ( $3000 \text{ L kg}^{-1}$ ) и на вредностима рН већим од 8 постаје за ред величине мањи [38].

Олово има 4 стабилна ( $^{204,206,207,208}\text{Pb}$ ) и 4 природно радиоактивна изотопа ( $^{210,211,212,214}\text{Pb}$ ), а најобилнији је  $^{210}\text{Pb}$  због свог дугог времена полуживота ( $t_{1/2} = 22,2 \text{ god}$ ) у односу на остале изотопе. У природи,  $^{210}\text{Pb}$  припада радиоактивној серији уранијума  $^{238}\text{U}$  и потомак је претка  $^{226}\text{Ra}$  ( $^{226}\text{Ra}-^{222}\text{Rn}-^{218}\text{Po}-^{214}\text{Pb}-^{214}\text{Bi}-^{214}\text{Po}-^{210}\text{Pb}$ ) са којим би требало да буде у секуларној равнотежи.  $^{210}\text{Pb}$  може остати „заробљен“ у минералној фази земљишта или може бити депонован из атмосфере као продукт распада гаса радона  $^{222}\text{Rn}$  који је претходно из земљишта дифундовао у атмосферу. Оксидациона стања олова су 0, +2 и +4, а у земљишту се најчешће јавља као  $\text{Pb}^{2+}$  јон [18]. Олово има јак афинитет за адсорпцију на компонентма земљишта [38]. Сорпција олова расте у са порастом рН и капацитетом измењивости катјона земљишта. При томе, особине које утичу на капацитет измењивости катјона (величина специфичне површине, садржај глине, органске материје) имају већи утицај на сорпцију од рН. Међутим, експлицитна веза између дистрибуционог коефицијента  $K_d$  и неке специфичне особине земљишта осим рН није утврђена, па  $K_d$  расте у рН 3,0–6,4, а затим постаје за ред величине већи у интервалу рН 6,4–8,3 ( $3300 \text{ L kg}^{-1}$ ) [38]. Олово у земљишту није униформно распоређено већ је најчешће концентрисано у површинском слоју земљишта где је фиксирано за органску материју. Покретљивост олова је веома мала осим када је киселост земљишта виша или када се формирају типови органских комплекса који повећавају растворљивост и тада олово лако доспева у ниже слојеве земљишта [18].

Цезијум се састоји се од једног стабилног изотопа ( $^{133}\text{Cs}$ ), док су 22 остала вештачког порекла и у природи се појављују углавном као резултат антропогене активности. Фисиони продукти укључују три изотопа цезијума значајних концентрација:  $^{134}\text{Cs}$  ( $t_{1/2} = 2,05 \text{ god}$ ),  $^{135}\text{Cs}$  ( $t_{1/2} = 3 \cdot 10^6 \text{ god}$ ) и  $^{137}\text{Cs}$  ( $t_{1/2} = 30,2 \text{ god}$ ).  $^{137}\text{Cs}$  је биолошки значајан радионуклид с обзиром на своје довољно дуго време полураспада које му обезбеђује присуство у ланцима исхране. Цезијум се понаша аналогно калијуму у животној средини и у људском организму [18]. У земљишту је растворљивост цезијума, једновалентног алкалног метала, веома велика, а ретенција се може одвијати на два начина: структурном фиксацијом или реверзибилном сорпцијом [37]. Реверзибилна сорпција је највећа на минералима глине богатим калијумом, нарочито на међуслојевима са местима оштећених ивица („frayed edge sites“) глина типа кристалне решетке 2:1 која су доступна само моновалентним катјонима ниске енергије хидратације ( $\text{K}^+$ ,  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Rb}^+$ ) [37]. Сорпција  $^{137}\text{Cs}$  се одвија и на честицама органске материје, али до ретенције долази само ако су оне блиско повезане са минералним честицама земљишта [40, 41]. Способност минерала глине да фиксирају  $^{137}\text{Cs}$  кључно утиче на његову појаву у земљишним растворима, а тиме и на покретљивост и трансфер из земљишта у биљке. Процењује се да је у обрадивом земљишту око 10% укупног  $^{137}\text{Cs}$  садржано у размењивим, 20% у органским, а око 70 % у резидуалним фракцијама земљишта [41].

#### 2.4.3. Антропогени извори уношења радионуклида у земљиште

Вредности концентрација активности варирају у примарним стенама од неколико  $\text{Bq kg}^{-1}$  до неколико  $\text{kBq kg}^{-1}$ , а у земљишту од неколико десетина до неколико стотина  $\text{Bq kg}^{-1}$  (као у случају  $^{40}\text{K}$ ) [1, 2, 16]. Главни допринос јачини апсорбоване дозе у терестријалном окружењу потиче од  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  и вредности концентрација активности ових радионуклида измерене у земљишту у различитим деловима света објављене су у извештају UNSCEAR (2010) [16]. Класификоване су тако да припадају области просечног нивоа основног гама зрачења које потиче из земљишта у интервалу ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 16–110 за  $^{238}\text{U}$ , 17–60 за  $^{226}\text{Ra}$ , 16–64 за  $^{232}\text{Th}$  и 140–850 за  $^{40}\text{K}$  чије средње вредности износе ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 33 за  $^{238}\text{U}$ , 32 за  $^{226}\text{Ra}$ , 45 за  $^{232}\text{Th}$  и 420 за  $^{40}\text{K}$  [16].

У студији Драговић *et al.* (2013), анализирани су профили (0–50 cm) шест главних типова земљишта заступљених на подручју Београда: чернозем, алувијално земљиште, ритска црница, гајњача, смоница и алувијално земљиште оглејано [42]. Иако су се концентрације активности  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  статистички значајно разликовале међу испитиваним типовима земљишта, укупни измерени интервали вредности ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 23–66 за  $^{226}\text{Ra}$ , 28–76 за  $^{232}\text{Th}$  и 450–760 за  $^{40}\text{K}$  били су на нивоу просечног гама зрачења [42]. Мале разлике међу активностима различитих типова земљишта су вероватно узрок томе да концентрације активности природних радионуклида у свету нису класификоване према типу земљишта већ се значајније разлике уочавају у односу на геолошко порекло карактеристично за дату област.

Природно повећани нивои основног гама зрачења могу се наћи у областима у којима је обогаћивање минерала уранијумом и торијумом настало под утицајем дугорочних геохемијских процеса [2, 16]. У Србији се таква подручја могу наћи у централном и југозападном делу на подручју гранитоидних и вулканских комплекса са минерализацијама уранијума [1, 2]. У односу на просечне, много виши нивои активности у земљишту у свету (реда  $10^2$ – $10^4$   $\text{Bq kg}^{-1}$ ) потичу из области повећаних концентрација U као што су фосфатне стене (Бразил, САД), затим U и Th у областима интрузивних стена вулканског порекла (Бразил, Италија, Чешка) и Th садржаног у песку богатом минералом монацитом (Египат, Индија, Кина) [16].

### *Извори NORM*

Земљиште није само извор континуалног излагања јонизујућем зрачењу већ је и медијум посредством кога радионуклиди могу мигрирати у друге компартамне животне средине (атмосфера, подземне воде, седименти, билошке заједнице) [6, 12, 13, 15, 16, 37, 38]. Осим геолошког порекла и процеса који се одвијају у земљишту, антропогене активности могу утицати на нивое природне радиоактивности повећавајући мобилност и доступност природних радионуклида у земљишту [3, 43,44]. Са становишта заштите од јонизујућих зрачења од велике је важности изложеност природним радионуклидима под називом NORM (Naturally Occurring Radioactive Material) који су у животну средину унесени под антропогено

модификованим условима односно под утицајем технолошких процеса који за последицу имају повећање њихових концентрација у животној средини [2, 13, 16, 37, 43, 44]. Неки од најважнијих антропогених извора уношења NORM у животну средину су експлоатација рудника уранијума и неодговарајуће складиштење отпадних продуката; експлоатација фосфатних руда, а затим производња и коришћење фосфатних ђубрива богатих уранијумом и његовим потомцима; експлоатација и сагоревање угља у термоелектранама, као и складиштење пепела као отпадног продукта који садржи знатне количине природних радионуклида [2, 15, 16, 43]. У Табели 2. представљене су концентрације активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту претходно изложеном неком од антропогеног дејства у свету и на подручју Србије.

Поменуто је већ да концентрације активности терестијалних радионуклида зависе од композиције минерала односно природе стена које су учествовале у генези датог земљишта [45]. Природни радионуклиди инкорпорирани у минералној фази земљишта најчешће стварају хомогени образац расподеле у датом профилу земљишта кога карактерише и ненарушена секуларна равнотежа у уранијумовој и торијумовој серији [3, 19]. Евентуални недостатак равнотеже у земљишту најчешће је могуће објаснити различитим физичко–хемијским особинама елемената односно њихових дугоживећих изотопа (подпоглавље 2.1.3). Међутим, уколико то није могуће свако одступање од секуларне равнотеже у природним радиоактивним низовима представља индикацију модификоване природне активности услед антропогеног дејства [15, 44].

У фосфатним стенама, нивои активности природних радионуклида варирају у зависности од њиховог геолошког порекла које може бити седиментно, вулканско или биолошко [2, 16, 43]. Услед таложења уранијума раствореног у морској води током геолошког формирања фосфатних стена, веће концентрације активности  $^{238}\text{U}$  ( $1,0$  до  $5,7 \text{ Bq g}^{-1}$ ) и његових продуката распада јављају се у фосфатним наслагама седиментног порекла у односу на оне вулканског и биолошког порекла [43].

Физичко–хемијско процесуирање фосфатних стена током производње фосфатних ђубрива доводи до стварања два типа споредних производа: фосфогипса и фосфорне киселине. Током овог процеса долази до сепарације природних



радионуклида из фосфатне стене јер се 80–90%  $^{226}\text{Ra}$  концентрише у фосфогипсу, а већина уранијума и торијума у фосфатном ђубриву и фосфорној киселини [44].

Употреба фосфатних ђубрива произведених из природне фосфатне руде зато може довести до редистрибуције уранијума и његових потомака у земљишту, а дугорочна употреба до повећане изложености становништва јонизујућем зрачењу [16, 43, 44]. На пољопривредном земљишту третираном фосфатним ђубривом, обогаћење природним радионуклидима је најчешће забележено у површинским слојевима [46, 47], а примећено је и њихово интензивније усвајање од стране култивисаних биљака [48], али не и у студијама изведеним на тлу Србије [9, 49]. У узорцима различитих минералних ђубрива коришћених на тлу Србије измерене су концентрације активности у интервалу ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 31–2640 за  $^{238}\text{U}$ , 4–452 за  $^{226}\text{Ra}$ , 8–226 за  $^{232}\text{Th}$  и 4–10800 за  $^{40}\text{K}$  [49]. Након њихове примене у земљишту, измерене средње вредности ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 42 за  $^{238}\text{U}$ , 32 за  $^{226}\text{Ra}$ , 45 за  $^{232}\text{Th}$  и 569 за  $^{40}\text{K}$  [49] биле су изнад (осим у случају  $^{226}\text{Ra}$ ) средњих вредности у земљишту из UNSCEAR извештаја [16].

Употреба фосилних горива за производњу енергије у термоелектранама је један од најважнијих извора који доприноси повећаном излагању становништва природној радиоактивности [2, 16, 50]. Фосилна горива садрже радионуклиде природних серија  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  и радионуклида  $^{40}\text{K}$  чији нивои зависе од геолошког порекла фосилне руде и обично су реда величине карактеристичним за земљиште и тог геолошког порекла [16]. У угљу широм света измерене су концентрације активности ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 7–480 за  $^{238}\text{U}$ , 7–97 за  $^{232}\text{Th}$ , и 4–785 за  $^{40}\text{K}$  [16], а у узорцима лигнита из Колубарског басена коришћеног у термоелектранама у Србији одређене су ниже концентрације ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 1–86 за  $^{238}\text{U}$ , 2–119 за  $^{226}\text{Ra}$ , 5–58 за  $^{232}\text{Th}$  и 19–496 за  $^{40}\text{K}$  [51].

Угаљ се састоји од течне, гасовите (волатилне) и чврсте фазе, док матрикс чврсте фазе може бити органског (хуминске киселине) и неорганског порекла (алумосиликатни минерали). У угљу су уранијум и његови продукти распада везани за матрикс органског порекла, док су торијум и његови продукти распада заједно са калијумом везани за матрикс пепела тј. неорганску компоненту угља [50]. Након сагоревања угља у котлу термоелектрана, остаје несагориви остатак, пепео. Шљака или тежа фракција пепела (15–20%) пада на дно котла, а лакша фракција тзв. летећи

пепео (80–85%) креће се навише заједно са димним гасовима, парама испарљивих елеманата и радоном ексхалираним из угља. Летећи пепео већином бива заустављен електрофилтерским преципитаторима, док се незнатна количина ипак ослобађа из димњака у атмосферу [43, 50, 51, 52].

Табела 2. Концентрације активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту изложеном антропогеном дејству у свету и у антропогено модификованом и немодификованом земљишту на подручју Србије.

	$^{238}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$
(Bq kg <sup>-1</sup> )					
Антропогено модификовано земљиште (Свет)					
Турска <sup>1</sup> [54]	–	12–64	20–80	298–964	0,3–48,2
Аргентина <sup>1</sup> [55]	–	23–69	32–50	531–879	–
Тајван <sup>1</sup> [56]	4–46	–	4–65	73–670	–
Сао Паоло <sup>1</sup> [57]	27–107	–	34–156	–	–
Шпанија <sup>2</sup> [58]	19–55	24–79	30–76	200–940	0–85
Мађарска <sup>2</sup> [52]	49–944	16–883	12–43	46–596	0–150
Кина <sup>2</sup> [59]	–	28–49	44–61	640–992	–
Бразил <sup>2</sup> [60]	10–273	15–270	10–59	55–412	–
Грчка <sup>2</sup> [10]	26–129	21–125	25–40	234–412	7–314
Антропогено модификовано земљиште (Србија)					
Градови <sup>3</sup> [61]	15–58	21–51	25–62	167–559	3,7–70
Култивисано <sup>4</sup> [9]	12–87	12–45	22–56	312–783	3,1–29,0
Ђубрено <sup>4</sup> [49]	5–80	10–43	12–71	238–1000	–
Рудник угља <sup>5</sup> [11]	28–44	–	59–71	335–517	–
Рудник урана <sup>6</sup> [62]	31–237	–	6–109	64–977	–
Немодификовано земљиште (Србија)					
Београд [42]	–	23–68	28–76	450–760	8,3–160
Копаоник [63]	–	29–174	32–151	269–1291	4,2–142
Стара планина [62]	13–49	–	19–51	334–885	–
Централна Србија [64]	–	8–45	7–63	84–620	15,5–236
UNSCEAR (2010) [16]	16–110 (33)	17–60 (32)	16–64 (45)	140–850 (420)	–

1–Резидентална подручја, 2–У близини термоелектрана на угаљ, 3–Јагодина, Параћин, Ђуприја, Аранђеловац, Шабац, 4–Војводина, 5–У близини рудника лигнита Колубара 6–У близини напуштеног рудника уранијума Кална

Након сагоревања, обогаћење пепела природним радионуклидима може износити 5 до 10 пута у односу на угаљ у зависности од врсте угља и начина сагоревања [50, 51]. Посматрајући расподелу природних радионуклида међу честицама продуктима сагоревања чије се димензије крећу од неколико милиметра

(шљака), па од 10–их до 100–их делова милиметра (летећи пепео), највеће обогаћење може се приметити на честицама најмањих димензија [50]. При томе, радионуклиди торијум и калијум показују слабо или никакво обогаћење на честицама летећег пепела због њихове хомогене распоређености у матриксу пепела односно неорганској компоненти коришћеног угља.

Са смањењем димензија честица значајан пораст обогаћења примећује се за олово које је у тренутку сагоревања испарљиво, а затим се кондензује на честицама највеће специфичне површине. Честице најмањих димензија се такође значајно обогаћују уранијумом и радијумом, али не тако интензивно као оловом. Дакле, како се димензије честица летећег пепела смањују, може се очекивати да ће се на њима најбрже повећавати концентрације активности  $^{210}\text{Pb}$ , а нешто спорије концентрације  $^{238}\text{U}$  и  $^{226}\text{Ra}$  и истовремено ће концентрације  $^{40}\text{K}$  опадати [50].

Природни радионуклиди се након сагоревања угља могу донекле ослободити у атмосферу или остати у пепелу који затим бива одложен као отпад [43, 44, 53]. Са великих површина депонија пепела, деловањем ветра се честице пепела могу редистрибуирати при чему се сувом и влажном депозицијом односно путем атмосферских падавина и испирањем могу нагомилавати у животној средини. Према томе, природни радионуклиди доспели у атмосферу у гасној или честичној форми могу бити депоновани у земљишту и утицати на промену основног нивоа природне активности [16, 52, 53].

У студији Papp *et al.* (2002), концентрације  $^{238}\text{U}$  и  $^{226}\text{Ra}$  у земљишту су опадале са дубином на многим локацијама у близини термоелектране на угаљ као резултат депозиције летећег пепела. Активности  $^{238}\text{U}$  и  $^{226}\text{Ra}$  у слоју 0–5 cm дубине на подручју оближњег града биле су ~5 пута веће него у дубљим неконтаминираним слојевима и са вредностима од око  $\sim 110 \text{ Bq kg}^{-1}$  изнад природног нивоа [52].

Када се ради о урбаним срединама, емисије након сагоревања фосилних горива, затим емисије издувних гасова, употреба фосфатних ђубрива и одлагање отпада су доприноси антропогеног порекла који могу утицати на промену основног нивоа гама зрачења. Сви ови доприноси се у земљишту током времена интегришу, па се утицај сваког појединачног не може прецизно квантификовати [65]. При томе, у односу на атмосферска таложења, редистрибуцији радионуклида у урбаним

средионама у већој мери доприноси додавање или уклањање слојева земљишта, а нарочито инкорпорирање грађевинског материјала чији ниво природне активности често превазилази основне нивое фона [65, 66]. У различитим грађевинским материјалима пореклом из Србије (цемент, бетон, мермер, летећи пепео) измерене су вредности концентрација активности ( $Bq\ kg^{-1}$ ): 2,05–119 (и  $550\ Bq\ kg^{-1}$  за камени травертин) за  $^{226}Ra$ , 0,179–94 за  $^{232}Th$  и 12,6–832 за  $^{40}K$  [66].

### *Извори произведеног $^{137}Cs$*

Осим уношења и редистрибуције NORM у животној средини, додатни допринос јонизованом зрачењу коме је изложено становништво потиче и из антропогених извора из којих потичу произведени радионуклиди међу којима се издваја  $^{137}Cs$ . Овај изотоп цезијума је у животну средину превасходно доспео као резултат интензивних нуклерних проба у атмосфери (50–их и 60–их година прошлог века) и радиоактивних падавина производа нуклеарне фисије насталих као последица Чернобилског акцидента 1986. и акцидента у Фукушими 2011. године [16]. По контаминацији, цезијум  $^{137}Cs$  се из атмосфере таложи на земљиште механизмима суве и влажне депозиције („fallout“), а затим брзо мигрира тако да је његова висока активност заступљена у површинским слојевима земљишта која са дубином профила брзо експоненцијално опада [67, 68, 69, 70]. Након успостављања првобитне расподеле у горњем слоју земљишта, кретање  $^{137}Cs$  одвија се веома споро због чега активност остаје већином концентрисана у зони кореновог система односно површинском слоју 10 cm до највише 20 cm дубине која се током времена смањује услед радиоактивног распада [40, 67, 69, 70].

Физички процеси транспорта конвекцијом и дифузијом сматрају се доминантним у необрађиваном (немодификованом) земљишту под условом реверзибилне адсорпције цезијума (брзина сорпције једнака је брзини десорпције), при чему се његова вертикална миграција најчешће може моделовати једно–димензионалном једначином конвекције–дифузије у функцији времена [67]. Миграција се разликује у односу на тип земљишта, па је тако за земљишта иловасте текстуре процењено да средње вредности ефективног дифузионог коефицијента ( $D_s$ ) и ефективне конвективне брзине ( $v_s$ ) износе  $0,36\ cm^2/год$  и  $0,24\ cm/год$  у случају цезијума Чернобилског порекла и  $1,64\ cm^2/год$  и  $0,02\ cm/год$  у случају цезијума

пореклом из атмосферских проба које не зависе од времена боравка цезијума у земљишту [67]. У студији Крстић *et al.* (2004) испитане особине немодификованог земљишта (рН, садржај органске материје, калијума и  $\text{CaCO}_3$ ) природне дифернцијације профила су показале да је само садржај органске материје имао значајну корелацију са дифузионим коефицијентом изотопа цезијума [68].

Међутим, ако услов реверзибилне адсорпције није испуњен, недовољно је физичким процесима конвекције и дисперзије описивати вертикалну миграцију јер она зависи од интеракција  $^{137}\text{Cs}$  са матриksom земљишта [40]. У том случају, осим физичко–хемијских својстава земљишта (механички састав, рН, садржај органских материја, минералoшки састав) на мобилност утичу и елементи и процеси биолошког порекла (активност кореновог система, састав и разноврсност земљишних микроорганизама). Разлике примећене у понашању  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту после акцидента у Фукушими и Чернобиљу су боље протумачене када је његова дистрибуција предвиђена на основу особина земљишта (као што су капацитет измене катјона и губитак воде жарењем [71]) или гранулометријског и минералног састава [72]. Утврђено је да се због мањег удела филосиликатних минерала у укупној фракцији глине, фиксирање цезијума у земљишту током времена одвија спорије после акцидента у Фукушими [72] односно сматра се да је услед веће преципитације, виших температура и веће биолошке активности у земљишту природна атенуација флуksа радиоактивног цезијума бржа него након акцидента у Чернобиљу [8].

#### 2.4.4. Трансфер из земљишта у биљке

У области радиоeкологије која се бави проценама ризика излагању јонизујућем зрачењу, данас се већа пажња посвећује проучавању преноса радионуклида на различите биолошке врсте у циљу разумевања механизма усвајања радионуклида испуштених у животну средину од стране биљака и животиња [73, 74, 75]. Такође, биљке које не припадају ланцима исхране често се користе као биоиндикатори и биомонитори различитих промена у животној средини захваљујући својим специфичним морфолошким и физиолошким карактеристикама [12, 15, 34]. Радионуклиди могу бити усвојени из земљишта од стране биљака путем кореновог система или из ваздуха путем надземних делова

биљака (фолијарана депозиција) [34, 73, 75]. Уколико се природни или произведени радионуклиди присутни у земљишту нађу у својој био–доступној форми биће усвојени од стране биљака пасивно, независно од њихове биолошке неопходности [75]. У зависности од својих биолошких особина, биљне врсте имају способност да апсорбују радионуклиде (неесенцијалне елементе) из земљишта користећи механизам „мимикрије“ односно хемијске сличности са другим (есенцијалним) елементима неопходним за раст, исхрану и развој. При томе усвајање кореном је ограничено био–доступном формом радионуклида, а независно је од њиховог укупног садржаја у земљишту [75, 76, 77].

У радиолошким проценама, регулаторне агенције препоручују примену трансфер фактора који служи као квантитативна мера преноса радионуклида од интереса кроз компартмане животне средине [12, 34, 73]. Трансфер фактор (TF) радионуклида из земљишта у биљке се дефинише као однос концентрација активности одређених у узорку биљног ткива и узорку земљишта на бази њихове суве материје [34, 76]. Овај фактор служи да представи очекивани ниво концентрације радиоактивног елемента који ће бити усвојен од стране биљака под условима: *a*) равнотежног стања (трансфер радионуклида из земљишта у биљке је занемарљив у односу на његову укупну количину у земљишту), *б*) доминатног усвајања кореном (у односу на које су усвајање фолијарним и путем адхезије ресуспендованих честица занемарљиви) и *ц*) линеарне зависности концентрације радионуклида у биљном ткиву од оне у земљишту и то са одсечком на у–оси једнаким нули [34, 74, 75, 76].

Неадекватност оваквог приступа је у литератури препозната услед инхерентне варијабилности вредности трансфер фактора неког радионуклида у распону од неколико редова величина [34, 73] и опадајућег тренда вредности TF са повећањем концентрације у супстрату [75, 76, 77], али до сада није доступна алтернатива која ће покривати широк спектар радионуклида значајним у радиолошким проценама. Варијабилност вредности TF би се могла умањити ако би се концепт трансфер фактора редефинисао и у том смислу се предлаже одбацивање линеарног и прихватање претпоставке нелинеарног трансфера [75] или коришћење доступне фракције концентрације активности радионуклида уместо његове укупне концентрације активности у земљишту [73, 74].

### 3. Материјали и методе

У овом раду су испитивања реализована на локацијама које су претходно биле изложене антропогеном дејству које се од стране регулаторних агенција сматра извором модификације основног гама зрачења и које може довести до редистрибуције природних радионуклида у земљишту [16, 44]. Изабрана су три извора: *а)* земљиште третирано фосфатним ђубривима, *б)* земљиште урбаног подручја, *ц)* земљиште у непосредној близини термоелектрана на фосилна горива.

#### 3.1. Истраживано подручје

Истраживано подручје се у овом раду простире на ширем и ужем подручју Београда, главног града Републике Србије. Београд се налази на Балканском полуострву, на ушћу река Саве и Дунав (44°49'14"N, 20°27'44"E; 117 m н.в.). Заступљена клима је умерено континентална, са хладним зимама и топлим летима. Средња годишња температура ваздуха (1981–2010) износи 12,5 °С, а средња годишња количина падавина за исти период износи 690,9 mm. Најинтензивније падавине јављају се у мају и јуну. На основној геолошкој карти Града Београда [78] се издвајају три доминанте картиране јединице: алувијални наноси, лесни плато и терцијарни језерски седименти. Алувијалне равни налазе се око река Саве и Дунав, лесни плато у западном подручју града (издигнути терен општине Земун), док се басен терцијарних језерских седимената налази изнад алувијалних равни Саве и Дунава у јужном и источном делу града. Најзаступљеније картиране земљишне јединице на територији Града Београда [79] су чернозем, флувисол, ритска црница, гајњача, псеудоглеј и колувиум. Флувисоли и ритске црнице се распростиру у долинама река, гајњаче и колувиуми на простору обода Панонске низије, док се велика черноземна зона распростире од Земунa до Фрушке Горе.



Слика 20. Мапа истраживаних локација на подручју града Београда.

### 3.1.1. Сакупљање узорка земљишта

Узорци земљишта су сакупљени са три подручја која су се разликовала према врсти антропогеног деловања (Слика 20). Утицај антропогеног дејства на нивое природне активности испитан је у: а) земљишту третираном фосфатним ђубривима које се налазило на пољопривредном добру „Радмиловац“ својини Пољопривредног факултета Универзитета у Београду; б) земљишту урбаних средина лоцираном у београдским парковима и в) земљишту у непосредној близини термоелектрана на фосилна горива смештеном уз четири термоелектране на угаљ на територији Града Београда или у његовој близини.



*а) Земљиште третирано фосфатним ђубривима.* Локација на којој је ипитиван утицај фосфатних ђубрива био је воћњак површине 2 ha под засадом брескви пољопривредног добра „Радмиловац“ (44° 45' N, 20° 35' E, 135 m н.в.). На овој локацији су, током 1992. године, дубоким орањем (риголовањем) до дубине од 1 m измењене ендоморфолошке карактеристике природног земљишта типа чернозем, при чему је формирано антропогено земљиште типа ригосол. Према међународној WRB класификацији [80] земљиште припада референтној групи *антросола*. Воћњак је у периоду од 12 година био култивисан и третиран фосфатним ђубривима, а затим је уследио период од три године без третмана (обрада, ђубрење и заливање), након којег је приступљено сакупљању узорака.

*Сакупљање узорака земљишта:* Четири профила земљишта су отворена у лето 2008. године. Узорци земљишта су узети из Ар-хоризонта моћности 80 cm на сваких 20 cm дубине (0–20, 20–40, 40–60, 60–80 cm). Три профила земљишта (P<sub>1</sub>, P<sub>2</sub>, P<sub>3</sub>) су отворена у близини кореновог система стабала брескве, а четврти (P<sub>4</sub>) са дела земљишта покривеног травом, ван кореновог система. Укупно је сакупљено 16 узорака.

*б) Земљиште урбаног подручја.* За место узорковања земљишта урбаног подручја изабрана су четири градска парка Београда: Ботаничка башта (BG), Студентски парк (SP), Карађорђево парк (KP) и Земунски парк (ZP). Изабране локације припадају различитим рељефским целинама. Земунски парк лежи на самом крајњем западу песковитог дела алувијалног наноса, где на неких 100 m раздаљине почиње да се издиже лесни плато. Ботаничка башта, Студентски парк и Карађорђево парк се налазе на брежуљкастом подручју терцијарних језерских седимената.

Теренска истраживања у овом раду су показала да је земљиште Ботаничке баште (44° 49' 00" N, 20° 28' 24" E) природно, тј. девичанско земљиште које је задржало изворну диференцијацију профила. Према националном систему класификације [79], земљиште припада типу Рендзина са веома плитким хумусно-акумулативним – А –, моличним хоризонтом (0–10 cm), веома тамно сиве боје. Испод А – хоризонта се налази прелазни хоризонт – АС – моћности 10 cm. Испод прелазног хоризонта се налази карбонатни растресити део матичног супстрата иловасте текстуре (20–50 cm). Земљиште Земунског парка (44° 50' 28" N, 20° 24' 28"

Е) је формирано од иловастих алувијалних седимената богатих калцијум карбонатом који су прошли кроз значајне промене у прошлости, јер је шира површина алувијалне равни била рекултивисана и дренажни системи су смањили ниво подземне воде. Матични супстрат више одговара лесу него алувијалним песковима. Граница између ове две геолошке формације налази се негде на подручју Земунског парка. Студентски парк (44° 49' 09" N, 20° 27' 29" E) и Карађорђево парк (44° 47' 56" N, 20° 27' 54" E) се налазе у централној урбаној зони града Београда. Код земљишта у ова два парка се не могу уочити разлике у морфологији по дубини. У Карађорђево парку, земљиште није било суво током узорковања, али је било јако збијено испод 30 cm дубине. На основу ових запажања, земљиште SP и KP је у неком тренутку променило своје природне карактеристике, због чега би требало да буде препознато као антропогено земљиште.

*Сакупљање узорака земљишта:* У мају 2011. године, земљиште је узорковано на сваких 10 cm дубине почевши од површине терена па до 50 cm дубине на BG, SP и ZP, док је на локацији KP узорковање изведено до дубине од 30 cm због велике збијености земљишта испод те дубине. Земљиште је сакупљено испод крошњи стабала листопадног дрвећа тако што је формиран збирни узорак који се састојао од три под-узорка узетих помоћу бургије. Такође, између крошњи стабала је испитиван површински слој земљишта од 10 cm дубине, при чему је збирни узорак земљишта добијен мешањем три под-узорака сакупљених на истој дубини. Укупно је сакупљено 22 узорка.

в) Земљиште у непосредној близини термоелектрана на угаљ. Земљиште је узорковано у ближој и даљој околини четири термоелектране на угаљ које све припадају Јавном предузећу ЕПС огранак „Термоелектране Никола Тесла“ (ТЕНТ). Блокови А и В (ТЕНТ А и ТЕНТ В) се налазе на територији општине Обреновац на десној обали реке Сава, на удаљености 30–50 км од Београда. Термоелектрана „Колубара“ (ТЕК) у Великим Црљенима и Термоелектрана „Морава“ (ТЕМ) у Свилајнцу смешетене су на обалама река Колубара и Велика Морава. Узорци земљишта су сакупљени из површинских хоризоната алувијалних земљишта који су развијени у алувијалним наносима дуж речних долина на којима су термоелектране смештене. Алувијални наноси се састоје од шљунка и песка

прекривених прашкастим иловачама или глинама и представљају матични материјал за развој *флувисола* на младим алувијалним равнима.

ТЕМ и ТЕК су старије термоелектране (изграђене пре 1970. године) са мањом инсталираном снагом ( $\sim 10^8$  W), док су ТЕНТ А и ТЕНТ В новије термоелектране (грађене током 80–их година) веће снаге ( $\sim 10^9$  W). Термоелектране као гориво користе лигнит са површинских копова Колубаре који садржи ниске нивое концентрација активности природних радионуклида [43, 51]. ТЕНТ А и ТЕНТ В дневно максимално користе  $9 \times 10^7$  kg угља што произведе  $1.7 \times 10^7$  kg пепела дневно. У Обреновцу депоније пепела захватају површине 400 ha and 600 ha, а ТЕК и ТЕМ су мањих површина 77 ha односно 30 ha. Гасови се у атмосферу емитују димњацима вишим од 200 m у саставу новијих термоелектрана и нижим од 130 m у саставу старијих.

Табела 3. ГПС координате најближег и најудаљенијег места узорковања од депоније пепела испитиване термоелектране 2011. године.

Растојање	Најближа тачка		Најудаљенија тачка	
	Географска ширина	Географска дужина	Географска ширина	Географска дужина
ТЕМ	N 44° 13' 15,3"	E 21° 09' 51,1"	N 44° 14' 17,5"	E 21° 12' 34,3"
ТЕК	N 44° 28' 30,1"	E 20° 18' 16,8"	N 44° 27' 22,1"	E 20° 20' 32,1"
ТЕНТ А	N 44° 40' 25,2"	E 20° 09' 0,65"	N 44° 39' 29,1"	E 20° 12' 42"
ТЕНТ В	N 44° 38' 05"	E 20° 02' 19,5"	N 44° 36' 01"	E 20° 06' 41,5"

*Сакупљање узорака земљишта:* На свакој изабраној локацији, сакупљани су површински узорци земљишта дубине 0–5 cm. Маса формираног збирног узорка земљишта на датој локацији износила је 1–1,5 kg. Узорци су сакупљани у периоду од 2011. до 2014. године. Године 2011. само су сакупљани узорци земљишта, а током 2012–2014. уз узорке земљишта сакупљани и одговарајући узорци биљака. Места узорковања су била распоређена тако да буду на мањој (0–2 km) и већој (2–6 km) удаљености од депоније пепела сваке од термоелектрана. ГПС координате најближе и најдаље лоциране тачке представљене су у Табели 3. По 12 узорака земљишта у околини ТЕНТ А и ТЕНТ В, 8 у околини ТЕК и 10 у околини ТЕМ

сакупљено је 2011. године (укупно 42), а у периоду 2012–2014. сакупљено је још укупно 20 узорака земљишта о чему детаљније у следећем поглављу.

### 3.1.2. Сакупљање узорака биљака

Сакупљени биљни материјал обухватио је различите врсте виших биљака. Утицај антропогеног дејства на нивое природне активности испитан је у узорцима: а) лишћа листопадног дрвећа у сезонама пролеће, лето, јесен и б) самоникле вегетације односно трава и лековитих трава у сезони јесен, на крају вегетационог периода.

*Сакупљање узорака лишћа:* Ботаничка башта (BG), Студентски парк (SP) и Карађођев парк (KP), односно три од четири испитивана градска парка, била су место сакупљања биљног материјала који се састојао од узорака лишћа виших биљака. Обухваћене су врсте листопадног дрвећа карактеристичног за градске паркове, а то су *Aesculus hippocastanum* L. (дивљи кестен) и *Tilia* spp. (липа). При томе су узорковане две врсте липе, *Tilia tomentosa* L. и *Tilia cordata* Mill, у зависности од њихове присутности у испитиваним парковима. Узорковање је поновљено сваке године у сезонама пролеће и јесен, на почетку (април/мај) и на крају (септембар/октобар) вегетативног периода у периоду од 2002. до 2009. године. Сакупљање узорака је настављено на исти начин у оквиру садашњег истраживања у периоду од 2010. до 2012. године.

За анализу су у овом раду изабрани узорци лишћа из периода 2002–2005. и 2008–2012. који су сакупљени у укупно 7 наврата током пролећне и 8 током јесење сезоне и који су сматрани репрезентативним за цео период испитивања (2002–2012). У летњој сезони узорци су сакупљени само у јулу 2003–2004. године. На свакој локацији, узорковано је 10 до 15 потпуно развијених листова са свих страна крошње на висини од око 2 m изнад површине земље тако да се коначан збирни узорак састојао од пет под–узорака. Листови су сечени маказама од нерђајућег челика, сакупљани коришћењем полиетиленских рукавица и паковани у полиетиленске кесе.

*Сакупљање узорака траве:* Узорци траве сакупљени су са земљишта у близини термоелектрана на угаљ. Узорци су сакупљени методом случајног узорка јер је на овим локацијама заступљена велика разноврсност спонтане (самоникле)

вегетације па је било немогуће издвојити једну биљну врсту чија би се активност могла пратити. На терену су сакупљане разне врсте трава (најзаступљеније фамилије су *Asteraceae*, *Fabaceae*, *Poaceae*) и лековитих трава (ко што су нана, камилица, кантарион из фамилија *Lamiaceae*, *Asteraceae*, *Hypericaceae* итд.).

Коначно је биљни материјал сакупљен тако да буде формиран један збирни узорак карактеристичан за дату локацију. Изабране су по једна локација у непосредној близини и по једна на већој удаљености од депоније пепела термоелектрана ТЕМ, ТЕК, ТЕНТ А и ТЕНТ Б. У периоду 2012–2013. узорковање је обављено на крају вегетативног периода на исти начин и на истим локацијама чије су ГПС координате дате у Табели 4.

Из техничких разлога је 2014. године узорковање земљишта извршено само на локацијама у близини депоније ТЕК (N 44° 28' 56,2", E 20° 17' 7,1"), Соколово (N 44° 28' 53,5", E 20° 20' 26,1") и у близини депоније ТЕМ (N 44° 13' 20,6", E 21° 09' 26,0") и Црквенац (N 44° 12' 10,2", E 21° 11' 11,0").

Сакупљени биљни материјал чија је маса износила најмање 1 kg пакован је на месту узорковања у пластичне кесе. Уз узорке биљака сакупљени су и одговарајући узорци земљишта. Укупно је сакупљено 20 збирних узорка биљака и 20 одговарајућих узорака земљишта на коме су сакупљене биљке.

Ради постизања значајнијих разлика међу вредностима концентрација активности природних радионуклида које се могу одредити у земљишту, испитивани су и узорци биљака са подлоге која није земљиште већ земљиште–пепео сакупљен са депонија пепела термоелектрана.

Након сагоревања угља у котловима „ТЕ Никола Тесла”, пепео и шљака се мешају са водом у односу 1:10 (у пракси и до 1:20) и хидрауличким путем се транспортују на отворене депоније пепела и шљаке. Одлагање пепела врши се на активној касети, а други део депоније тзв. пасивна касета је у фази привременог мировања. Пасивна касета је у фази мировања ради техничке консолидације и дренажа и тај период траје 6 до 10 година.

На депонији се одлагање пепела врши на активној касети, док пасивна касета настаје таложењем пепела у земљишту на подручју депоније и налази се у фази мировања у периоду од 6 до 10 година. Због неповољних физичко-хемијских карактеристика пепела и начина одлагања пепела на отвореним депонијама, при

сувом и ветровитом времену долази до еолске ерозије пепела која се спречава биолошком рекултивацијом односно формирањем биопокривача и шумског засада.

Табела 4. ГПС координате места узорковања биљног материјала чији је супстрат: земљиште у близини депоније пепела (Земљиште 1), земљиште даље од депоније пепела (Земљиште 2) и пепео пасивне касете депоније пепела (Пепео).

Супстрат	2012		2013	
	Географска ширина	Географска дужина	Географска ширина	Географска дужина
ТЕНТ А				
Земљиште 1	N 44° 40' 24,8 "	E 20° 09' 05,7"	N 44° 40' 25,2"	E 20° 09' 07,1"
Земљиште 2	N 44° 39' 39,4",	E 20° 08' 04,8"	N 44° 39' 39,2"	E 20° 08' 04,3"
Пепео	N 44° 41' 30"	E 20° 09' 0,65"	N 44° 42' 06,4"	E 20° 08' 58,7"
ТЕНТ В				
Земљиште 1	N 44° 38' 23,1"	E 20° 02' 40,7"	N 44° 38' 31,8"	E 20° 02' 53,9"
Земљиште 2	N 44° 38' 35,6"	E 19° 59' 26,3"	N 44° 38' 22,2"	E 19° 59' 09,2"
Пепео	N 44° 38' 5,7"	E 20° 03' 49"	N 44° 38' 11,2"	E 20° 03' 49,7"
ТЕК				
Земљиште 1	N 44° 29' 2,8"	E 20° 19' 10"	N 44° 28' 41,9"	E 20° 19' 11"
Земљиште 2	N 44° 29' 1,5"	E 20° 19' 43,5"	N 44° 29' 1,6"	E 20° 19' 45,8"
Пепео	N 44° 28' 56,1"	E 20° 18' 11,6"	N 44° 29' 01,1"	E 20° 19' 07,0"
ТЕМ				
Земљиште 1	N 44° 13' 13,2"	E 21° 09' 54,2"	N 44° 13' 13,7"	E 21° 09' 53,3"
Земљиште 2	N 44° 12' 6,3"	E 21° 11' 10,1"	N 44° 12' 6,1"	E 21° 11' 10,2"
Пепео	N 44° 13' 6,3"	E 21° 10' 1,6"	N 44° 13' 01,8"	E 21° 09' 51,7"

Узорци биљака и пепела сакупљани су са насипа активне, насипа пасивне касете и равног дела пасивне касете депонија термолектрана ТЕМ, ТЕК, ТЕНТ А и ТЕНТ Б. Две године заредом (2012–2013) на крају вегетативног периода узорковање је обављено на исти начин на истим локацијама.

Сакупљени биљни материјал се састојао од различитих врста трава и лековитих трава од којих је формиран један збирни узорак карактеристичан за дату локацију. Укупно је сакупљено 24 збирна узорка биљака и 24 одговарајућих узорака земљишта–пепела на коме су успевале биљке. Међутим, у овом раду су за анализу изабрани само локације са равном дела пасивне касете депонија пепела јер су особине узорака земљишта–пепела биле најсличније особинама земљишта као и услови под којима су успевале биљке. ГПС координате укупно 8 локација смештеним на равном делу пасивне касете депонија пепела дате су у Табели 4.

### 3.2. Припрема узорака

*Припрема узорака земљишта.* Сакупљени узорци земљишта су у лабораторији сушени на собној температури осим узорака сакупљених у близини термоелектрана који су сушени у сушници на температури 105 °С до константне масе. Пре сушења су из земљишног узорка одстрањене све механичке нечистоће, а структурни агрегати већи од 20 mm су уситњени на величину агрегата од 10–20 mm.

Након сушења, узорци су уситњавани помоћу авана и тучка и просејавани кроз сито промера 2 mm тако да је маса узорка коришћеног за анализу износила нешто више од 0,5 kg. Део овако припремљеног узорка коришћен је за испитивање физичко–хемијских особина земљишта.

Остатак припремљеног узорка пакован је у пластичне судове у Маринели геометрији запремине 450 cm<sup>3</sup> ради гамаспектрометријске анализе. Узорци су затопљени пчелињим воском и тако остављени 4 недеље ради достизања секуларане радиоактивне равнотеже у природним нивовима.

*Припрема узорака пепела.* Процедура припреме узорака земљишта–пепела је иста као и у случају узорака земљишта. За мерење је изабрана геометрија Маринели посуде запремине 450 cm<sup>3</sup>.

*Припрема узорака лишћа.* Сваки збирни узорак лишћа сушен је на собној температури или у сушници на температури 105 °С. Сушени узорци су затим минерализовани у пећи за жарење на температури 450 °С користећи метод сувог спаљивања. Тако припремљени узорци су паковани у пластичне цилиндричне

посуде чија је запремина  $125 \text{ cm}^3$  које представљају изабрану геометрију мерења биљног материјала.

Да би се метод гамаспектрометријске анализе могао применити, узорци биљног материјала су затопљени пчелињим воском и тако остављени 4 недеље ради достизања радиоактивне равнотеже. Испирање листова ради одстрањивања честица везаних адхезијом није укључено у припрему узорака јер се сматра да је активност природних радионуклида која овом путањом доспева до листова узоркованих на висини од око 2 m много мања у односу на путању кореном, при чему је истоременео укупна активност  $^{210}\text{Pb}$  сачувана.

*Припрема узорака траве.* Узорци различитих врста трава су у лабораторији сушени на собној температури или у сушници на температури  $105 \text{ }^\circ\text{C}$  до константне масе.

С обзиром на велику различитост биљних врста на местима узорковања, узорци биљака су припремани као интегрални. Прање узорака биљака није укључено у припрему. У случају узорака траве, честице земљишта везане адхезијом чије су димензије најчешће  $<2 \text{ }\mu\text{m}$  сматрају се значајном путањом којом радионуклиди могу доспети до биљних органа, међутим и ригирозно прање узорака не обезбеђује потпуно одстрањивање ових честица.

Биљни органи (корен, стабло, лист) нису разврставани већ је формиран један интегрални биљни узорак карактеристичан за дату локацију. Тиме је постигнута и довољно велика маса почетног узорка, будући да је биљне културе неопходно концентрисати пре мерења како би се смањила мерна несигурност и вредност минималне детектабилне концентрације, а повећала ефикасност детекције.

Узорци су концентрисани минерализацијом у пећи за жарење на температури  $450 \text{ }^\circ\text{C}$  користећи метод сувог спаљивања. У случају узорака траве, геометрија мерења била је пластична цилиндрична посуда запремине  $125 \text{ cm}^3$  у којој је успостављена радиоактивна равнотежа.



### 3.3. Методе мерења

#### 3.3.1. Гамаспектрометријска анализа

У Табели 5. наведене су карактеристике HPGe детектора ( $D_1$ ,  $D_2$ ,  $D_3$ ) коришћених за мерење прикупљених узорака у Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине Института за нуклеарне науке „Винча“.

Табела 5. Карактеристике коришћених детектора

Детектор		$D_1$	$D_2$	$D_3$
Релативна ефикасност		20 % (сертификат)	18 % (сертификат)	50% (сертификат)
Резолуција	на 122 keV	0,850 keV (сертификат)	0,759 keV (експериментално)	1,00 keV (експериментално)
	на 1332 keV	1,8 keV (сертификат)	1,69 keV (експериментално)	1,9 keV (експериментално)
Однос Пик/Комптон		51:1 (сертификат)	56.1:1 (експериментално)	65:1 (сертификат)
Пречник кристала		49,5 mm	48 mm	65 mm
Дужина кристала		56,5 mm	48,5 mm	67 mm
Удаљеност кристала од капе детектора		5,5 mm	5 mm	5 mm
Материјал улазног прозора		Al	Be	Al
Радни напон		(+) 4500 V	(-) 3000 V	(+) 3000 V
Тип детектора		<i>p</i> -типа	<i>n</i> -типа	<i>p</i> -типа

Хлађење детектора је постигнуто ураћањем шипке на коју је монтирана глава детектора у криостат са течним азотом. Узорци се постављају директно на капу детектора, коаксијално са детекторским кристалом осим у случају детектора  $D_2$ , где се узорак поставља на носач да би се берилијумски прозор детектора заштитио. Заштита детектора израђена је на постољу од гвожђа и састоји се од спољашње конструкције израђене од олова (10cm×10cm×10cm) чији су унутрашњи зидови израђени од гвожђа и кадмијума ( $D_1$ ) или бакра и плексигласа ( $D_2$  и  $D_3$ ).

### 3.3.1.1. Калибрација детектора

Енергетска калибрација детектора извршена је различитим сетовима стандарда у зависности од периода мерења. До 2011. године коришћени су сертифицивани радиоактивни стандарди у тачкастој геометрији који су се састојали од радионуклида  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$  и  $^{137}\text{Cs}$  (Coffret d'etalon ECGS-2, Sacle, France) чија је активност била  $10^4$  Вq на дан 25.11.1977. године. Након 2011. за енергетску калибрацију су коришћени сертифицивани радиоактивни стандарди у тачкастој геометрији које издаје Чешки Метролошки Институт и који садрже  $^{133}\text{Ba}$  активности 271,5 кВq на дан 1.8.2011. (9031-OL-318/11, EFS) и  $^{60}\text{Co}$  активности 732,9 кВq на дан 1.8.2011. (9031-OL-317/11, EFS).

У Лабораторији за заштиту од зрачења и заштиту животне средине Института за нуклеарне науке „Винча“, калибрација ефикасности HPGe детектора у свим мерењима је извршена применом експерименталног метода калибрације. За калибрацију детектора су коришћени сертифицивани радиоактивни стандарди или референтни радиоактивни материјали у зависности од врсте мерених узорака.

Када се ради о мерењу узорака земљишта, калибрација детектора је изведена у геометрији Маринели посуде запремине  $450\text{ cm}^3$ . Коришћењем сертифициваних радиоактивних стандарда матрикса силиконска смола у истој геометрији Маринели посуде ( $450\text{ cm}^3$ ) произвођача Czech Metrology Institute, Praha, који садржи радионуклиде  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , типа 9031-OL-208/08 чија активност је износила 40,624 кВq на дан 15.04.2008. калибрисани су детектори D<sub>1</sub> и D<sub>2</sub> током 2008–2009.

У каснијем периоду, 2011–2014, детектори D<sub>1</sub>, D<sub>2</sub> и D<sub>3</sub> се калибришу сертифициваним радиоактивним стандардом типа 9031-OL-420/12 активности 41,48 кВq на дан 31.08.2012. године. При мерењу узорака земљишта–пепела током 2012–2013 исти сертифицивани радиоактивни стандарди коришћени су за калибрацију.

Када се ради о узорцима биљног материјала, у периоду 2002–2011. коришћен је референтни радиоактивни материјал IAEA-0373 матрикса минерализована трава који је садржао  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  и  $^{90}\text{Sr}$ , активности 15 кВq/kg на дан 31.12.1991.

У периоду 2012–2014, у Лабораторији се користе референтни радиоактивни материјали који су израђени од сертификованог радиоактивног стандарда у течном стању (ампула) 9031–OL–427/12, ERX (Чешки Метролошки Институт) који садржи радионуклиде  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{210}\text{Pb}$  и чија укупна активност износи 72,4 kBq на референтни датум 31.08.2012.

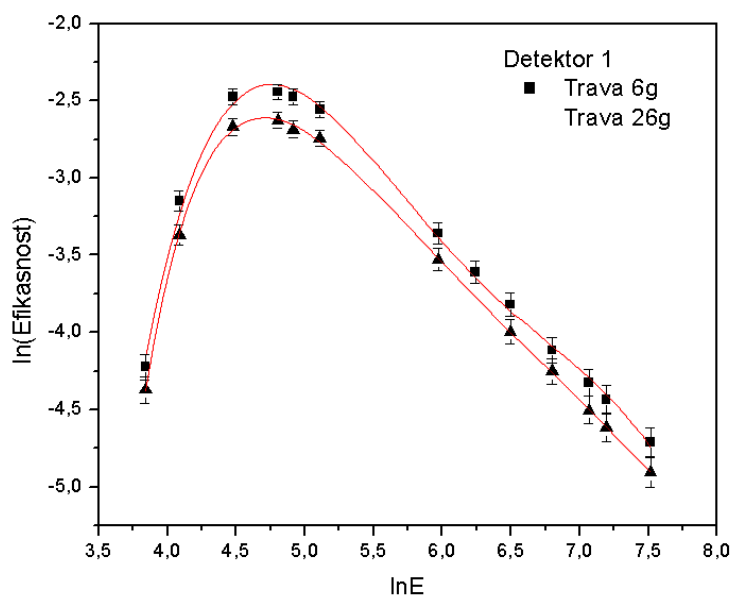
За мерење биљних узорка су коришћени референтни материјали матрикса минерализоване траве у геометрији цилиндричне посуде запремине  $125\text{ cm}^3$  чије су масе износиле  $m = 6,03\text{ g}$  и  $m = 26,07\text{ g}$ , а примена зависила од масе мереног узорка. За мерење узорка веће масе коришћен је и референтни материјал матрикса активног угља у геометрији Маринели посуде запремине  $450\text{ cm}^3$ .

Референтни материјали и сертификовани стандарди у различитим геометријама коришћени за калибрацију ефикасности детектора ( $D_1$ ,  $D_2$ ,  $D_3$ ) мерени су 60000 s. Спектар фона је сниман непосредно пре или после снимања спектра стандарда. Снимање и анализа спектра извршена је коришћењем софтверског пакета GENIE 2000, прозвођача Canberra.

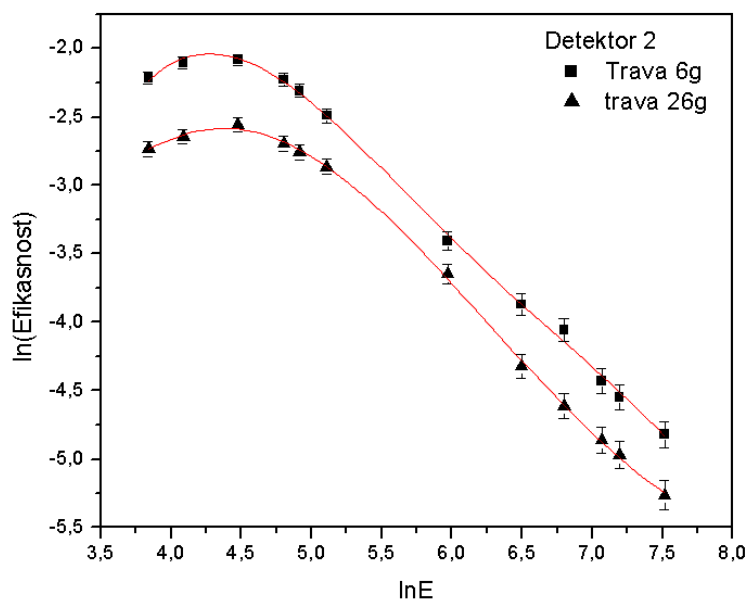
Експериментална ефикасност детекције је одређена на основу једначине:

$$\varepsilon = \frac{N \cdot C(E)}{A_0 \cdot p_\gamma \cdot t} \quad (43)$$

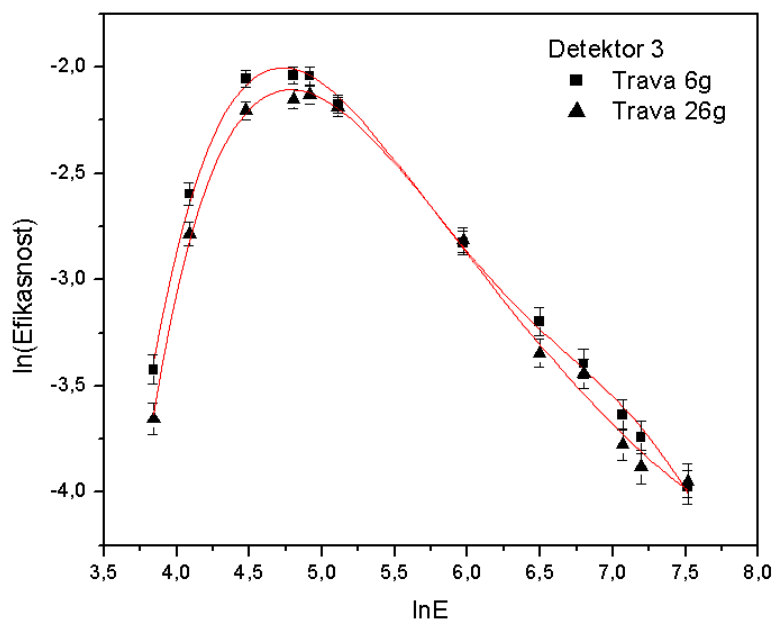
где је  $N$  број импулса испод пика тоталне апсорпције одређене енергије након одузимања спектра фона,  $C(E)$  корекциони фактор за коинцидентно сумирање,  $A_0$  активност радионуклида калибрационог извора,  $p_\gamma$  вероватноћа прелаза фотона дате енергије  $E$ , а  $t$  време мерења. Пошто сви радионуклиди у саставу стандарда имају времена полураспада која су више редова величине дужа од времена мерења, није било корекција на распад радионуклида у току мерења. Већина радионуклида у калибрационим изворима емитује један гама фотон по распаду, па су корекције на коинциденцтно сумирање биле потребне само за  $^{60}\text{Co}$  и  $^{88}\text{Y}$  и одређене су у зависности од геометрије мерења коришћењем програма EFFTRAN и MEFFTRAN, доступним у Лабораторији. Корекције су примењиване након 2008. године.



Слика 21а. Калибрационе криве и експерименталне вредности ефикасности детектора D<sub>1</sub> у случају матрикса траве масе 6 g и 26 g у цилиндричној геометрији.



Слика 21б. Калибрационе криве и експерименталне вредности ефикасности детектора D<sub>2</sub> у случају матрикса траве масе 6 g и 26 g у цилиндричној геометрији.



Слика 21ц. Калибрационе криве и експерименталне вредности ефикасности детектора D<sub>3</sub> у случају матрикса траве масе 6 g и 26 g у цилиндричној геометрији.

Релативна мерна несигурност ефикасности одређена је на основу једначине (44):

$$u_r(\varepsilon) = \sqrt{(\delta A)^2 + (\delta N)^2 + (\delta C)^2 + (\delta M)^2} \quad (44)$$

која зависи од релативне мерне несигурности активности  $\delta A$  датој сертификатом од стране произвођача, релативне мерне несигурности  $\delta N$  одређивања броја импулса испод пика тоталне апсорпције, несигурности коефицијента за корекцију на коинцидентно сумирање  $\delta C$  (2–3% у зависности од геометрије мерења), а ако се детектор калибрише референтним радиоактивним материјалом додаје се и члан  $\delta M$  односно несигурност која настаје у процесу израде истог [30].

Пошто су коришћени калибрациони матријали по геометрији, хемијском саставу и густини у највећој мери слични меренима узорцима (земљиште, пепео, биљни материјал), након њиховог мерења одређене су калибрационе криве ефикасности за сваки детектор и сваку врсту узорака. Криве ефикасности имају исти функционални облик, а вредности параметара одражавају разлике међу детекторима, матриксама и геометријама калибрационих материјала [30].

Експерименталне вредности ефикасности фитоване су функцијом датом једначином (25). У једначинама (45) и (46) могу се посматрати разлике међу

нумеричким коефицијентима  $a_i$  калибрационих кривих добијених фитом на примеру детектора  $D_1$  и  $D_2$  у случају истог сертификованог радиоактивног стандарда 9031-OL-208/08, респективно:

$$E_{ff}(\%) = \frac{1}{100} \cdot e^{(96,732 \cdot \ln(E) - 23,035 \cdot (\ln E)^2 + 2,393 \cdot (\ln E)^3 - 0,092 \cdot (\ln E)^4 - 147,581)} \quad (45)$$

$$E_{ff}(\%) = \frac{1}{100} \cdot e^{(49,848 \cdot \ln(E) - 12,408 \cdot (\ln E)^2 + 1,339 \cdot (\ln E)^3 - 0,054 \cdot (\ln E)^4 - 71,294)} \quad (46)$$

Калибрационе криве ефикасности  $\ln \varepsilon = f(\ln E)$  детектора  $D_1$ ,  $D_2$  и  $D_3$  у случају референтних радиоактивних материјала матрикса траве масе  $m = 6,03$  g и  $m = 26,07$  g у цилиндричној геометрији запремине  $125 \text{ cm}^3$  графички су приказане на Слици 21 ( $a$ ,  $b$ ,  $c$ ). Може се приметити да детектори  $D_1$  и  $D_3$  ( $p$ -типа) имају стрмији нагиб и мању ефикасност у нискоенергетском делу спектра и максимум на енергији 130–150 keV, док детектор  $D_2$  ( $n$ -типа) са берилијумским прозором има значајно већу ефикасност у нискоенергетском делу [30].

### 3.3.1.2. Одређивање активности

Концентрација активности радионуклида  $A_c$  ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ) у испитиваним узорцима одређена је на основу једначине (48):

$$A_c = \frac{N}{\varepsilon \cdot t \cdot p_\gamma \cdot m} \quad (47)$$

где је  $N$  – површина испод врха тоталне апсорпције у спектру узорка након одузетог спектра фона,  $\varepsilon$  – ефикасност детектора на датој енергији,  $t$  – време снимања узорка,  $p_\gamma$  – вероватноћа прелаза фотона гама-зрака дате енергије,  $m$  – маса узорка. Време снимања спектра узорка било је у интервалу 60000 s до 234000 s. Спектар фона је сниман непосредно пре или после снимања спектра узорка. Спектар је анализиран коришћењем софтверског пакета GENIE 2000.

Мерна несигурност концентрације активности  $u(A_c)$  зависи од два типа неодређености: случајне односно мерне несигурности типа А (мерна несигурност одређивања броја импулса  $N$ ) и систематске односно мерне несигурности типа В (мерне несигурности одређивања времена мерења  $t$ , вероватноће прелаза  $p_\gamma$ , масе  $m$ , ефикасности  $\varepsilon$ ). Релативна мерна несигурност концентрације активности се онда одређује из израза (48):

$$u_r(Ac) = \sqrt{(\delta N)^2 + (\delta t)^2 + (\delta P_\gamma)^2 + (\delta m)^2 + (\delta \varepsilon)^2 + (\delta n)^2} \quad (48)$$

где је укључен и члан  $\delta n$  који представља удео у мерној несигурности која настаје услед фитовања (~1%) и некоректности приликом калибрације (~1%). У овом раду концентрација активности је изражена проширеном мерном несигурношћу са фактором проширења  $k = 2$  што одговара нивоу поверења 95,4% ( $2\sigma$ ).

При мерењу се на нивоу поверења  $\alpha = 5\%$  одређује  $L_d$ -доња граница детекције, а на основу ње вредност  $MDC$ -минимална детектабилна концентрација активности:

$$L_d = 2,71 + 4,65\sqrt{N_b} \quad \Rightarrow \quad MDC = \frac{L_d}{\varepsilon \cdot t \cdot p_\gamma \cdot m} \quad (49)$$

Корекције концентрација активности које је било потребно размотрити односиле су се на корекције на ефекте самоатенуације у матриксу мереног узорка. Будући да се матрикс и густина калибрационих извора и мерених узорака не разликују, а након 2012. године садрже радионуклиде  $^{210}\text{Pb}$  (46,5 keV),  $^{241}\text{Am}$  (59,5 keV) и  $^{109}\text{Cd}$  (88 keV) који покривају нискоенергетски интервал (40–100 keV) у коме се ефикасност калибрише, корекције на саматенуацију у случају одређивања активности нису потребне ( $K_{sa} = 1$ ). Тачност калибрације је потврђена применом програмског пакета GEANT 4 [30] и мерењем референтних материјала у међулабораторијским интеркомпарацијама и тестовима као што је валидност резултата мерења узорка IAEA-477 маховина-земљиште у цилиндричној геометрији добијеног у оквиру интеркомпарације IAEA-CU-2009-03. У току мерења, густине матрикса мерених узорака нису се разликовале више од 30% од густине калибрационог стандарда, због чега ефикасност није било потребно кориговати на густину [81].

### 3.3.1.3. Одређивање активности у интегралним узорцима лишћа

Услед проблема метролошке природе, постоји врло мало података о нивоима природних радионуклида у биљном материјалу под условима нормалног нивоа фона [12, 16]. Узрок томе је веома низак ниво активности природних радионуклида у узорцима биљака сакупљених у условима нормалног основног

зрачења, па се као резултат добијају вредности активности мање од минималне детектабилне концентрације активности ( $m_{dc}$ ) која се инструментом може запазити.

С обзиром на то да се ефикасност детекције ниског нивоа гама-зрачења може побољшати повећањем масе мерених узорака, то је у овом истраживању и учињено. Након вишегодишњег сакупљања узорака (2002–2012) исте врсте биљног материјала (лишће листопадног дрвећа) на истим локацијама, повећање масе је постигнуто спајањем појединачних узорака из појединачних година.

Узорци су спојени тако да је добијен по један интегрални узорак који је био репрезентативан за дату сезону (пролеће, лето, јесен), врсту (кестен, липа) и парк (BG, SP, KP) у целом периоду испитивања (2002–2012). Укупне масе спојених минерализованих узорака лишћа након спајања кретале су се у интервалу 16–24 g, затим 32–45 g и 27–104 g за сезону пролеће, лето и јесен, респективно.

Активност суве материје лишћа интегралног узорка одређена је помоћу фактора концентрисања  $F_c$  који је израчунат на основу познате концентрације активности дугоживећег радионуклида  $^{40}\text{K}$  ( $t_{1/2}=1,28\cdot 10^9$  god) пре и после спајања појединачних узорака из израза (50) :

$$F_c = \frac{A'_{int} \cdot m'_{int}}{\sum_{i=1}^n A_i^0 \cdot m_i^0} \quad (50)$$

где су  $A'_{int}$  и  $m'_{int}$  концентрација активности  $^{40}\text{K}$  ( $\text{Bq kg}^{-1}$  масе пепела) и маса интегралног (минерализованог) узорка, а  $A_i^0$  и  $m_i^0$  концентрација активности  $^{40}\text{K}$  ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) и маса суве материје лишћа појединачних узорака од којих се интегрални узорак састојао. У зависности од сезоне, број  $n$  је имао вредност 2, 7 или 8. У овом истраживању активност природних радионуклида у узорцима траве најчешће је била изнад  $m_{dc}$  вредности, за разлику од активности узорака лишћа.

#### 3.3.1.4. Трансфер фактор

Трансфер фактор (TF) радионуклида из земљишта у биљке се дефинише као однос концентрација активности одређених у узорку биљног ткива  $A_{CB}$  и узорку земљишта  $A_{CZ}$  на бази њихове суве материје [34]:

$$TF = \frac{A_{CB} \left( \frac{\text{Bq}}{\text{kg}} \text{ суве масе} \right)}{A_{CZ} \left( \frac{\text{Bq}}{\text{kg}} \text{ суве масе} \right)} \quad (51)$$



Да би се претпоставка линеарности између концентрација активности природних радионуклида одређених у узорку биљног ткива и узорку земљишта могла испитати [74, 77], у општем случају се може поћи од претпоставке да је ова веза нелинеарна:

$$A_{CB} = F_v \cdot A_{CZ}^k \quad (52)$$

где су  $F_v$  и  $k$  експериментално одређене константе ( $0 < k < 1$ ). Ако се претходни израз логаритмује:

$$\log A_{CB} = \log F_v + k \cdot \log A_{CZ} \quad (53)$$

онда претпоставка линеарности важи ако је  $k = 1$ . Такође, следи да је за  $k = 1$ :

$$TF = \frac{A_{CB}}{A_{CZ}} \Rightarrow TF = F_v \cdot A_{CZ}^{k-1} \Rightarrow TF = F_v \quad (54)$$

што значи да је трансфер фактор (TF) једнак фактору концентрисања ( $F_v$ ) који онда не зависи од концентрације активности радионуклида у земљишту у испитиваном интервалу вредности.

### 3.3.2. Одређивање физичко–хемијских особина земљишта

У лабораторији су испитиване следеће физичко–хемијске особине земљишта:

- механички састав земљишта, са припремом узорка Е варијантом пирофосфатне методе, комбинацијом просејавања и пипетирања [82]. Механички састав земљишта обухватао је одређивање следећих механичких фракција : крупан песак (2000–200  $\mu\text{m}$ ), ситан песак (200–50  $\mu\text{m}$ ), крупан прах (50–10  $\mu\text{m}$ ), фини прах (10–2  $\mu\text{m}$ ) и глина (<2  $\mu\text{m}$ );
- активна киселост земљишта, рН у  $\text{H}_2\text{O}$  (1:2,5), потенциометријски са стакленом електродом [82];
- разменљива киселост, рН у 1М КСл (1:2,5), потенциометријски са стакленом електродом [82];
- садржај калцијум–карбоната волуметријском методом са Шајблеровим калциметром [83] на основу запремине ослобођеног угљен–диоксида;
- садржај хумуса индиректно дихроматном методом Тјурина у модификацији Симакова [84]. Методом се добија садржај органског угљеника који се множењем са коефицијентом 1,724 преводи у садржај хумуса.

## 3.4. Анализа резултата мерења

### 3.4.1. Статистичка анализа

Скупови мерених вредности описани су изабраним дескриптивним статистичким параметрима. Главна дескриптивна квантитативна вредност изведена из података посматраног узорка величине  $n$  је средња вредност и представља аритметичку средину узорка:

$$\bar{x} = \frac{\sum_{i=1}^n x_i}{n} \quad (55)$$

Стандардна девијација  $\sigma$  односно квадратни корен варијансе узорка чији је број елемента  $n$  коришћена је као мера расипања (дисперзије) око средње вредности:

$$\sigma = \sqrt{s^2} = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}}{n - 1} \quad (56)$$

где је  $s^2$  варијанса узорка, а  $(x_i - \bar{x})^2$  квадрат одступања (девијације) сваке вредности у посматраном узорку од средње вредности. Коефицијент варијације узорка одређен је као однос вредности стандарне девијације и средње вредности података у узорку:

$$Cvar = \frac{\sigma}{\bar{x}} \quad (57)$$

Коефицијент асиметричности  $G_1$  и коефицијент спљоштености  $G_2$  на посматраном узорку величине  $n$  одређен је као мера степена асиметричности или спљоштености (заобљености) у односу на нормалну дистрибуцију. Уколико је њихова вредност добијена између вредности  $-2$  и  $+2$ , сматра се да узорак долази из нормалне дистрибуције. Коефицијент асиметричности  $G_1$  на узорку величине  $n$  одређен је из израза (59):

$$G_1 = \frac{\sqrt{n(n-1)}}{n-2} \cdot \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^3}{\left(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2\right)^{3/2}} \quad (58)$$

а, коефицијент спљоштености  $G_2$  из израза (60):

$$G_2 = \frac{n-1}{(n-2)(n-3)} \cdot \frac{(n+1) \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^4}{\left(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2\right)^2} + 6 \quad (59)$$

Да би се испитала дистрибуција узорка мерених вредности од  $n$  елементарних извршено је тестирање којим се оцењује да ли посматрани подаци потичу из нормалне расподеле користећи Шапиро–Вилков (Shapiro–Wilk) тест нормалности. За проверу да ли узорак има нормалну расподелу користи се  $W$  тест статистика:

$$W = \frac{\left(\sum_{i=1}^n a_i x_{(i)}\right)^2}{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (60)$$

где коефицијенти  $a_i$  зависе од вектора очекиваних вредности статистика поретка случајног узорка из нормалне расподеле и од коваријационе матрице ових статистика поретка. Тестира се нулта хипотеза ( $H_0$ ) да узорак потиче из нормалне расподеле, а као резултат  $W$  статистика може да узима вредности између 0 и 1. За мале вредности, мање од критичне вредности  $c$ , тј.  $W \leq c$  на изабраном нивоу значајности (најчешће  $\alpha=0,05$ ) нулта хипотеза се одбацује тј. сматра се да подаци не одговарају нормалној расподели.

Једнофакторска анализа варијансе (One–way ANOVA) користи  $F$ –сататистику да упоређује односе варијансе између испитиваних група, при чему се као резултат добија Фишеров варијансни количник. Укупне варијације између група које се пореде састоје се од варијација које су последица утицаја фактора који се испитује (варијације између група) и варијација које имају последицу у самом узорку (варијације унутар група). Укупна варијација мери се општом дисперзијом  $C_y$ , која представља збир квадрата одступања сваког податка од аритметичке средине свих података у анализи. Пошто се варијације између група процењују факторском дисперзијом  $C_x$  и варијансом  $SD_x^2$ , а варијације унутар група резидуалном дисперзијом  $C_z$  и варијансом  $SD_z^2$ , онда се Фишеров варијансни количник (или  $F$ –однос) може изразити као:

$$F = \frac{\sum_{i=1}^K n_i (\bar{x}_i - \bar{x})^2 / (K - 1)}{\sum_{i,j=1}^n (x_{ij} - \bar{x}_i)^2 / (N - K)} \quad (61)$$

где је  $x_i$  аритметичка средина групе  $i$ ,  $n_i$  је број података у групи  $i$ ,  $\bar{x}$  је аритметичка средина свих података у анализи,  $K$  је број група,  $x_{ij}$  је  $j$ –та вредност у  $i$ –тој групи, и  $N$  је укупни број података. Тестира се нулта хипотеза ( $H_0$ ) и добијена  $F$ –вредност

се упоређује са критичном вредношћу, па уколико је  $F \geq c$ , нулта хипотеза се одбацује на нивоу ризика мањим од 5% ( $p < 0,05$ ), тј. може се прихватити да се средње вредности између испитиваних група значајно разликују. Пре сваке анализе је тестирана је хипотеза да испитиване групе података испуњавају услов нормалности, као и хомогености варијансе користећи Левенов тест.

Корелацијом и регресијом испитана је међусобна повезаност две или више променљивих (мерених) величина. На узорку величине  $n$  који се састојао од парова  $\{(x_1, y_1), \dots, (x_n, y_n)\}$  рачунат је Пирсонов коефицијент корелације  $r$  (тј.  $r_{xy}$ ) који зависи од коваријансе и стандардне девијације варијабли  $x$  и  $y$  и дефинише се као:

$$r_{xy} = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \sqrt{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}} \quad (62)$$

Коефицијент корелације је симетричан и процењује колико су промене једне величине праћене променама друге. Коефицијент је мера линеарне корелације, па може имати позитиван и негативан смер и степен јачине између  $-1$  и  $1$ . Квадрат вредности  $r^2$  једнак је коефицијенту детерминације  $R^2$  и представља пропорцију заједничких варијација две променљиве. У овом раду су разматрани статистички значајни коефицијенти корелације на нивоу поверења 95% ( $\alpha = 0,05$ ). Коефицијенти корелације који нису били статистички значајни нису представљени.

### 3.4.2. Вишеструка линеарна регресија

Вишеструка линеарна регресија је тип регресионог модела којим се омогућава предвиђање једне појаве (зависно променљива или функција одговора) на основу сазнања о другим појавама (две или више независно променљивих). Да би резултат вишеструке линеарне регресије био репрезентативан треба да буду задовољени услови [85]:

- а) скупови података независно променљивих долазе из нормалне дистрибуције и немају нетипичних тачака („outliers“),
- б) између два или више параметра у регресији нема мултиколинеарности и сингуларности,
- ц) резидуали испуњавају услове независности, нормалности, линеарности и хомогености варијансе.

Модел вишеструке линеарне регресије са  $k$  независно променљивих  $x_1, x_2, \dots, x_k$  и зависно променљивом  $y$  може се представити као:

$$y = \beta_0 + \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \dots + \beta_k x_k + \epsilon \quad (63)$$

где су  $\beta_i, i = 0, 1, \dots, k$  непознати коефицијенти регресије које треба одредити, а  $\epsilon$  резидуални члан модела који представља грешку предвиђања (разлика између стварне и предвиђене вредности зависно променљиве  $y$ ). Да би се вишеструка линеарна регресија могла испитати, предпоставља се да постоји  $n$  података са  $k+1$  променљивих:

$$y_i = \beta_0 + \beta_1 x_{i1} + \beta_2 x_{i2} + \dots + \beta_k x_{ik} + \epsilon_i, \quad i = 0, 1, \dots, n \quad (64)$$

при чему је потребно оценити коефицијенте  $\beta_i, i = 0, 1, \dots, k$  тако да резидуали буду најмањи могући:

$$\sum_{i=1}^n e_i^2 = \sum_{i=1}^n \left( y_i - \beta_0 - \sum_{j=1}^k \beta_j x_{ij} \right)^2 \quad (65)$$

За ову оцену може се користити метод најмањих квадрата. Да би сума квадрата разлике зависног фактора и његове очекиване вредности за сваки елемент била што мања, потребно је наћи минимум суме  $\sum_{i=1}^n e_i^2$  који се може одредити диференцирањем суме (21) по сваком коефицијенту  $\beta_i, i = 0, 1, \dots, k$  и изједначавањем са 0. Ако се модел вишеструке линеарне регресије представи у матричном запису:

$$\mathbf{y} = \mathbf{X}\boldsymbol{\beta} + \boldsymbol{\epsilon} \quad (66)$$

где су:  $\mathbf{y} = \begin{bmatrix} y_1 \\ y_2 \\ \vdots \\ y_k \end{bmatrix}$ ,  $\mathbf{X} = \begin{bmatrix} 1 & x_{11} & x_{12} & \dots & x_{1k} \\ 1 & x_{21} & x_{22} & \dots & x_{2k} \\ \vdots & \vdots & \vdots & & \vdots \\ 1 & x_{n1} & x_{n2} & \dots & x_{nk} \end{bmatrix}$ ,  $\boldsymbol{\beta} = \begin{bmatrix} \beta_0 \\ \beta_1 \\ \vdots \\ \beta_k \end{bmatrix}$ ,  $\boldsymbol{\epsilon} = \begin{bmatrix} \epsilon_0 \\ \epsilon_1 \\ \vdots \\ \epsilon_n \end{bmatrix}$  (67)

онда је оцена коефицијента  $\hat{\boldsymbol{\beta}}$  (у векторској форми), дата једначином:

$$\hat{\boldsymbol{\beta}} = (\mathbf{X}^T \mathbf{X})^{-1} \mathbf{X}^T \mathbf{y} \quad (68)$$

под условом да инверзна матрица  $(X^T X)^{-1}$  постоји, што значи да су колоне матрице  $X$  линеарно независне тј. да се колона матрице  $X$  не може представити линеарном комбинацијом осталих.

Коефицијент детерминације  $R^2$  који представља однос одступања које су протумачене моделом и укупних одступања служи за оцену репрезентивности регресије, при чему је  $0 < R^2 < 1$ , па је модел бољи што је  $R^2$  већи. У овом раду се модел вишеструке линеарне регресије којим се описује најмање 64% варијансе зависно променљиве ( $R^2 \geq 0,64$ ) сматрао репрезентативним. За оцену квалитета регресије коришћена је и вредност  $F$  – односа варијансе између група и унутар група података значајна на нивоу поверења  $\alpha = 0,05$  или вишем чија је што већа вредност указивала на бољи квалитет регресије.

## 4. Резултати и дискусија

### 4.1. Радионуклиди у земљишту третираном фосфатним ђубривима

Појединачни резултати одређивања физичко–хемијских особина земљишта типа *антросол* приказани су Табели 6, а концентрације активности природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  у профилима земљишта  $P_1$ ,  $P_2$ ,  $P_3$  и  $P_4$  са дубином 0–80 cm и у интервалима 20 cm приказани су у Табели 7.

Профил  $P_1$  садржи целом дубином више од 40% фракције глине и карактерише га тексутрна класа прашкасте глине. Реакција земљишта је слабо алкална целом дубином, са веома малим садржајем  $\text{CaCO}_3$ . Земљиште је слабо хумозно од површине до 60 cm дубине, а затим веома слабо хумозно (60–80 cm). Профили  $P_2$ ,  $P_3$  и  $P_4$  су према текстурној класи прашкасто глиновите–иловаче целом дубином земљишта. У односу на  $P_1$ , ови профили се разликују по садржају глине који је мањи за 5–10% и који се креће од 33,1–38,8%, док је садржај песка већи за 5–10% и креће се од 5,0–16,1%, што указује на низак садржај ове фракције. Профил  $P_2$  је целом дубином алкалне реакције (8,16–8,32) и у њему је садржај  $\text{CaCO}_3$  већи у односу на остале профиле и износи од 8,0–10,3%, што је и разлог нешто више рН реакције земљишта. Земљиште је у овом профилиу слабо до веома слабо хумозно, са нижим садржајем хумуса у односу на профил  $P_1$  и  $P_4$ . Профил  $P_3$  има сличне карактеристике профилиу  $P_2$ , али се разликује у томе што има неутралну реакцију и низак садржај  $\text{CaCO}_3$ . Профил  $P_4$  има нешто лакши механички састав у односу на профил  $P_1$  и садржај хумуса је нешто већи, али је ипак и овај профил слабо хумозан целом дубином.

Дакле, сва четири испитивана профила земљишта су доста сличних особина: прашкасто глиновите текстуре са садржајем праха већим од 50% и ниским садржајима песка. Целом дубином земљиште је алкално, благо алкално и неутрално. Профил  $P_3$  је средње кречан. Све профиле карактерише низак садржај хумуса који се смањује по дубини земљишта. У Табели 8. приказана је дескриптивна статистика вредности мерених величина у земљишту третираном фосфатним ђубривима.

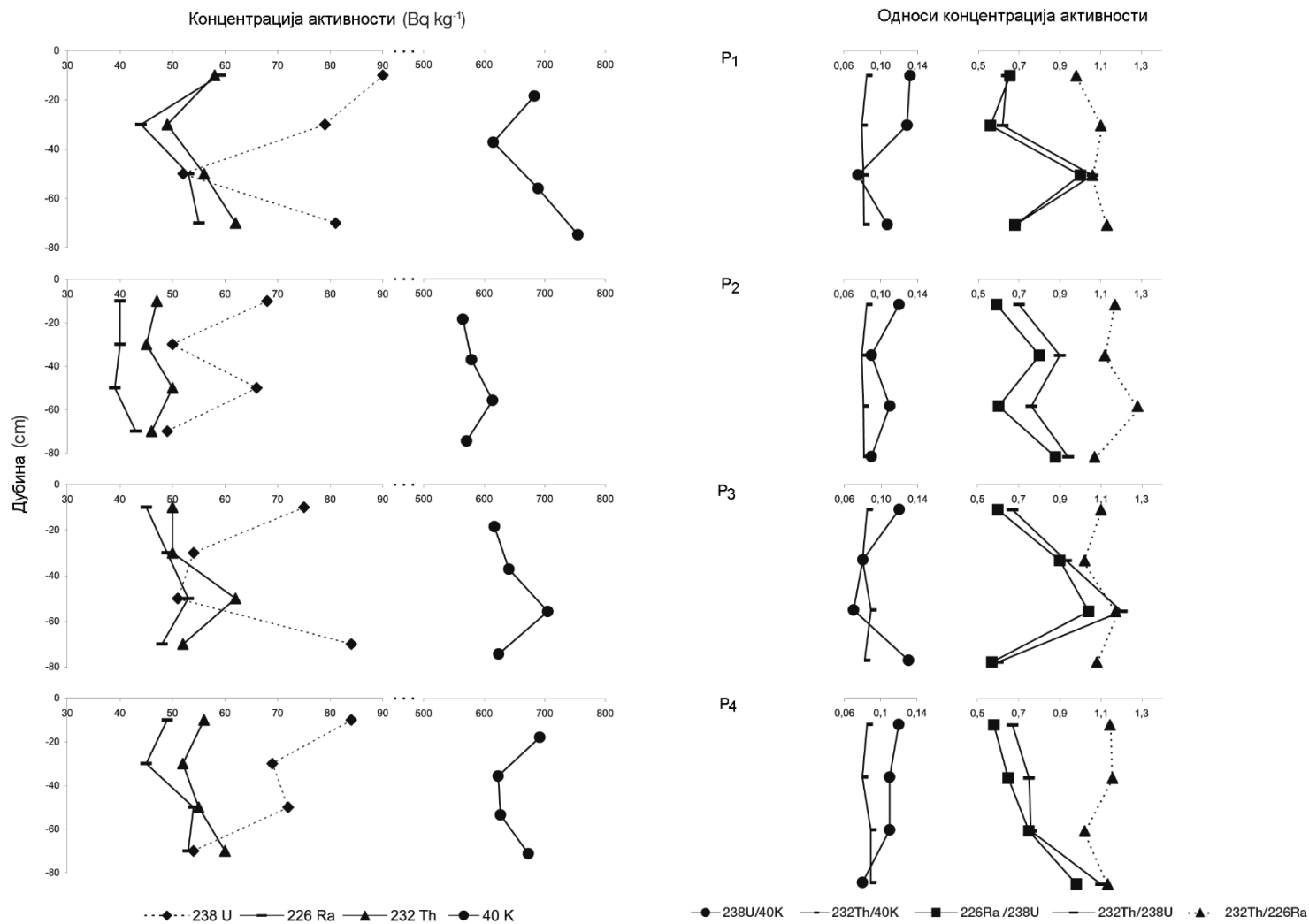
Табела 6. Физичко–хемијске карактеристике профила земљишта третираним фосфатним ђубривима

Дубина (cm)	Дијаметар фракција						pH <sub>H<sub>2</sub>O</sub>	pH <sub>KCl</sub>	CaCO <sub>3</sub> (%)	Хумус (%)
	Укупан песак (2000-50 μm) (%)	Укупан прах (50-2 μm) (%)	Крупан прах (50-10 μm) (%)	Ситан прах (10-2 μm) (%)	Глина (<2 μm) (%)	Физичка глина (<10 μm) (%)				
<b>Профил 1 (P<sub>1</sub>)</b>										
0 – 20	2,2	54,8	41,4	13,4	43,2	56,5	7,47	6,61	0,3	2,12
20 – 40	6,6	51,8	38,2	13,6	41,6	55,3	7,64	6,50	0,3	1,36
40 – 60	6,0	52,4	38,4	14,0	41,6	55,6	7,59	6,43	0,4	1,19
60 – 80	4,5	52,1	38,0	14,2	43,3	57,5	7,57	6,26	0,2	0,92
<b>Профил 2 (P<sub>2</sub>)</b>										
0 – 20	12,3	53,0	39,1	13,9	34,7	48,6	8,16	7,25	9,0	1,27
20 – 40	12,5	54,4	40,6	13,8	33,2	47,0	8,27	7,28	8,0	1,10
40 – 60	16,1	50,7	37,3	13,4	33,2	46,6	8,32	7,38	9,0	0,75
60 – 80	13,2	53,5	39,1	14,4	33,4	47,7	8,29	7,41	10,3	0,48
<b>Профил 3 (P<sub>3</sub>)</b>										
0 – 20	13,3	52,0	38,0	14,0	34,7	48,7	7,45	6,67	0,2	1,42
20 – 40	14,6	52,4	38,4	14,0	33,1	47,0	7,18	5,70	0,2	1,06
40 – 60	13,9	52,8	39,6	13,2	33,3	46,5	6,85	5,27	0,2	0,67
60 – 80	12,9	53,6	39,5	14,1	33,5	47,6	7,04	5,54	0,3	0,46
<b>Профил 4 (P<sub>4</sub>)</b>										
0 – 20	5,3	55,9	42,8	13,1	38,8	51,9	7,71	6,71	1,1	2,80
20 – 40	9,6	52,6	39,6	13,0	37,8	50,8	7,82	6,76	1,0	1,97
40 – 60	6,0	55,7	42,4	13,1	38,3	51,4	7,95	6,69	0,6	1,64
60 – 80	8,2	56,3	44,2	12,1	35,6	47,7	7,94	6,70	0,5	1,05



Табела 7. Концентрација активности природних радионуклида испитиваних профила земљишта (P<sub>1</sub>–P<sub>4</sub>) третираним фосфатним ђубривима у интервалима дубине 20 cm.

Дубина (cm)	<sup>238</sup> U (Bq kg <sup>-1</sup> )	<sup>235</sup> U (Bq kg <sup>-1</sup> )	<sup>226</sup> Ra (Bq kg <sup>-1</sup> )	<sup>232</sup> Th (Bq kg <sup>-1</sup> )	<sup>40</sup> K (Bq kg <sup>-1</sup> )	<sup>137</sup> Cs (Bq kg <sup>-1</sup> )
<b>Профил 1 (P<sub>1</sub>)</b>						
0 – 20	90 ± 18	4,0 ± 0,6	59 ± 6	58 ± 6	680 ± 70	34 ± 3
20 – 40	79 ± 24	4,5 ± 0,7	44 ± 4	49 ± 5	620 ± 60	29 ± 3
40 – 60	52 ± 12	3,5 ± 0,4	53 ± 6	56 ± 6	690 ± 80	21 ± 2
60 – 80	81 ± 24	4,6 ± 0,7	55 ± 7	62 ± 6	760 ± 80	4,9 ± 0,7
<b>Профил 2 (P<sub>2</sub>)</b>						
0 – 20	68 ± 15	2,7 ± 0,3	40 ± 4	47 ± 5	570 ± 60	20 ± 2
20 – 40	50 ± 16	3,7 ± 0,6	40 ± 5	45 ± 5	580 ± 60	28 ± 2
40 – 60	66 ± 14	3,9 ± 0,5	39 ± 4	50 ± 5	610 ± 60	20 ± 2
60 – 80	49 ± 16	3,0 ± 0,4	43 ± 4	46 ± 5	570 ± 60	1,8 ± 0,4
<b>Профил 3 (P<sub>3</sub>)</b>						
0 – 20	75 ± 20	3,4 ± 0,5	45 ± 5	50 ± 5	620 ± 60	35 ± 4
20 – 40	54 ± 19	3,5 ± 0,5	49 ± 5	50 ± 5	640 ± 60	27 ± 3
40 – 60	51 ± 10	3,3 ± 0,4	53 ± 6	62 ± 7	710 ± 70	8,0 ± 1,0
60 – 80	84 ± 17	3,4 ± 0,4	48 ± 10	52 ± 5	620 ± 60	5,0 ± 0,6
<b>Профил 4 (P<sub>4</sub>)</b>						
0 – 20	84 ± 17	3,6 ± 0,5	49 ± 5	56 ± 7	692 ± 69	27 ± 3
20 – 40	69 ± 21	3,5 ± 0,4	45 ± 5	52 ± 5	623 ± 62	19 ± 2
40 – 60	72 ± 22	3,5 ± 0,5	54 ± 6	55 ± 6	627 ± 63	2,3 ± 0,4
60 – 80	54 ± 13	3,6 ± 0,4	53 ± 5	60 ± 6	673 ± 67	<1,5



Слика 22. Промена концентрације активности радионуклида <sup>238</sup>U, <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th и <sup>40</sup>K заједно са променом односа концентрација активности <sup>238</sup>U/<sup>40</sup>K, <sup>232</sup>Th/<sup>40</sup>K, <sup>238</sup>U/<sup>226</sup>Ra, <sup>238</sup>U/<sup>232</sup>Th и <sup>232</sup>Th/<sup>226</sup>Ra са дубином 0–80 cm у профилима земљишта P<sub>1</sub>, P<sub>2</sub>, P<sub>3</sub> и P<sub>4</sub>.

Табела 8. Дескриптивна статистика вредности концентрација активности природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  и физичко-хемијских параметара одређених у земљишту третираном фосфатним ђубривима.

	$X_{min}$	$X_{max}$	$\bar{X}$	$\sigma$	$C_{var}(\%)$	$G_1$	$G_2$
$^{238}\text{U}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	49,0	90,0	67,4	14,1	20,9	0,05	-1,23
$^{235}\text{U}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	2,7	4,6	3,6	0,48	13,3	0,86	0,77
$^{226}\text{Ra}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	39,0	59,0	48,1	6,06	12,6	0,09	-0,86
$^{232}\text{Th}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	45,0	62,0	53,1	5,49	10,3	0,45	-0,85
$^{40}\text{K}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	565,0	755,0	642,0	52,96	8,2	0,73	-0,22
$^{137}\text{Cs}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	1,8	35	18,8	11,61	61,7	-0,44	-1,09
$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$	0,56	1,04	0,74	0,15	23,3	1,05	-0,95
$^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$	0,62	1,22	0,82	0,19	22,9	1,42	-0,27
$^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$	0,98	1,28	1,11	0,07	6,5	0,60	0,80
$^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$	0,072	0,135	0,105	0,021	20,3	-0,39	-1,20
$^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$	0,078	0,089	0,083	0,003	4,0	1,15	-0,20
pH H <sub>2</sub> O	6,9	8,3	7,7	0,44	5,8	-0,48	-0,51
pH KCl	5,3	7,4	6,6	0,64	9,7	-1,07	-0,04
CaCO <sub>3</sub> (%)	0,2	10,3	2,6	3,91	150,6	2,13	-0,19
Хумус (%)	0,5	2,8	1,3	0,63	49,5	1,63	0,86
Песак (%) (2000–50 μm)	2,2	16,1	9,8	4,27	43,5	-0,43	-1,08
Прах (%) (50–2 μm)	50,7	56,3	53,4	1,63	3,1	0,81	-0,53
Глина (%) (<2 μm)	33,1	43,3	36,8	3,84	10,4	1,01	-1,00

У земљишту третираном фосфатним ђубривима вредности концентрација активности су се налазиле у интервалу (Bq kg<sup>-1</sup>): 49–90 за  $^{238}\text{U}$ , 39–59 за  $^{226}\text{Ra}$ , 45–62 за  $^{232}\text{Th}$ , и 560–760 за  $^{40}\text{K}$  и припадале су просечним интервалима вредности гама зрачења које потиче из земљишта [16]. Међутим, индикација повећаног нивоа природне активности биле су средње вредности концентрација (Bq kg<sup>-1</sup>): 67, 48, 53 и 640 за  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$ , респективно које су у овом раду биле су веће од средњих вредности (Bq kg<sup>-1</sup>): 33 за  $^{238}\text{U}$ , 32 за  $^{226}\text{Ra}$ , 45 за  $^{232}\text{Th}$  и 420 за  $^{40}\text{K}$  из UNSCEAR (2010) извештаја [16].

Пирсонова линеарна корелациона анализа између концентрација активности радионуклида показала је да постоји јака и значајна веза ( $p < 0,001$ ) између  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{40}\text{K}$  ( $r = 0,80$ ),  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{232}\text{Th}$  ( $r = 0,86$ ) и најјача између  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  ( $r = 0,93$ ). С обзиром на то да испитивано земљиште мале површине припада подручју хомогене литологије, очекује се да концентрације активности природних радионуклида буду у међусобно значајној корелацији [4], што одражава њихово природно геохемијско порекло. Супротно томе, корелације између  $^{238}\text{U}$  и осталих природних

радионуклида нису успостављене што је указивало да би активност  $^{238}\text{U}$  могла да потиче осим из геохемијског и из антропогеног извора. Користећи релацију да се у већини узорака из животне средине за однос концентрација активности  $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$  очекује вредност 1,1 [19], може се проценити да повећање активности уранијума изнад природног постоји у овом земљишту и да износи  $\leq 40\%$  у зависности дубине слоја.

Да би се порекло испитиваних природних радионуклида у земљишту анализирано, праћене су промене њихових концентрација активности са дубином. На Слици 22. лево представљене су концентрације активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$ , а на Слици 22. десно односи њихових концентрација активности са порастом дубине земљишта од 0 до 80 cm. На Слици 22. се могу запазити највеће концентрације активности радионуклида у површинском слоју (0–20 cm, P<sub>1</sub>–P<sub>4</sub>), а затим и у неком дубљем слоју (40–60 cm у P<sub>1</sub> и P<sub>3</sub> или 60–80 cm у P<sub>2</sub> и P<sub>4</sub>), при чему се нагли пад активности примећује у зони кореновог система (20–60 cm).

Познато је да у низу са успостављеном секуларном равнотежом односи активности имају вредност 1 и да се вредност 1,1 очекују међу члановима низова  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$  [3, 19]. За односе активности  $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$  и  $^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$  грубо је процењена вредност од 0,085 која би се могла сматрати природном, добијена на основу података из UNSCEAR (2010) извештаја [16]. На Слици 22. запажа се да су само вредности односа  $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra} \sim 1,1$  и  $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K} \sim 0,083$  у складу са очекиваним природним вредностима и да се ови односи приближно не мењају са дубином 0–80 cm. Константни односи између активности  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  резултат су њихове униформне расподеле и малих варијација у земљишту ( $\sim 10\%$ ) што указује на порекло ових радионуклида из геохемијских извора.

Супротно томе, може се приметити да су средње вредности односа концентрација активности  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U} \sim 0,74$  и  $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U} \sim 0,82$  биле испод, а односа  $^{238}\text{U}/^{40}\text{K} \sim 0,11$  изнад очекиваних природних (Табела 8), које су тиме указивале на повећане активности  $^{238}\text{U}$ . Такође, вредности ових односа неравномерно су варијале по дубини (Слика 22), а узрок томе су биле веће варијације  $^{238}\text{U}$  дуж земљишних профила (17% до 24%) које су указивале на присуство мобилног облика уранијума у земљишту чији извор је најчешће антропогеног порекла [46], односно резултат људских активности.

Са друге стране, природни односи активности истих радионуклида  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}\sim 1$  и  $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}\sim 1,1$  у неким слојевима су били поново успостављени и то најчешће у зони кореновог система (40–60 cm, профили P<sub>1</sub> и P<sub>3</sub>, Слика 22). У овим слојевима, поновно успостављање природних вредности односа активности указује да је у укупном садржају уранијума његов удео антропогеног порекла исцрпљен што се могло догодити на два начина, усвајањем од стране кореновог система или миграцијом у дубље слојеве земљишта. Као резултат, у овим слојевима земљишта преостала је порција уранијума која је фиксна, односно она која потиче из геохемијских извора, а то значи у облику мање мобилном и доступном или потпуно недоступном за усвајање од стране биљке [46].

#### 4.1.1. $^{137}\text{Cs}$ у земљишту третираном фосфатним ђубривима

Концентрације активности произведеног радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту третираном фосфатним ђубривима представљене су у Табели 7. и налазиле су се у интервалу  $<1,5 \text{ Bq kg}^{-1}$  до  $35 \text{ Bq kg}^{-1}$ . Ове вредности су биле у складу са регионалним нивоима  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту [61, 68]. Варијације  $^{137}\text{Cs}$  са дужином у испитиваним профилима земљишта приказане су на Слици 23.

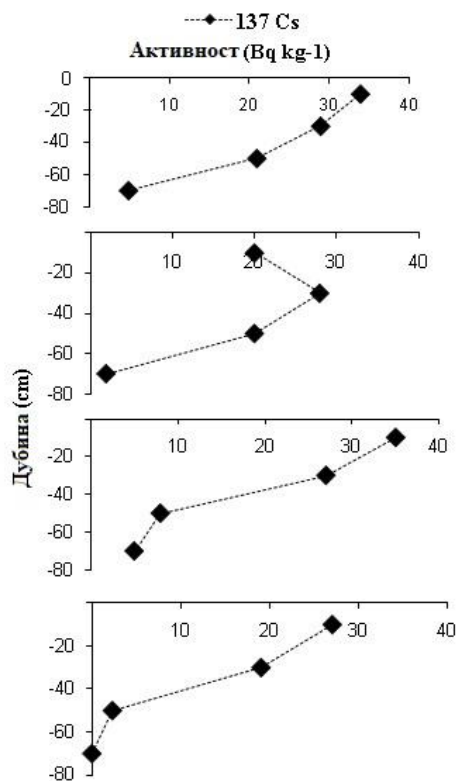
На Слици 23. се може приметити да активност варира на сличан начин дуж профила земљишта P<sub>1</sub>, P<sub>2</sub> и P<sub>3</sub> тј. радиоцезијум са дужином постепено опада, али се значајни нивои активности могу наћи и у дубљем слоју земљишта и испод 40 cm дубине. Примећује се да се у овим профилима *антросола* дистрибуција разликује од оне типичне, карактеристичне за природна (немодификована) земљишта у којима је активност  $^{137}\text{Cs}$  највећа у површинском слоју дубине до 10 cm до највише 20 cm, а затим брзо експоненцијално опада са са дужином [68, 69, 70].

Таква расподела радије одговара профили P<sub>4</sub>, узоркованом ван зоне кореновог система, у коме активност радиоцезијума варира  $\sim 100\%$  са дужином и постаје мања од *mdc* вредности на дубини 60–80 cm (Слика 23). За разлику од P<sub>4</sub>, активност  $^{137}\text{Cs}$  дуж осталих испитиваних профила са дужином варира мање ( $\sim 60\%$  до  $\sim 80\%$ ) што указује на расподелу цезијума која није настала природно већ је последица механичке обраде у току времена култивације (у трајању од 12 година) под чијим утицајем је цезијум доспео у ниже слојеве земљишта [69, 70].

Због тога је дистрибуција концентрације активности Cs ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ) на дубини  $z$  (cm) могла добро бити описана једначином предложеном за култивисана земљишта:

$$C_s = a \cdot \left(1 - \frac{z}{H}\right)^b \quad (69)$$

чији коефицијенти испуњавају услов:  $a > 1$  и  $0 < b < 1$  [70]. Под претпоставком да је дубина слоја  $H$  (cm) у коме цезијум још увек може бити детектован 85 cm, добијене су вредности фита једначине (69):  $a = 38,0 \text{ Bq kg}^{-1}$  и  $b = 0,81$  ( $R^2 = 76\%$ ,  $p < 0,05$ ). Фит је побољшан ( $R^2 = 81\%$ ,  $p < 0,05$  за  $a = 38,0 \text{ Bq kg}^{-1}$  и  $b = 0,68$ ) када је профил  $P_4$  искључен из анализе, с обзиром да се у овом профилу цезијум не детектује у слоју 60–80 cm. Једначина (69) показује и да ће дистрибуција цезијума током времена постати више униформна ( $b \rightarrow 0$ ,  $C_s \rightarrow a$ ) ако се механичка обрада земљишта буде наставила.



Слика 23. Промена концентрације активности  $^{137}\text{Cs}$  са дубином 0–80 cm у профелима земљишта  $P_1$ ,  $P_2$ ,  $P_3$  и  $P_4$  и у интервалима дубине 20 cm.

#### 4.1.2. Утицај физичко–хемијских особина земљишта

Да ли су концентрације активности радионуклида у релацији са физичко–хемијским особинама земљишта дуж дубине испитиваних профила испитано је применом Пирсонове корелационе анализе чији су резултати приказани у Табели 9. Добијени коефицијенти указивали су да су сви радионуклиди у значајној позитивној корелацији са глином (<2  $\mu\text{m}$ ) и негативној са песком (2000–50  $\mu\text{m}$ ) и та веза је објашњавала приближно 30–40% варијација концентрација активности. Радионуклиди могу бити адсорбовани на површинама честица глине (велике специфичне површине) или фиксирани у кристалним решеткама минерала глине [37, 38, 45].

Са друге стране, честице песка мале специфичне површине и ниског капацитета ретенције утичу на појачану вертикалну миграцију радионуклида [86], што је један од разлога смањене активности у слоју 20–60 cm и акумулације радионуклида на дубини 60 cm или ниже. Садржаји хумуса су били корелисани само са активностима  $^{238}\text{U}$  и објашњавали су 25% његове варијабилности. Дуж 0–80 cm дубине, рН рекација земљишта је у мањој мери била инверзно корелисана са  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$ , а садржаји  $\text{CaCO}_3$  у већој, али не и са активностима  $^{238}\text{U}$ .

Табела 9. Резултати Пирсонове линеарне корелације између  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  и основних особина земљишта.

Радионуклид	$^{238}\text{U}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	$^{226}\text{Ra}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	$^{232}\text{Th}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	$^{40}\text{K}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	$^{137}\text{Cs}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )
рН H <sub>2</sub> O		-0,55	-0,50	-0,54	
CaCO <sub>3</sub> (%)		-0,74	-0,66*	-0,68*	
Хумус (%)	0,50				0,52
Песак (%)	-0,51	-0,68**	-0,65**	-0,55	
Прах (%)					
Глина (%)	0,54	0,58	0,65*	0,57	

Ниво значајности:  $p < 0,05$ , \* $p < 0,01$ , \*\* $p < 0,001$  ( $\alpha = 95\%$ ).

У следећем кораку, зона кореновог система је искључена из анализе и слојеви у којима се примећује нагомилавање радионуклида на дубини 0–20 cm и 60–80 cm посматрани су заједно. Модели вишеструке линеарне регресије показали су да се у том случају активности изотопа  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  могу боље предвидети на основу особина земљишта. Овим моделима заједнички ефекат више параметара земљишта описивао је много већи проценат варијација активности у

земљишту: 97% за  $^{238}\text{U}$ , 94% за  $^{226}\text{Ra}$ , 91% за  $^{232}\text{Th}$  и 88% за  $^{40}\text{K}$  што је приказано у Табели 10.

Међутим, применом истог метода у зони кореновог система (20–60 cm) нису добијени слични резултати, а такав исход се могао тумачити чињеницом да параметри земљишта у непосредној близини самог кореновог система могу бити значајно измењени активношћу самог корена [87]. Одавде следи да су природни радионуклиди у зони кореновог система учествовали у физичко–хемијским интеракцијама које се одигравају у земљишним растворима или на чврстим компонентама земљишта под утицајем биолошких активности кореновог система [5, 87], а не под утицајем особина земљишта.

Табела 10. Коефицијенти вишеструке линеарне регресије којима се предвиђа активност  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  у зависности од основних особина земљишта у слоју 0–20 cm и 60–80 cm посматраним заједно.

Радионуклид	$^{238}\text{U}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	$^{226}\text{Ra}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	$^{232}\text{Th}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )	$^{40}\text{K}$ (Bq kg <sup>-1</sup> )
pH (H <sub>2</sub> O)	-42,125			
CaCO <sub>3</sub> (%)	2,174	-0,576	-0,640	-6,534
Хумус (%)	8,144	-3,028	-2,630	-20,705
Песак (%)		-1,274	-1,079	-11,198
Глина (%)	1,441			
Константа	327,515	66,016	68,782	793,253
R <sup>2</sup> (%)	97%	94%	91%	88%

Ниво значајности:  $p < 0,01$  ( $\alpha = 95\%$ )

У овом земљишту се, према томе, може издвојити група природних радионуклида више униформне дистрибуције и мање покретљивости са дубином  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  чије се понашање разликује од  $^{238}\text{U}$  и његове покретљивости. Негативне везе  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  са садржајем карбоната, хумуса и песка и недостатка корелација са pH указују на њихово присуство у минералним компонентама земљишта које потичу из матичног супстрата [5, 88].

Супротно томе, у условима слабо алкалне pH реакције уранијум се јавља у облику веома покретљивог уранил јона ( $\text{UO}_2^{2+}$ ) у земљишту, а у одсуству већег садржаја хумуса и присуству карбоната гради уранил–карбонатне или органо–карбонатне комплексе што су, уопште узев, главне мобилне форме уранијума које могу довести до транспорта у ниже слојеве земљишта [12, 18].



Анализа утицаја особина земљишта на варијације концентрација  $^{137}\text{Cs}$  са дубином земљишта показала је да је само садржај хумуса средње корелисан са  $^{137}\text{Cs}$  ( $r = 0,51$ ;  $p < 0,05$ ) описујући 27% варијабилности цезијума. Али, та веза је постала јака ( $r = 0,82$ ;  $p < 0,001$ ) и описивала 68% варијабилности када је профил  $P_4$  узоркован ван коренове зоне искључен из анализе. Ови резултати били су у складу са подацима из литературе на основу којих је познато да хуминске материје у глиновитом земљишту омогућавају интеракције између растворљивих облика радиоактивног цезијума и компонената земљишта што доводи до његовог кретања ка дубљим слојевима земљишта само ако постоји и кретање земљишних честица за које је фиксиран [40, 41, 72].

## 4.2. Радионуклиди у земљишту урбаног подручја

У Табели 11. су приказани појединачни резултати одређивања физичко–хемијских карактеристика земљишта, а у Табели 12. концентрација активности природних радионуклида и  $^{137}\text{Cs}$  у профилима земљишта паркова BG, SP, ZP и KP са дубином 0–50 cm и у интервалима 10 cm.

Резултати анализа особина земљишта у урбаном подручју Београда показали су да паркови припадају земљиштима средњег механичког састава. Наиме, сви узорци припадају текстурним класама иливаче, прашкасте иловаче и прашкасто–глиновите иловаче. Земунски парк је иловастог и прашкасто иловастог састава са садржајем глине 20,7–25,0% и садржаја песка од 19,9–29,4%. Студентски парк има доминантно прашкасто иловасту и иловасту текстуру, док у Ботаничкој башти доминира прашкаста иловача и прашкасто–глиновита иловача. Земљиште Карађорђевог парка је хомогеног састава и припада прашкасто–глиновитим иловачама са 28,6–33,2% глине и мање од 10% укупног песка (Табела 11). На основу свог механичког састава, KP у мањој мери одступа од осталих паркова. Сви испитивани узорци земљишта имали су садржај честица праха (димензија 50–2  $\mu\text{m}$ ) већи од 45%. Садржаји фракција праха ( $p < 0,001$ ) и песка ( $p < 0,001$ ) разликовали су се значајно од једног до другог парка, али је коефицијент варијације садржаја праха био 9%, за разлику од песка који је варирао 40%.

Резултати одређивања хемијских својстава земљишта у урбаном подручју показали су да су ова земљишта благо алкална до алкална. Реакција земљишта је била у опсегу од 7,4–8,1, са веома ниским коефицијентом варијације (2%). Садржај хумуса од 4–5% је био највиши у површинском слоју земљишта 0–10 cm што чини земљиште јако хумозним и постепено је опадао са дубином на BG, SP и ZP, док је на локацији KP садржај хумуса био око 2,6% у површинском слоју и није варирао значајно по дубини (2,60–2,77%), чак се и повећавао. Земљиште свих паркова било је карбонатно, са најнижим садржајем калцијум–карбоната у површинском слоју који се повећавао са дубином, што је указивало на генезу тла у правцу испирања  $\text{CaCO}_3$  дуж профила земљишта. Сходно томе, у сваком парку алкалност земљишта се повећавала дуж дубине профила. Испитивана земљишта могла су се груписати заједно на основу сличне рН вредности као главне карактеристике која је одражавала геолошку подлогу карбонатног порекла.

Табела 11. Физичко–хемијске карактеристике земљишта испитованих паркова (BG, ZP, SP, KP).

Локација	Дубина (cm)	Дијаметар фракција								pH H <sub>2</sub> O	pH KCl	Хумус (%)	CaCO <sub>3</sub> (%)
		Укупан песак (2000-50 μm)	Крупан песак (2000-200 μm)	Ситан песак (200-50 μm)	Укупан прах (50-2 μm)	Крупан прах (50-10 μm)	Ситан прах (10-2 μm)	Глина (<2 μm)	Физичка глина (<10 μm)				
BG	0-10*	19,0	11,0	8,0	53,4	27,1	26,3	27,6	53,9	7,78	7,46	4,96	9,8
	0-10	7,2	1,6	5,6	66,2	38,7	27,5	26,6	54,0	7,43	7,12	5,13	16,6
	10-20	18,8	4,4	14,4	54,1	25,6	28,4	27,2	55,6	7,90	7,35	2,10	20,2
	20-30	17,8	3,4	14,4	57,6	23,1	34,6	24,6	59,1	8,05	7,52	1,33	22,2
	30-40	18,4	5,5	12,9	60,3	30,8	29,5	21,3	50,8	7,96	7,50	1,53	21,0
	40-50	24,8	8,7	16,1	53,5	28,7	24,8	21,7	46,5	7,93	7,60	1,40	21,8
ZP	0-10*	24,8	10,4	14,4	52,8	19,3	33,6	22,4	55,9	7,61	7,29	5,44	12,4
	0-10	19,9	5,5	14,4	59,4	25,3	34,1	20,7	54,8	7,72	7,07	4,90	14,0
	10-20	29,4	12,6	16,8	47,8	17,2	30,6	22,8	53,4	7,90	7,17	3,29	14,3
	20-30	25,1	8,4	16,8	49,8	20,2	29,6	25,0	54,7	7,92	7,31	2,92	16,1
	30-40	24,1	7,0	17,1	51,7	22,2	29,5	24,1	53,6	8,02	7,42	2,43	15,1
	40-50	29,3	11,4	17,9	49,1	32,4	16,7	21,6	38,3	8,02	7,50	1,68	20,8
SP	0-10*	16,0	7,8	8,2	53,8	20,7	33,0	30,2	63,2	7,44	7,20	4,21	11,9
	0-10	33,0	21,1	12,0	46,1	24,5	21,7	20,8	42,5	7,75	6,94	4,38	18,3
	10-20	23,4	13,2	10,2	52,3	23,9	28,4	24,3	52,7	7,81	7,09	4,16	22,8
	20-30	26,2	14,1	12,1	49,2	22,3	26,9	24,6	51,5	7,90	7,22	3,39	23,9
	30-40	25,3	12,2	13,1	50,7	23,0	27,7	24,0	51,7	7,91	7,31	3,37	26,0
	40-50	24,2	13,3	10,9	55,4	22,7	32,7	20,4	53,1	7,93	7,39	3,23	24,4
KP	0-10*	9,3	1,5	7,8	62,2	26,9	35,3	28,6	63,8	7,86	7,21	2,60	3,7
	0-10	8,6	4,5	4,1	59,0	26,3	32,6	32,4	65,1	7,73	7,15	2,61	3,8
	10-20	7,2	2,3	4,8	60,5	28,9	31,6	32,3	63,9	7,86	7,31	2,69	8,8
	20-30	6,6	2,1	4,5	60,2	27,4	32,8	33,2	66,0	7,94	7,31	2,77	8,2

\*– узорковано на отвореном простору ван крошње

Табела 12. Концентрације активности радионуклида  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$  одређених у земљишту урбаног подручја у Београдским парковима: Ботаничка башта (BG), Земунски парк (ZP), Студентски парк (SP) и Карађођев парк (KP).

Локација	Дубина (cm)	$^{238}\text{U}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{235}\text{U}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{226}\text{Ra}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{210}\text{Pb}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{232}\text{Th}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{40}\text{K}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{137}\text{Cs}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )
BG	0–10*	39 ± 9	2,1 ± 0,3	42 ± 5	41 ± 16	45 ± 4	530 ± 50	17 ± 2
	0–10	30 ± 10	1,9 ± 0,2	36 ± 4	42 ± 17	45 ± 4	470 ± 40	7 ± 2
	10–20	40 ± 8	2,2 ± 0,2	39 ± 4	46 ± 19	47 ± 4	520 ± 40	1,7 ± 0,3
	20–30	44 ± 10	2,3 ± 0,5	41 ± 4	34 ± 15	50 ± 5	490 ± 40	<0,14
	30–40	46 ± 8	2,0 ± 0,2	37 ± 4	36 ± 15	46 ± 4	480 ± 40	0,8 ± 0,2
	40–50	35 ± 10	1,8 ± 0,2	39 ± 4	29 ± 14	46 ± 4	470 ± 40	0,7 ± 0,2
ZP	0–10 *	24 ± 8	1,6 ± 0,2	37 ± 4	34 ± 13	36 ± 4	530 ± 50	32 ± 3
	0–10	15 ± 8	1,2 ± 0,2	33 ± 4	45 ± 18	28 ± 4	520 ± 50	36 ± 4
	10–20	40 ± 10	1,9 ± 0,2	39 ± 4	42 ± 14	36 ± 3	540 ± 50	36 ± 3
	20–30	36 ± 8	1,6 ± 0,2	39 ± 4	47 ± 15	35 ± 3	530 ± 40	12 ± 1
	30–40	41 ± 8	2,0 ± 0,2	35 ± 4	33 ± 11	37 ± 4	540 ± 50	3,3 ± 0,4
	40–50	35 ± 8	1,2 ± 0,1	38 ± 4	35 ± 12	34 ± 3	490 ± 40	1,3 ± 0,3
SP	0–10*	41 ± 8	2,6 ± 0,3	50 ± 4	41 ± 20	47 ± 4	550 ± 40	17 ± 2
	0–10	41 ± 9	2,1 ± 0,2	43 ± 4	38 ± 18	33 ± 3	466 ± 40	19 ± 2
	10–20	30 ± 8	1,7 ± 0,2	38 ± 4	39 ± 14	32 ± 3	430 ± 40	13 ± 1
	20–30	29 ± 8	1,5 ± 0,2	41 ± 4	54 ± 15	31 ± 3	420 ± 40	11 ± 1
	30–40	42 ± 11	1,3 ± 0,2	50 ± 6	63 ± 21	35 ± 4	450 ± 40	14 ± 1
	40–50	43 ± 10	1,6 ± 0,2	44 ± 5	52 ± 19	36 ± 4	470 ± 40	3,9 ± 0,5
KP	0–10 *	31 ± 14	2,3 ± 0,3	41 ± 7	<14	41 ± 5	500 ± 50	5,0 ± 0,8
	0–10	14 ± 8	2,5 ± 0,4	33 ± 5	38 ± 14	41 ± 5	550 ± 60	7 ± 1
	10–20	24 ± 10	2,1 ± 0,3	43 ± 5	41 ± 20	39 ± 5	560 ± 50	12 ± 4
	20–30	29 ± 9	3,4 ± 0,5	39 ± 5	44 ± 22	41 ± 5	580 ± 60	13 ± 1

\*– узорковано на отвореном простору ван крошње

Детектоване концентрације активности у земљишту паркова у слоју дубине 0–50 cm ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 14–46 за  $^{238}\text{U}$ , 33–50 за  $^{226}\text{Ra}$ , <14–63 за  $^{210}\text{Pb}$ , 1,2–3,4 за  $^{235}\text{U}$ , 28–50 за  $^{232}\text{Th}$  и 420–580 за  $^{40}\text{K}$  биле су у складу са просечним вредностима [16]. Сличне концентрације активности измерене су у површинским слојевима урбаног земљишта у другим градовима Србије [61] (Табела 2). Виша горња граница активности у вертикалним профилима урбаног земљишта (дубине до 50 cm) забележена је у градовима Истанбул [54] и Буенос Ајрес [55] ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): до 69 за  $^{226}\text{Ra}$ , до 80 за  $^{232}\text{Th}$  и до 996 за  $^{40}\text{K}$  (Табела 2). Дистрибуција концентрација активности испитиваних природних радионуклида (осим  $^{235}\text{U}$ ) и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  са дужином земљишта 0–50 cm и у интервалима 10 cm у градским парковима приказана је на Слици 24.

Табела 13. Дескриптивна статистика вредности концентрација активности природних радионуклида и  $^{137}\text{Cs}$ ; њихових односа активности и физичко–хемијских карактеристика одређених у земљишту урбаног подручја у Београдским парковима: Ботаничка башта (BG), Земунски парк (ZP), Студентски парк (SP) и Карађођево парко (KP).

	$\bar{X}_{BG}$	$\bar{X}_{SP}$	$\bar{X}_{ZP}$	$\bar{X}_{KP}$	$\bar{X}$	$\sigma$	$x_{min}-x_{max}$	$C_{var}(\%)$	$G_1$	$G_2$
$^{238}\text{U}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	39,0	37,7	31,8	24,5	34,0	8,97	14–46	26,4	–1,66	0,09
$^{235}\text{U}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	2,1	1,8	1,6	2,6	1,95	0,51	1,2–3,4	26,0	1,72	1,81
$^{226}\text{Ra}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	39,0	44,3	36,8	39,0	39,9	4,42	33–50	11,1	1,56	0,96
$^{210}\text{Pb}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	38,0	47,8	39,3	30,8	39,7	11,74	<14–63	29,6	–2,88	5,83
$^{232}\text{Th}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	46,5	35,7	34,3	40,5	39,1	6,12	28–50	15,7	0,19	–1,02
$^{40}\text{K}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	492	465	525	546	503	48,02	424–576	8,3	–0,44	–0,80
$^{137}\text{Cs}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	4,53	13,0	20,1	9,25	11,9	10,9	<0,14–36	91,6	2,14	0,58
pH $\text{H}_2\text{O}$	7,8	7,8	7,9	7,8	7,8	0,17	7,4–8,1	2,1	–2,41	1,20
pH KCl	7,4	7,2	7,3	7,2	7,3	0,17	6,9–7,6	2,3	–0,15	–0,47
$\text{CaCO}_3$ (%)	18,6	21,2	15,5	6,1	16,1	6,58	3,7–26,0	40,7	–0,79	–0,75
Хумус (%)	2,7	4,0	3,4	2,7	3,3	1,27	1,3–5,4	39,1	0,25	–1,05
Песак (%)	17,7	24,7	25,4	7,9	19,9	7,89	6,6–33	39,6	–0,89	–0,77
Прах (%)	57,5	52,5	51,8	60,5	55,1	4,89	48–66	8,89	0,98	–0,44
Глина (%)	24,8	23,8	22,7	31,6	25,3	4,00	20–33	15,8	1,36	–0,53

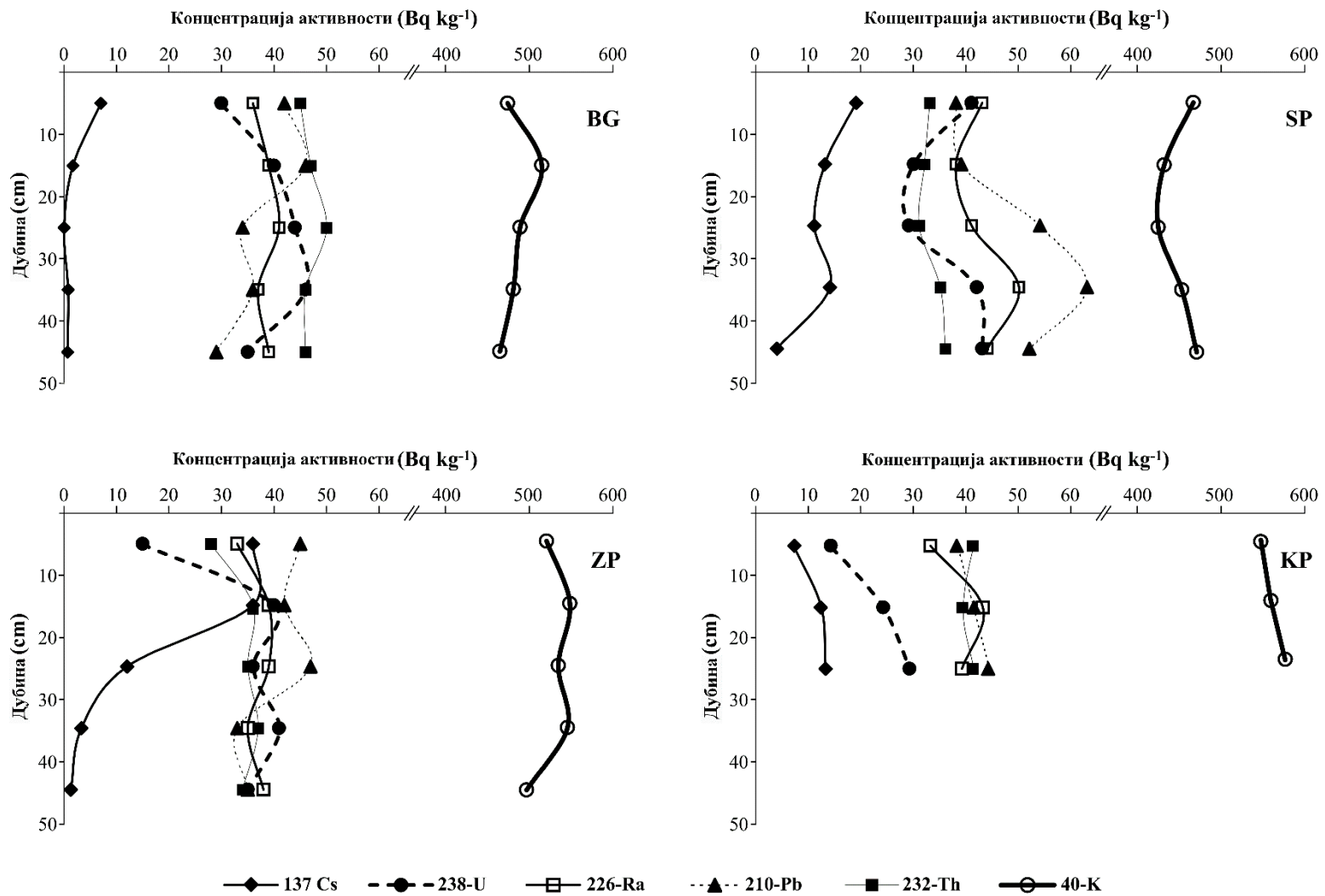
Песак (2000–50  $\mu\text{m}$ ); Прах (50–2  $\mu\text{m}$ ); Глина (<2  $\mu\text{m}$ )

У Табели 13. приказана је дескриптивна статистика вредности свих мерених величина у земљишту урбаног подручја. Резултати једнофакторске анализе варијансе (ANOVA) показали су да су концентрације активности  $^{226}\text{Ra}$  биле највеће на локацији SP ( $p < 0,01$ ), а у случају  $^{232}\text{Th}$  на BG ( $p < 0,001$ ), док су се за  $^{40}\text{K}$  статистички разликовале на свим парковима међусобно ( $p < 0,01$ ). На локацији KP је  $^{238}\text{U}$  ( $p < 0,05$ ) имао најмању, а  $^{235}\text{U}$  ( $p < 0,01$ ) највећу вредност концентрације активности. У испитиваним профилима земљишта, мање су варирале концентрације активности  $^{40}\text{K}$  (8%) и  $^{226}\text{Ra}$  (11%), у већој мери  $^{232}\text{Th}$  (16%) и  $^{210}\text{Pb}$  (19%), док су изотопи уранијума  $^{238}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  варирали 26%. Све групе података пратиле су нормалну дистрибуцију фреквенција.

#### 4.2.1. $^{137}\text{Cs}$ у земљишту у земљишту урбаног подручја

$^{137}\text{Cs}$  карактерише веома нехомогена дистрибуција у земљишту на подручју Србије [61, 68]. У новијем периоду (2001–2007) ниво цезијума у урбаним подручјима измерен је у интервалу  $3,7\text{--}70 \text{ Bq kg}^{-1}$  у површинским слојевима земљишта [68], а на подручју Београда забележене су активности  $0,30\text{--}160 \text{ Bq kg}^{-1}$  у необрађиваним профилима земљишта дубине  $0\text{--}50 \text{ cm}$ , при чему је у сваком профилу вредност мања од  $10 \text{ Bq kg}^{-1}$  детектована на дубини испод  $25 \text{ cm}$  [42]. У земљишту паркова у овом истраживању  $^{137}\text{Cs}$  се налазио се у интервалу ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ):  $0,7\text{--}35,8$ , осим једне вредности мање од вредности  $\text{mdc}$  (на BG у слоју  $20\text{--}30 \text{ cm}$ ). Средња концентрација активности  $17 \text{ Bq kg}^{-1}$  у слоју  $0\text{--}20 \text{ cm}$  била је значајно већа ( $p < 0,01$ ) од средње вредности  $7 \text{ Bq kg}^{-1}$  на дубини  $20\text{--}50 \text{ cm}$ .

Забележене вертикалне дистрибуције цезијума коришћене су да се у парковима испита степен модификованости профила земљишта [70]. На локацији BG, највећа активност  $^{137}\text{Cs}$  ( $17 \text{ Bq kg}^{-1}$ ) у слоју земљишта  $0\text{--}10 \text{ cm}$  нагло опада и постаје мања од  $\text{mdc}$  вредности ( $^{137}\text{Cs} < 0,14 \text{ Bq kg}^{-1}$ ) у слоју  $20\text{--}30 \text{ cm}$  дубине, а затим се опет детектује у нижим слојевима ( $30\text{--}50 \text{ cm}$ ). Девичанско земљиште Ботаничке баште које је идентификовано као природно (немодификовано) могло се упоредити са земљиштем под шумама умерене климе у коме су слични профили  $^{137}\text{Cs}$  примећени и за које се сматра да су настали под утицајем биолошке активности у земљишту (биотурбација, дистрибуција кореновог система) [5].



Слика 24. Промена концентрације активности радионуклида са дубином 0–50 cm у урбаном земљишту

За профил земљишта на ZP такође се може сматрати да је задржао своје природне карактеристике судећи према типичној расподели  $^{137}\text{Cs}$  у немодификованом земљишту чија се вертикална миграција може добро описати моделом дифузије–конвекције [68]. У остала два парка (SP и KP)  $^{137}\text{Cs}$  је транспортован ниже, испод 20 cm, са slabим пиком на дубини 30–40 cm на SP и скоро униформном дистрибуцијом са дубином на KP (Слика 24). Не би се могло предпоставити да је већа конвективна миграција узрок дистрибуције  $^{137}\text{Cs}$  дубље испод површине јер је она карактеристична за песковита земљишта [67], већ је цезијум на SP и KP премештен у ниже слојеве током претходне механичке манипулације земљишта. Више униформне расподеле  $^{137}\text{Cs}$  потврђује претходну претпоставку постављену на основу педолошке анализе (Поглавље 3.1.2) да је земљиште SP и KP модификовано под утицајем антропогеног дејства.

#### 4.2.2. Утицај физичко–хемијских особина земљишта

Иако концентрације активности природних радионуклида нису битно варирали у земљишту (Табела 13), коефицијенти Пирсонове корелационе анализе показивали су да постоје слабе, мада значајне ( $p < 0,05$ ), корелације између њих. Јаку корелацију показале су само активности  $^{238}\text{U}$  са дубином земљишта ( $p < 0,05$ ). С обзиром на то да су испитивани профили слични по својим физичко–хемијским особинама, недостатак јаких корелација могао је да се објасни диференцијалном мобилношћу природних радионуклида која је могла да настане између чланова једног радиоактивног низа или између чланова низова  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  за које је познато да се заједно појављују у природи [3, 15, 19].

Механизми транспорта конвекцијом, дифузијом или транспорт биолошког порекла, заједно са хемијским процесима као што су таложење, испирање, растварање, преципитација из подземних вода утичу на вертикалну и хоризонталну миграцију радионуклида [4, 5, 6, 86, 88]. Под утицајем ових процеса покретљивост радионуклида се мења и у зависности од њихових физичко–хемијских карактеристика као резултат се јавља да неки од чланова истог радиоактивног низа буде придодат низу или из њега одстрањен [3, 15, 19, 88]. У земљишту паркова су као индикација појаве нераванотеже у низу коришћени односи концентрација активности природних радионуклида, тј. вредности односа  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ ,



$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$  и  $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$  и испитане су њихове промене са дужином 0–50 cm што је представљено у Табели 14. Такође, корелационом анализом испитано је да ли су физичко–хемијска својства земљишта била у релацији са испитиваним односима активности, а ови резултати су дати у Табели 15.

Посматрајући заједно четири испитивана парка, вредности односа  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  у земљишту имали су вредности у интервалу 0,42–1,24. Сличне вредности у интервалу од 0,71 до 1,60 одређене су у површинским слојевима земљишта у Србији у студији Anagnostakis *et al.* (2001) [7]. У парковима је средња вредност  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  од 0,77 у слоју 0–20 cm била значајно мања ( $p < 0,05$ ) од вредности 0,95 у нижем слоју 20–50 cm. Две најниже вредности (0,42 на КР и 0,45 на ЗР) су искључене из анализе јер је концентрација активности  $^{238}\text{U}$  одређена са великом мерном несигурношћу. У већини узорака однос  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  је био  $< 1$  што је указивало на одступање од секуларне равнотеже у низу уранијума  $^{238}\text{U}$ .

Добро познати узрок одступања односа  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  од вредности 1 је већа уранијумова покретљивост у односу на релативну непокретност радијума у земљишту [6, 88]. Вредности односа  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  су управо показале значајну корелацију са варијацијама концентрација активности  $^{238}\text{U}$  ( $r = 0,92$ ,  $p < 0,001$ ) која имплицира да неравнотежа највероватније зависи од активности лабилне форме уранијума  $^{238}\text{U}$  за коју је утврђено да расте са порастом укупне активности  $^{238}\text{U}$  [39].

И основне физичко–хемијске особине земљишта: рН реакција, садржај карбоната и садржај хумуса показале су значајне корелације ( $p < 0,05$ ) са вредностима  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ . Мале промене рН и садржаја органске материје у присуству  $\text{CaCO}_3$  утичу на испирање уранил–комплекса дуж профила земљишта [15, 48]. Испирање уранијума је посебно заступљено у алкалном земљишту и праћено је његовим нагомилавањем у дубљим слојевима земљишта, а тиме и неравнотежом  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  односа по дубини профила [4, 88].

Најниже вредности  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  односа, које указују да постоји обогаћење  $^{226}\text{Ra}$  над  $^{238}\text{U}$ , нађене су само у површинским слојевима земљишта што је и слој најбогатији хумусом који има својство да везује радијум. У органској фракцији земљишта налазиле су се и до 10 пута веће концентрације радијума него у минералној (резидуалној) фракцији [15] и у складу са тим у парковима је нађена значајна негативна корелација између  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  и садржаја хумуса.

Табела 14. Промена односа концентрација активности  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ ,  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$  и  $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$  у земљишту паркова са дубином 0–50 cm.

Локација	Дубина (cm)	$^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$	$^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	$^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$
BG	0–10*	0,93	1,07	0,054	0,98	2,4
	0–10	0,83	1,25	0,063	1,17	6,0
	10–20	1,03	1,21	0,055	1,18	27,1
	20–30	1,07	1,22	0,052	0,83	–
	30–40	1,24	1,24	0,043	0,97	45,0
	40–50	0,90	1,18	0,051	0,74	41,4
$\bar{X}_{BG}$		1,00	1,19	0,053	0,98	24,4
$\sigma_{BG}$		0,15	0,07	0,006	0,18	19,6
ZP	0–10*	0,65	0,97	0,067	0,92	1,1
	0–10	0,45	0,85	0,080	1,36	1,2
	10–20	1,03	0,92	0,048	1,08	1,2
	20–30	0,92	0,90	0,044	1,21	3,9
	30–40	1,17	1,06	0,049	0,94	10,0
	40–50	0,92	0,89	0,034	0,92	26,9
$\bar{X}_{ZP}$		0,86	0,93	0,054	1,07	7,4
$\sigma_{ZP}$		0,26	0,07	0,020	0,18	10,2
SP	0–10*	0,82	0,94	0,063	0,82	2,4
	0–10	0,95	0,77	0,051	0,88	2,0
	10–20	0,79	0,84	0,057	1,03	3,0
	20–30	0,71	0,76	0,052	1,32	4,9
	30–40	0,84	0,70	0,031	1,26	4,5
	40–50	0,98	0,82	0,037	1,18	13,3
$\bar{X}_{SP}$		0,85	0,80	0,049	1,08	5,0
$\sigma_{SP}$		0,10	0,08	0,012	0,20	4,2
KP	0–10*	0,76	1,00	0,074	–	–
	0–10	0,42	1,24	**0,17 9	1,15	5,4
	10–20	0,56	0,91	0,088	0,95	3,4
	20–30	0,74	1,05	**0,11 7	1,13	3,4
$\bar{X}_{KP}$		0,62	1,10	0,114	1,10	4,1
$\sigma_{KP}$		0,16	0,10	0,050	0,05	1,2
Сумарно						
$X_{min}$		0,42	0,70	0,031	0,74	1,1
$X_{max}$		1,24	1,25	0,088	1,36	45,0
$\bar{X}$		0,85	0,99	0,055	1,05	10,4
$\sigma$		0,20	0,19	0,015	0,17	13,5
$C_{var}(\%)$		25	19	27	16	129

\* – узорковано на отвореном простору ван крошње

\*\* – вредности искључене из анализе

Уранијумов и торијумов низ се обично појављују заједно у изворном геолошком супстрату, а тиме и у земљишту насталом његовом трансформацијом [2, 3, 19]. Однос  $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$  најчешће има вредност већу од очекиване 1,1 у земљишту различитог геолошког порекла [54, 88] што је последица природно веће активности торијума од радијума повезана са специфичном минералном композицијом матичне стене. У овој студији, односи концентрација активности  $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$  били су у интервалу 0,70–1,25, а већина вредности нижа од 1,1.

$^{232}\text{Th}$  и  $^{226}\text{Ra}$  налазе се у најрезистентнијим фазама земљишта (као што су фракције песка и праха), али истовремено значајна фракција  $^{226}\text{Ra}$  се може наћи у најлабилнијим фазама земљишта [15, 39]. Вредности односа  $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$  у земљишту паркова показивале су значајне корелације са садржајима праха ( $p < 0,05$  позитивно) и песка ( $p < 0,05$  негативно) између којих су се  $^{232}\text{Th}$  и  $^{226}\text{Ra}$  највероватније фракционисали током процеса формирања земљишта. Јака и значајна корелација односа  $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$  одређена је са  $^{232}\text{Th}$  ( $p < 0,001$ , позитивно), а слабија са  $^{226}\text{Ra}$  ( $p < 0,05$ , негативно).  $^{232}\text{Th}$  као део најрезистентнијих фаза земљишта је боље описивао промене односа  $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$  него  $^{226}\text{Ra}$  који је делимично био усвојен од стране корена дрвећа у парковима будући да је у земљишту најчешће присутан у својој био–доступној форми [15] и чиме је његов утицај на однос активности умањен.

Олово  $^{210}\text{Pb}$  ( $t_{1/2} = 22,2$  год), припадник низа уранијума  $^{238}\text{U}$ , продукт је распада гаса радона  $^{222}\text{Rn}$ , потомка нуклида радијума  $^{226}\text{Ra}$ . Изотоп олова  $^{210}\text{Pb}$  састоји из фракције која настаје радиоактивним распадом у земљишту и тамо се задржава и фракције која настаје у атмосфери распадом дела радона ексхалираним из земљишта која се на земљиште континуално наноси из атмосфере сувом или влажном депозицијом [17]. Због тога се очекује да ће у површинском слоју земљишта  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$  однос активности бити већи од 1 и да ће та вредност опадати са дубином током продирања  $^{210}\text{Pb}$  у дубље слојеве земљишта и услед радиоактивног распада [58, 60]. У земљишту паркова, вредност односа  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$  била је у интервалу 0,70–1,36, а сличан интервал вредности 0,74–2,0 је објављен у студији Anagnostakis *et al.* (2001) у земљишту на подручју Србије [7]. Међутим, равнотежа између ових радионуклида је у неким слојевима земљишта била успостављена, а у неким није, без јасног тренда по дубини (Слика 24).

Табела 15. Резултати Пирсонове корелационе анализе између односа концентрација активности и физичко–хемијских особина земљишта.

	$^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$	$^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	$\ln$ ( $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$ )
$^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$	1	0,50 <sup>a</sup>	-0,68 <sup>c</sup>	0,50 <sup>a</sup>
$^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$		1		0,46 <sup>a</sup>
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$			1	
$\ln$ ( $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$ )				1
$^{238}\text{U}$	0,92 <sup>c</sup>		-0,72 <sup>c</sup>	
$^{235}\text{U}$		0,47 <sup>a</sup>		
$^{226}\text{Ra}$		-0,48 <sup>a</sup>		
$^{210}\text{Pb}$		-0,56 <sup>b</sup>	-0,48 <sup>a</sup>	
$^{232}\text{Th}$	0,54 <sup>a</sup>	0,81 <sup>c</sup>		
$^{40}\text{K}$				
$^{137}\text{Cs}$	-0,60 <sup>b</sup>	-0,43 <sup>a</sup>	0,54 <sup>a</sup>	-0,89 <sup>c</sup>
$\text{CaCO}_3$	0,49 <sup>a</sup>		-0,71 <sup>c</sup>	0,46 <sup>a</sup>
pH	0,45 <sup>a</sup>		-0,48 <sup>a</sup>	0,63 <sup>b</sup>
Песак		-0,52 <sup>a</sup>	-0,66 <sup>b</sup>	
Прах		0,52 <sup>a</sup>	0,51 <sup>a</sup>	
Глина			0,53 <sup>a</sup>	
Хумус	-0,48 <sup>a</sup>			-0,75 <sup>a</sup>
Дубина	0,49 <sup>a</sup>		-0,70 <sup>c</sup>	0,72 <sup>c</sup>

Ниво значајности: <sup>a</sup>p<0,05; <sup>b</sup>p<0,01; <sup>c</sup>p<0,001

Познато је да радионуклид  $^{137}\text{Cs}$  и фракција  $^{210}\text{Pb}$  депонована из атмосфере имају афинитет према истим честицама у земљишту, минералног и органског порекла, а дистрибуција  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{210}\text{Pb}$  по дубини земљишта је најчешће у јакој корелацији са садржајима органске материје [54, 88, 89, 90]. Органска материја од 4–5% у земљишту паркова била је акумулирана у површинском слоју дубине 0–10 cm (осим на КР), па се у том слоју могла очекивати и акумулација  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{210}\text{Pb}$ . Међутим, највећа активност  $^{210}\text{Pb}$  у парковима није детектована у површинском слоју, већ у слоју испод 10 cm, а истовремено у два профила земљишта  $^{137}\text{Cs}$  је спуштен ниже, испод 20 cm дубине. Из овог разлога одређени су и односи концентрација активности  $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$  да би се, барем грубо, анализирала редистрибуција  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{137}\text{Cs}$  по дубини земљишта. Вредности односа показале су лог–нормалну расподелу, тако да су вредности истог реда величине у интервалу 1,1–6,0 одређене у слоју 0–40 cm дубине и за ред величина веће вредности 13,3–

45,0 одређене су у најнижем испитиваном слоју дубине 40–50 cm, али и одмах испод 10 cm дубине на локацији BG (Табела 14). Јака негативна корелација  $\ln(^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs})$  са концентрацијама активности  $^{137}\text{Cs}$  ( $p < 0,001$ ) и садржајем хумуса ( $p < 0,01$ ) била је повезана са постепеним падом њихових вредности са дубином. Dörr и Münnich (1989) су објаснили да се  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{210}\text{Pb}$  у земљишту вертикално транспортују заједно са органском материјом, при чему је  $^{210}\text{Pb}$  везан за њену нерастворљиву фракцију због чега се његово спуштање одвија брже у неутралном и благо алкалном земљишту [89]. У слабо алкалном земљишту паркова, средња позитивна корелација ( $p < 0,05$ ) је нађена између  $\ln(^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs})$  и pH реакције и садржаја  $\text{CaCO}_3$ . Тенденција  $^{210}\text{Pb}$  да се акумулира дубље у земљишту повезана је са његовом већом сорпцијом у алкалним условима ( $\text{pH} > 7$ ) [38], а нарочито у присуству већег садржаја  $\text{CaCO}_3$  ( $> 10\%$ ) [91]. Слични вертикални профили  $^{210}\text{Pb}$  су нађени у земљишту градског подручја (Љубљана, Словенија) такође окарактерисаног као карбонатно и слабо алкално [90]. Заједничке корелације између  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  и  $\ln(^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs})$  са истим особинама земљишта и пораст њихових вредности са дубином јасан су показатељ да на вертикалну дистрибуцију радионуклида главни утицај имају физичко–хемијске особине земљишта.

Вредности односа активности  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  налазиле су се у интервалу 0,031–0,088 у земљишту паркова, при чему две нетипичне вредности (0,179 и 0,117) повезане са великом мерном несигурношћу  $^{238}\text{U}$  нису анализиране. Вредности  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  су опадале са дубином односно биле у негативној корелацији са дубином ( $p < 0,001$ ), још једном демонстрирајући миграцију и акумулацију  $^{238}\text{U}$  у дубљим слојевима земљишта. Односи  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  су зависили од свих испитиваних особина земљишта осим хумуса (Табела 15). У студијама варијабилности односа изотопа  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  у животној средини је откривено да су механизми који контролишу изотопску фракционацију  $^{238}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  повезани са оксидо–редукционим реакцијама које доводе до трансформација уранијума између његова два главна оксидациона стања, растворљивог  $\text{U}(+VI)$  и нерастворљивог  $\text{U}(+IV)$  [92]. Јака, негативна и значајна корелација ( $p < 0,001$ ) између односа  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  и садржаја  $\text{CaCO}_3$  може се објаснити великом растворљивошћу уранијума  $\text{U}(+VI)$  у присуству карбоната и формирањем уранијум–карбонатних комплекса који представљају главану форму транспорта уранијума у алкалном земљишту [12, 48].

#### 4.3. Радионуклиди у земљишту у близини термоелектрана на угаљ

Дескриптивна статистика физичко–хемијских особина земљишта у узорцима површинског слоја земљишта (0–5 cm) сакупљеним у близини термоелектрана „Морава“ (ТЕМ), „Колубара“ (ТЕК), „Никола Тесла“ Блок А (ТЕНТ А) и Блок Б (ТЕНТ Б) приказана је у Табели 16, а концентрације активности природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  у Табели 17.

Испитивани узорци земљишта у околини ТЕ Морава су према текстурној класи прашкасто глиновите иловаче и прашкасте иловаче, док један узорак припада прашкастим глинушама. Узорци се, дакле, разликују према механичком саставу на шта указује и коефицијент варијације садржаја глине од 34,6%. Доминантна фракција у испитиваним узорцима је фракција праха и у односу на остале локације њена средња вредност од 65,6% је највећа. Три испитивана узорка су бескарбонатна и они имају умерено киселу до слабо киселу реакцију земљишта у води. Остали узорци су према активној киселости неутрални и слабо алкални. Садржај хумуса налазио се опсегу 2,08–4,06%.

У околини ТЕ Колубара испитивани узорци су тежег механичког састава у односу на ТЕ Морава. Они су према текстурној класи прашкасто глиновите иловаче, прашкасте глине и глине, док један узорак припада прашкастој иловачи. Садржај глине се креће од 13,0–57,8% са коефицијентом варијације од 40,9%. Већина узорака је умерено до слабо киселе реакције, док постоје и два узорка неутралне реакције. Пет узорака је било бескарбонатно, док је у осталим узорцима забележен јако низак садржај карбоната. Садржај хумуса се кретао од 2,46–5,56%, са коефицијентом варијације од 27,9%.

У околини ТЕНТ А испитивани узорци земљишта били су разноврсне текстуре. Половина узорака припада глиновитим иловачама, али се срећу и текстурне класе прашкасто–глиновите иловаче, прашкасте глине, прашкасте иловаче и песковите иловаче. Највећа варијација у подацима се јавља код садржаја фракције песка. Испитивани узорци имају слабо до умерено алкалну и неутралну реакцију. Према садржају  $\text{CaCO}_3$  сви узорци су карбонатни, а земљиште је слабо до веома слабо кречно, док је само један узорак средње кречан. Средњи садржај хумуса у површинским слојевима износио је 3,68%, са коефицијентом варијације од 27,3%.

У околини ТЕНТ Б испитивани узорци земљишта су теже текстуре. Већина узорака припада прашкасто глиновитим иловачама, али се срећу и текстурне класе прашкасте глине и глиновите иловаче. Садржај фракције глине се креће од 28,0–49,1% са ниским коефицијентом варијације. Четири узорка су безкарбонатна, док међу осталим узорцима има и веома слабо и слабо кречних, али и два узорка који су јако кречни. Сходно томе, код карбонатних узорака преовлађује слабо алкална и умерено алкална реакција, док су безкарбонатни узорци слабо кисели, а један узорак је јако киселе реакције. Садржај хумуса варирао је 33,0%, и износио просечно 3,06%.

Вредности концентрација активности налазиле су се у интервалу ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 15–117 за  $^{238}\text{U}$ , 0,8–4,0 за  $^{235}\text{U}$ , 21–115 за  $^{226}\text{Ra}$ , <3–65 за  $^{210}\text{Pb}$ , 20–69 за  $^{232}\text{Th}$ , 324–736 за  $^{40}\text{K}$  и <0,10–54 за  $^{137}\text{Cs}$ . Вредности концентрација активности долазиле су из нормалне расподеле након тога што је један узорак (Јанковац, у близини ТЕК) статистички нетипичних вредности активности искључен из анализе. Измерени интервали концентрација активности могу се упоредити са вредностима забележеним у немодификованом земљишту на територији Београда [42] (Табела 2). Посматрајући појединачне локације, средње вредности концентрација активности у земљишту увек су биле веће од средњих вредности у земљишту из извештаја UNSCEAR (2010) [16] за природне радионуклиде, осим у случају  $^{238}\text{U}$  на ТЕНТ А и  $^{232}\text{Th}$  на ТЕНТ А и ТЕМ (Табела 17). Међутим, у поређењу са активностима у земљишту у близини термоелектрана на угаљ у свету, максималне вредности концентрација веће и од  $200 \text{ Bq kg}^{-1}$  за  $^{238}\text{U}$  и  $^{226}\text{Ra}$  измерене су на подручју Бразила [60] и Мађарске [52], као и веће од  $70 \text{ Bq kg}^{-1}$  и  $900 \text{ Bq kg}^{-1}$  у случају  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$ , респективно на подручју Шпаније [58] и Кине [59].

Ако би се поредиле средње вредности концентрација активности свих природних радионуклида у земљишту у околини четири испитиване термоелектране (Табела 17), оне би биле поређане у низу: ТЕК > ТЕМ ~ ТЕНТ В > ТЕНТ А. Може се приметити да су средње вредности концентрација активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{232}\text{Th}$  приближно два пута веће у близини ТЕК у односу на ТЕНТ А, међутим оне се могу приписати природним нивоима активности карактеристичним за подручје слива реке Колубаре [11].

Табела 16. Дескриптивна статистика физичко–хемијских параметара земљишта у близини четири термоелектране.

		Дијаметар фракција								pH <sub>H2O</sub>	pH <sub>KCl</sub>	Хумус (%)	СаСО <sub>3</sub> * (%)
		2000-50 μm	2000-200 μm	200-50 μm	50-2 μm	50-10 μm	10-2 μm	<2 μm	<10 μm				
ТЕМ (n=10)	$X_{min}$	1,6	1,5	0,1	52,9	19,1	13,3	12,3	27,1	6,09	5,50	2,08	0,00
	$X_{max}$	15,6	14,7	3,6	77,4	62,6	36,0	41,9	77,8	7,59	7,20	4,06	3,9
	$\bar{X}$	8,2	7,3	0,9	65,6	40,2	25,4	26,2	51,6	6,85	6,39	3,1	0,9
	$\sigma$	5,2	4,7	1,0	8,1	13,5	7,2	9,1	15,7	0,58	0,62	0,6	1,2
	$C_{var}(\%)$	63,3	64,4	109,6	12,3	33,6	28,5	34,6	30,5	8,4	9,7	19,4	94
ТЕК (n=8)	$X_{min}$	0,72	0,5	0,05	38,6	13,4	14,0	13,0	27,0	5,61	5,14	2,47	0,0
	$X_{max}$	31,1	4,6	26,5	69,8	46,2	38,9	57,8	83,0	7,37	6,86	5,56	0,4
	$\bar{X}$	7,9	1,5	6,4	58,4	33,3	25,1	33,8	58,8	6,40	5,70	3,54	0,4
	$\Sigma$	10,1	1,4	8,8	10,1	12,1	9,8	13,8	19,4	0,57	0,62	1,0	0,01
	$C_{var}(\%)$	127	90,9	137,2	17,3	36,5	38,9	40,9	33,0	9,0	10,8	27,9	1,5
TENT A (n=12)	$X_{min}$	10,0	3,2	14	12,6	6,6	5,0	11,3	17,3	7,06	6,56	1,78	0,4
	$X_{max}$	76,1	46,8	29,3	61,9	35,4	27,6	43,1	63,7	8,29	7,22	5,47	9,6
	$\bar{X}$	26,8	10,3	16,6	41,6	26,0	15,6	31,6	47,2	7,53	6,88	3,7	2,4
	$\sigma$	18,5	12,1	8,9	12,4	7,3	6,3	8,6	13,0	0,33	0,18	1,0	2,4
	$C_{var}(\%)$	69,0	118,0	53,9	29,9	28,1	40,0	27,3	27,5	4,3	2,6	27,2	100
TENT B (n=12)	$X_{min}$	3,8	1,0	2,6	46,3	29,2	17,1	31,8	52,3	5,37	4,68	1,20	0,0
	$X_{max}$	10,8	3,4	8,9	64,2	43,6	20,7	49,1	66,2	7,93	7,25	4,22	19,1
	$\bar{X}$	5,7	1,8	3,8	54,4	35,3	19,1	39,9	59,0	7,0	6,34	3,06	6,0
	$\sigma$	2,2	0,7	1,8	5,5	4,8	1,2	5,8	4,9	0,85	0,82	1,0	7
	$C_{var}(\%)$	38,1	39,3	47,7	10,1	13,6	6,4	14,5	8,3	12,1	13,0	33,0	116

\*—безкарбонатно земљиште искључено је из анализе



Табела 17. Дескриптивна статистика вредности концентрација активности у земљишту у близини четири термоелектране.

		$^{238}\text{U}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{235}\text{U}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{226}\text{Ra}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{210}\text{Pb}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{232}\text{Th}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{40}\text{K}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )	$^{137}\text{Cs}$ (Bq·kg <sup>-1</sup> )
ТЕМ (n=10)	$X_{min}$	28 ± 7	0,9 ± 0,1	36 ± 3	<8	37 ± 3	525 ± 48	<0,1
	$X_{max}$	57 ± 19	4 ± 1	44 ± 4	57 ± 18	51 ± 5	736 ± 62	28 ± 2
	$\bar{X}$	40,2	2,4	40,0	51,3	44,6	581	19,0
	$\sigma$	7,6	0,9	2,7	3,4	5,2	62,8	4,7
	$C_{var}(\%)$	18,9	38,1	6,8	6,5	11,6	10,8	24,8
	$G_1$	1,05	0,15	-0,16		-0,15	2,57	-1,48
	$G_2$	1,63	-0,13	-0,77		-1,11	2,64	1,79
ТЕК (n=8)	$X_{min}$	27 ± 13	2,3 ± 0,2	44 ± 4	<5	54 ± 5	419 ± 36	21 ± 2
	$X_{max}$	117 ± 26	6 ± 1	115 ± 10	62 ± 29	69 ± 6	622 ± 53	54 ± 5
	$\bar{X}$	58,9	3,2	62,1	49,0	59,5	544	38,4
	$\sigma$	27,5	1,2	22,1	4,2	5,0	68,8	9,3
	$C_{var}(\%)$	46,7	38,0	35,6	8,7	8,4	12,6	24,2
	$G_1$	1,73	2,65	2,84		0,95	-0,79	-0,44
	$G_2$	1,57	3,22	3,78		0,36	0,08	1,18
ТЕНТА (n=12)	$X_{min}$	16 ± 6	0,8 ± 0,1	25 ± 3	<4	20 ± 2	389 ± 33	6,1 ± 0,6
	$X_{max}$	42 ± 6	2,4 ± 0,3	45 ± 4	56 ± 12	50 ± 4	683 ± 58	48 ± 4
	$\bar{X}$	29,8	1,9	36,6	45,5	36,8	516	23,1
	$\sigma$	7,4	0,5	5,2	7,6	8,2	87,7	12,1
	$C_{var}(\%)$	24,7	24,3	14,2	16,7	22,4	17,0	52,6
	$G_1$	0,17	-1,68	-0,94		-0,70	0,40	1,14
	$G_2$	0,00	1,07	0,91		0,27	-0,19	0,48
ТЕНТ В (n=12)	$X_{min}$	15 ± 3	1,0 ± 0,1	21 ± 2	<3	24 ± 2	324 ± 28	2,1 ± 0,3
	$X_{max}$	57 ± 20	3,3 ± 0,3	56 ± 6	65 ± 11	62 ± 6	723 ± 63	20 ± 2
	$\bar{X}$	41,6	2,3	43,0	50,3	48,1	596,8	12,7
	$\sigma$	12,1	0,7	11,1	10,5	11,9	116,2	6,4
	$C_{var}(\%)$	29,1	29,2	25,9	20,9	24,8	19,5	50,9
	$G_1$	-1,46	-0,15	-1,29		-1,63	-1,71	-1,26
	$G_2$	0,52	-0,06	-0,17		0,24	0,95	-0,56

Резултати једнофакторске анализе ANOVA примењене у циљу одређивања значајних разлика концентрација активности између четири испитиване локације потврдили су да су активности  $^{238}\text{U}$  ( $p < 0,01$ ),  $^{226}\text{Ra}$  ( $p < 0,001$ ) и  $^{232}\text{Th}$  ( $p < 0,0001$ ) значајно веће на локацији ТЕК него на осталим локацијама, док се активности  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{40}\text{K}$  по локацијама нису разликовале. Интервали у којима су се налазили коефицијенти варијација концентрација активности у земљишту на појединачним локацијама били су 19–30% у случају  $^{238}\text{U}$ , 29–38 за  $^{235}\text{U}$ , 7–36% за  $^{226}\text{Ra}$ , 7–21% за  $^{210}\text{Pb}$ , 8–25% за  $^{232}\text{Th}$  и 11–20% у случају  $^{40}\text{K}$ . Може се приметити да природни радионуклиди  $^{40}\text{K}$  и  $^{232}\text{Th}$  варирају у мањој мери, па се може закључити да њихове концентрације активности одражавају нивое терестријалног гама зрачења повезаног са геологијом испитиваног земљишта.

Статистички значајне корелације ( $p < 0,001$ ) су одређене између концентрација активности радионуклида  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{238}\text{U}$  у земљишту. Корелациони коефицијенти између  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{232}\text{Th}$  ( $r = 0,92$ ),  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  ( $r = 0,73$ ),  $^{238}\text{U}$  и  $^{226}\text{Ra}$  ( $r = 0,71$ ) указују да они претежно потичу из заједничког родитељског материјала тј. матичне стене. Слабија корелација успостављена са  $^{238}\text{U}$  може се објаснити уранијумовом већом покретљивошћу односно његовом лакшом мобилизацијом у оксидационим условима у односу на  $^{232}\text{Th}$  и  $^{226}\text{Ra}$ , релативно непокретне радионуклиде у земљишту. Значајне ( $p < 0,001$ ), али слабије, корелације између  $^{40}\text{K}$  и  $^{238}\text{U}$  ( $r = 0,42$ ) и  $^{40}\text{K}$  и  $^{232}\text{Th}$  ( $r = 0,52$ ) могу се објаснити уклањањем калијима и његовог радиоактивног изотопа из површинских слојева земљишта покривених вегетацијом које настаје услед биолошких активности и зависе од дистрибуције кореновог система у земљишту [5].

#### 4.3.1. $^{137}\text{Cs}$ у земљишту у близини термоелектрана на угаљ

Концентрације активности  $^{137}\text{Cs}$  су се у површинским слојевима земљишта у близини термоелектрана налазиле у интервалу  $2,1\text{--}54,0 \text{ Bq kg}^{-1}$ , осим једне вредности испод  $m\text{dc}$  на локацији ТЕМ ( $^{137}\text{Cs} < 0,10 \text{ Bq kg}^{-1}$ ). Сличне вредности у опсегу  $3,0\text{--}68,0 \text{ Bq kg}^{-1}$  су измерене на истим локацијама у ранијем периоду (2003–2008) [61].  $^{137}\text{Cs}$  је у земљишту варирао у интервалу 24–53% међу испитиваним локацијама. Оваква нехомогена дистрибуција у површинским слојевима земљишта је очекивана и карактеристична за радиоцезијум Чернобиљског порекла [61] и није

последица дејстава термоелектрана на угаљ. Пирсоновом анализом одређени су значајни коефицијенти корелације средње јачине између активности  $^{137}\text{Cs}$  и природних радионуклида  $^{238}\text{U}$  ( $r = 0,37$ ),  $^{226}\text{Ra}$  ( $r = 0,44$ ) и  $^{232}\text{Th}$  ( $r = 0,40$ ). Ова веза је вероватно одражавала везу природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  са истим компонентама земљишта иако је њихово порекло у земљишту различито. Примећено је и да је концентрација активности  $^{137}\text{Cs}$  била значајно већа на локацији ТЕК ( $p < 0,0001$ ) и њена средња вредност на ТЕК приближно два пута већа него на осталим локацијама, исто као и у случају природних радионуклида.

#### 4.3.2. Утицај физичко–хемијских особина земљишта

Једнофакторска анализа примењена је ради одређивања значајних разлика које показују особине земљишта између четири испитиване локације. Значајно мања рН вредност ( $p < 0,01$ ) одређена је на локацији ТЕК и показивала је да је земљиште у близини ове термоелектране киселе реакције (6,4) у односу на више рН вредности на осталим локацијама (6,9–7,5). Истовремено су на локацији ТЕК одређене највеће концентрације активности радионуклида  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Слични резултати испитивања радиоактивности у кругу радијуса 1 km у непосредној близини термоелектрана на угаљ на подручју Бразила су показали значајано нагомилавање природних радионуклида у површинским слојевима земљишта који су показивали и најише киселу реакцију, а ова је редуквала миграцију и спречавала инфилтрацију радионуклида у ниже слојеве [60].

Супротно томе, земљиште на локацијама уз ТЕНТ А, на којој су измерене најмање концентрације активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  (Табела 17), било је алкалне реакције ( $p\text{H}=7,5$ ) и показивало значајно већу рН вредност ( $p < 0,01$ ) у односу на рН вредности на осталим локацијама (6,4–7,0). На истој локацији ТЕНТ А и средњи процентуални садржај фракције најкрупнијих честица (2000–50  $\mu\text{m}$ ) био је значајно већи ( $p < 0,0001$ ) и износио 26,8% у односу на земљиште осталих термоелектрана где је та вредност била  $< 8,2\%$ . На крају, локација ТЕМ се издвојила као земљиште се највећим процентуалним садржајем од 65,6% ( $p < 0,0001$ ) финих честица (дијаметра 50–2  $\mu\text{m}$ ). Садржаји карбоната и хумуса се нису статистички разликовали по локацијама.

Табела 18. Пирсонови коефицијенти корелације између испитиваних радионуклида међусобно и са особинама земљишта у близини четири термоелектране на угаљ

	<sup>238</sup> U	<sup>226</sup> Ra	<sup>210</sup> Pb	<sup>232</sup> Th	<sup>40</sup> K	<sup>137</sup> Cs
<sup>238</sup> U	1	0,71**	0,50	0,73**	0,42**	0,37
<sup>226</sup> Ra		1	0,68**	0,92**	0,36	0,44*
<sup>210</sup> Pb			1	0,66*		
<sup>232</sup> Th				1	0,52**	0,40
<sup>40</sup> K					1	
<sup>137</sup> Cs						1
pH <sub>KCl</sub>	-0,63**	-0,74**	-0,58*	-0,73**		-0,38
CaCO <sub>3</sub>	-0,46*	-0,62**	-0,52	-0,59**	-0,37	-0,44*
Хумус						0,40*
Песак	-0,41*	-0,46*		-0,56**		
Прах	0,46*	0,38		0,42*		
Глина				0,37	0,54**	

Ниво значајности: p<0,05; \*p<0,01; \*\*p<0,001

Резултати Пирсонове корелационе анализе добијени разматрањем свих испитиваних узорака у околини термоелектрана (n=42) представљени су у Табели 18. Када се ради о механичком саставу земљишта, значајне корелације у испитиваним *флувисолима* одређене су између радионуклида <sup>40</sup>K (p<0,001) и <sup>232</sup>Th (p<0,05) и садржаја фракције глине (<2 μm), што указује да су највеће активности у земљишту биле сконцентрисане у најфинијим фракцијама земљишта. Студија Blanco–Rodríguez *et al.* (2008) је показала да су концентрације активности фракција глине биле у јакој корелацији са укупном концентрацијом активности земљишта из које је глина екстрахована [39].

Активности <sup>238</sup>U, <sup>226</sup>Ra и <sup>232</sup>Th су биле средње корелисане са фракцијама праха позитивно и фракцијама песка негативно (Табела 18). Гранулометријски састав испитиваних *флувисола* повезан је сталним или сезонским засићењем водом што утиче на мобилност радионуклида у површинским слојевима земљишта. Вода лако протиче кроз земљишта већег садржаја песка чије честице су хемијски инертне због своје мале специфичне површине, док честице праха веће специфичне површине бивају ношене воденим током [86].

Пирсонова анализа показала је значајну корелацију између активности <sup>137</sup>Cs и садржаја органске материје (p<0,001) у узорцима *флувисола*. Иако је растворљивост радиоактивног цезијума велика, сматра се да је већина

радиоцезијума подложна неререверзибилној сорпцији у земљишту на честицама глине и органске материје [15].

Значајне негативне корелације одређене су између концентрација активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  и садржаја калцијум–карбоната. Сходно томе и негативне корелације одређене су са вредностима рН са радионуклидима  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , осим са  $^{40}\text{K}$ , што указује да је концентрација активности на свим локацијама опадала са порастом рН земљишта и садржајем калцијум–карбоната. Слично томе, у студији Navas *et al.* (2011) највеће концентрације активности  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  су нађене у земљишту типа *карбонатни флувисол* у слојевима земљишта у којима су карбонати били излужени [88]. Такође, у студији Tsai *et al.* (2009), негативне корелације рН са активностима радионуклида уранијумове и торијумове серије су објашњене тиме да уколико су се радионуклиди нашли у течној фази земљишта неутралне или алкалне реакције, утолико је било теже да опет буду сорбовани/фиксирани назад на чврстој фази земљишта [56].

#### 4.3.3. Утицај удаљености од термоелектрана на угаљ

Једнофакторска анализа ANOVA примењена је и у циљу одређивања значајних разлика између особина земљишта и концентрација активности у појасевима различите удаљености од термоелектрана независно од локације. Изабране су три зоне: у непосредној близини термоелектрана на угаљ радијуса 0–1 km (зона I), затим 1–2 km (зона II) и на већој удаљености радијуса 2–6 km (зона III). Резултати једнофакторске анализе варијансе приказане су у Табели 19. заједно са значајним разликама између појасева I и II, I и III и II и III. За испитиване величине однос варијансе између група и унутар група представљен је  $F$ -односом и нивоом значајности тј.  $p$ -вредношћу.

У Табели 19. се може видети да се статистички значајне разлике ( $p < 0,05$ ) могу наћи у зонама I (0–1 km), II (1–2 km) и III (2–6 km) између средњих вредности процентуалног садржаја фракција крупног песка (200–50  $\mu\text{m}$ ), финог праха (10–2  $\mu\text{m}$ ) и физичке глине ( $< 10\mu\text{m}$ ). У зони 0–1 km, у непосредној близини термоелектрана, примећује се нагомилавање најкрупнијих честица (200–50  $\mu\text{m}$ ) и недостатак најфинијих честица ( $< 10\mu\text{m}$ ) земљишта, што се може објаснити интеракцијама између честица земљишта и пепела редистрибуираних са депонија

пепела у овој зони (0–1 km) [53]. У студији Башчаревић *et al.* (2006) је показано да у узорцима електрофилтерског пепела сакупљеним на депонијама термоелектрана ТЕМ, ТЕК, ТЕНТ А и ТЕНТ Б, 50% масеног удела заузимају честице пречника 15–20  $\mu\text{m}$ , док остатак заузимају честице пречника већег од 20  $\mu\text{m}$ , при чему је удео честица  $<2 \mu\text{m}$  занемарљиво мали [93]. Може се предпоставити да је сталан унос честица пепела са депонија стационарним у близини испитиваних термоелектрана резултирао обогаћивањем земљишта крупнијим честицама (2000–50  $\mu\text{m}$ ) и смањивањем процентуалног садржаја финијих честица ( $<10 \mu\text{m}$ ) чији садржај је у зони 0–1 km био значајно мањи у поређењу са вредностима на већим удаљеностима.

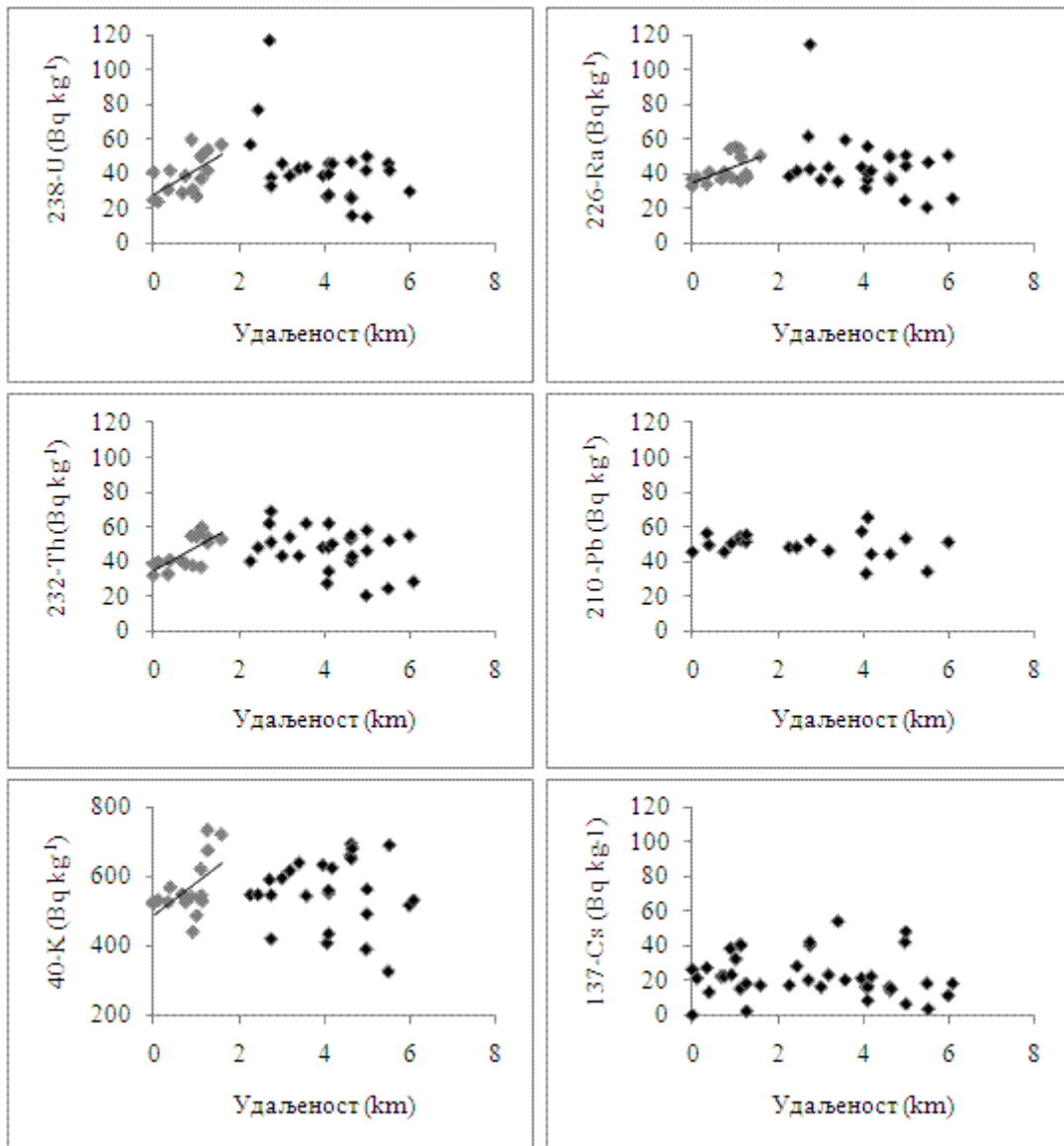
Табела 19. Анализа варијансе особина земљишта и концентрација активности радионуклида са удаљеношћу од термоелектране.

	I (0-1 km)	II (1-2 km)	III (2-6 km)	I/II	I/III	II/III	F – однос	p – вредност
2000-50 $\mu\text{m}$ (%)	<b>20,4</b>	5,8	11,4	*			2,5	$<0,1$
2000-200 $\mu\text{m}$ (%)	6,3	2,7	5,8					
200-50 $\mu\text{m}$ (%)	<b>14,1</b>	3,1	5,6	*	*		5,19	$<0,05$
50-2 $\mu\text{m}$ (%)	50,4	54,8	55,5					
50-10 $\mu\text{m}$ (%)	34,8	33,4	32,9					
10-2 $\mu\text{m}$ (%)	<b>15,6</b>	21,4	22,6	*	*		3,60	$<0,05$
$<2 \mu\text{m}$ (%)	29,2	39,4	32,1					
$<10 \mu\text{m}$ (%)	<b>44,8</b>	60,8	55,7	*	*		3,44	$<0,05$
OM (%)	3,3	2,2	3,8					
CaCO <sub>3</sub> (%)	<b>1,9</b>	0,4	2,7	*			6,54	$<0,05$
pH (H <sub>2</sub> O)	<b>7,3</b>	6,5	7,0	*			2,52	$<0,1$
pH (KCl)	<b>6,7</b>	5,9	6,4	*			2,86	$<0,1$
<sup>238</sup> U	<b>34,9</b>	48,5	41,9	*			7,12	$<0,05$
<sup>235</sup> U	2,0	2,6	2,4					
<sup>226</sup> Ra	41,0	45,0	45,1					
<sup>232</sup> Th	41,2	52,3	46,7	*			1,97	$<0,1$
<sup>40</sup> K	<b>521,0</b>	638,7	556,7	*		*	3,48	$<0,05$
<sup>210</sup> Pb	49,0	51,2	46,9					
<sup>137</sup> Cs	22,4	22,0	21,2					

(Вредности значајно различите дате су болдираним цифрама.)

У Табели 19. може се запазити и да су се средњи садржаји калцијум-карбоната и рН вредности у зони 0–1 km значајно разликовали од оних у зони 1–2 km ( $p < 0,05$ ), али не и у односу на зону 2–6 km. Постепена промена механичког састава, садржаја CaCO<sub>3</sub> и вредности рН утицала је и на прерасподелу концентрација активности, тако да су најмање средње вредности активности <sup>238</sup>U (34,9 Bq kg<sup>-1</sup>), <sup>232</sup>Th (41,2 Bq kg<sup>-1</sup>) и <sup>40</sup>K (521 Bq kg<sup>-1</sup>) измерене у непосредној близини термоелектрана. Резултати Пирсонове анализе показали су да постоје и

значајне корелације између концентрација активности природних радионуклида и растојања у зони 0–2 km:  $^{238}\text{U}$  ( $r = 0,63$ ,  $p < 0,01$ ),  $^{226}\text{Ra}$  ( $r = 0,54$ ,  $p < 0,05$ ),  $^{232}\text{Th}$  ( $r = 0,67$ ,  $p < 0,01$ ),  $^{40}\text{K}$  ( $r = 0,55$ ,  $p < 0,05$ ) и  $^{210}\text{Pb}$  ( $r = 0,45$ ,  $p < 0,05$ ). Промена концентрација активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{137}\text{Cs}$  са растојањем 0–6 km приказана је на на Слици 25. на којој се може приметити линеарни пораст концентрација активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  са растојањем 0–2 km, као и одсутност неке одређене зависности од растојања у зони 2–6 km.



Слика 25. Концентрације активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$  у површинским слојевима земљишта у кругу полупречника 6 km око испитиваних термоелектрана.

У области 0–1 km, алкална рН реакција земљишта (7,1–7,9) у присуству карбоната (0,4–3,9%) је и у овом случају погодовала формирању уранијум–карбонатних комплекса заслужним за транспорт  $^{238}\text{U}$  у земљишту [48]. Испирање и преципитација карбоната под утицајем рН су најзначајнији фактори који утичу на растворљивост природних радионуклида (нарочито  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$ ), а тиме и на њихову миграцију [88]. Узрок ниже активности радионуклида може бити и њихово уклањање из површинских слојева земљишта у непосредној близини термоелектрана услед присуства дренажних вода чија би интензивнија циркулација у више песковитом земљишту могла да доведе до спуштања финијих честица за које су радионуклиди везани у ниже слојеве земљишта.

У области 1–2 km, концентрације активности су се постепено повећавале заједно са значајним смањењем рН вредности (6,0–6,4) и садржајем карбоната (0–0,4%). На пораст активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и нарочито  $^{40}\text{K}$  (Слика 25) утицало је испирање Са–карбоната из површинског слоја земљишта које је у овој области повезано и са порастом садржаја финих честица (<10  $\mu\text{m}$ ) чији средњи садржај порасте од 44,8% у појасу 0–1 km до 60,8% у појасу 1–2 km, а познато је да потенцијал финих честица да адсорбују радионуклиде (или да их укључе у своју кристалну решетку) расте са њиховом специфичном површином која је највећа за честице глине (<2  $\mu\text{m}$ ) [15].

#### 4.4. Моделовање вишеструком линеарном регресијом

Резултати мерења концентрација активности радионуклида и испитиваних особина земљишта у циљу поређења њихових вредности одређених у антропогено модификованом у земљишту пољопривредном, урбаном и индустријском представљени су у Табели 20. У овој табели се може видети да се особине земљишта као што су фракција глине и рН вредност разликују на све три испитиване локације, као и вредности концентрације активности  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и  $^{40}\text{K}$ . Међутим, резултати ANOVA теста су представљени само за групе података за које је на основу Левеновог теста показано присуство хомогених варијанси. Из претходног се може закључити да разлике између испитиваних група постоје, али статистички не могу бити прихваћене, па експерименталне резултате треба анализирати на други начин.



Табела 20. Поређење резултата мерења у земљишту третираном фосфатним ђубривима (пољопривредно), урбаном и у непосредној близини термоелектрана на угаљ (индустријско).

	Пољопривредно	Урбано	Индустријско	П/У	П/И	У/И	F – однос	p – вредност
2000-50 $\mu\text{m}$ (%)	9,8 (2,2-16,1)	19,9 (6,6-33,0)	14,0 (0,7-76,1)	*			3,77	<0,05
50-2 $\mu\text{m}$ (%)	53,4 (50,7-56,3)	55,1 (47,8-66,2)	53,7 (12,6-77,4)					
<2 $\mu\text{m}$ (%)	36,8 (33,1-43,3)	25,3 (20,4-33,2)	32,2 (11,3-57,8)	*	*	*		
ОМ (%)	1,3 (0,5-2,8)	3,3 (1,3-5,4)	3,0 (0-5,56)	*	*			
CaCO <sub>3</sub> (%)	2,3 (0,2-10,3)	16,1 (3,7-26,0)	2,1 (0-19,2)	*		*		
pH (H <sub>2</sub> O)	6,6 (5,3-7,4)	7,8 (7,4-8,1)	7,0 (5,4-8,3)	*	*	*		
pH (KCl)	7,7 (6,9-8,3)	7,3 (6,9-7,6)	6,4 (4,7-7,3)	*	*	*		
<sup>238</sup> U	67,4 (15-117)	34,0 (14-46)	41,2 (49-90)	*	*		25,84	<0,0001
<sup>235</sup> U	3,6 (2,7-4,6)	2,0 (1,2-3,4)	2,4 (0,8-6,0)	*	*	*	24,71	<0,0001
<sup>226</sup> Ra	48,0 (39-59)	39,9 (33-50)	44,1 (21-115)					
<sup>232</sup> Th	53,3 (45-62)	38,6 (28-50)	46,2 (20-69)	*	*	*		
<sup>40</sup> K	640 (570-710)	500 (420-580)	600 (320-740)	*	*	*		
<sup>137</sup> Cs	18,8 (0-54)	13,7 (0,7-36)	21,2 (1,8-35)					

У досадашњој анализи је примећено да дистрибуција концентрација активности природних радионуклида и произведеног <sup>137</sup>Cs у антропогено модификованом у земљишту може бити повезана тј. описана основним особинама које то земљиште карактеришу. Може се онда поставити питање да ли се нивои концентрација активности радионуклида могу предвидети на основу познатих особина земљишта.

Да би се ова хипотеза испитала примењен је метод вишеструке линеарне регресије којом се понашање зависно променљиве величине (концентрације активности једног радионуклида у земљишту) предвиђа на основу више независно променљивих величина (испитиване физичко–хемијске особине земљишта). Овом

анализом су обухваћени сви испитиване узорци, којих је било укупно 80, независно од локације и дубине њиховог узорковања.

Посматрајући све измерене концентрације активности, резултати једнофакторске анализе варијансе су показали да се природни радионуклидаи  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  и произведени  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту у овом истраживању значајно разликују у две области које су биле дефинисане вредношћу рН у КС1 земљишта и то: у интервалу 4,6–7,0 (кисела до неутрална) и 7,1–7,6 (слабо до средње алкална). Вредности концентрација активности груписане на овај начин (на основу вредности рН) показале су да унутар група прате нормалну расподелу.

За радионуклид  $^{238}\text{U}$ , резултати ANOVA теста су показали да је средња вредност концентрација активности од  $46,5 \text{ Bq kg}^{-1}$  одређена у нижем интервалу рН (4,6–7,0) била значајно већа ( $p < 0,001$ ) у односу на вредност  $33,7 \text{ Bq kg}^{-1}$  одређену у вишем интервалу рН (7,1–7,6). Слично томе, значајне разлике у ова два рН интервала уочене су и за све остале концентрације активности радионуклида ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ):  $^{235}\text{U}$  (2,8 у односу на 2,1;  $p < 0,001$ ),  $^{226}\text{Ra}$  (47,2 у односу на 35,5;  $p < 0,001$ );  $^{210}\text{Pb}$  (49,1 у односу на 43,7;  $p < 0,05$ ),  $^{232}\text{Th}$  (49,5 у односу на 39,5;  $p < 0,00001$ ),  $^{40}\text{K}$  (586 у односу на 521;  $p < 0,001$ ) и  $^{137}\text{Cs}$  (22,4 у односу на 12,6;  $p < 0,001$ ).

Истовремено и особине земљишта као што су садржај  $\text{CaCO}_3$  (1,2% у односу на 13,5%;  $p < 0,00001$ ), крупан прах (34,5% у односу на 29,5%;  $p < 0,05$ ), ситан прах (19,2% у односу на 25,4%;  $p < 0,001$ ) и глина (33,8% у односу на 28,5%;  $p < 0,01$ ) су се такође статистички значајно разликовале у областима два карактеристична рН интервала. Из ових разлога, моделовање понашања активности радионуклида вишеструком линеарном регресијом извршено је у ова два издвојена рН интервала.

У Табели 21. представљене су вредности коефицијената добијених вишеструком регресијом за испитиване радионуклиде. На Сликама 26–33. графички је представљена веза између измерених концентрација активности  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  и њихових вредности предвиђених регресијом.

Међутим, понашање  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту није могло бити моделовано особинама земљишта вишеструком регресијом. Понашање произведеног радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  у земљиште доспелог из атмосфере није могло бити генерализовано и радије је карактеристика дате локације, као што је описано у ранијим подпоглављима (4.1, 4.2, 4.3).

Табела 21. Резултати вишеструке линеарне регресије.

	$X_i$	$\hat{\beta}$	$R^2$ ( $R^{2*}$ )	Табела ANOVA	
				$F$ – однос	$p$ – вредност
pH <sub>KCl</sub> : 4,6–7,0					
<sup>232</sup> Th	pH <sub>KCl</sub>	–4,3529***	0,7969 (0,7821)	53,65	p<0,0001
	Глина	0,5657***			
	Укупан прах	0,4309***			
	Константа	34,0389**			
<sup>226</sup> Ra	pH <sub>KCl</sub>	–2,7889*	0,7814 (0,7578)	33,06	p<0,0001
	Хумус	–1,5641**			
	Глина	0,5737***			
	Крупан прах	0,3553***			
<sup>235</sup> U	Хумус	–0,3694***	0,6580 (0,6330)	26,29	p<0,0001
	Глина	0,0541***			
	Укупан прах	0,0198**			
	Константа	0,8342			
<sup>238</sup> U	Хумус	–5,3218***	0,6873 (0,6613)	26,38	p<0,0001
	Глина	0,9949***			
	Крупан прах	0,6016***			
	Константа	6,3382			
pH <sub>KCl</sub> : 7,1–7,6					
<sup>232</sup> Th	pH <sub>KCl</sub>	25,5815***	0,6483 (0,6044)	14,75	p<0,0001
	Глина	0,7324***			
	Укупан прах	0,5273***			
	Константа	–194,37***			
<sup>226</sup> Ra	pH <sub>KCl</sub>	11,2050***	0,6461 (0,6018)	14,60	p<0,001
	Глина	0,2144**			
	Константа	–49,4534*			
<sup>235</sup> U	Хумус	–0,2009***	0,6553 (0,6240)	20,92	p<0,0001
	СаСО <sub>3</sub>	–0,0265**			
	Константа	2,9568			
<sup>238</sup> U	Хумус	–4,8040***	0,6548 (0,6184)	18,02	p<0,0001
	Физ, глина	–0,3188*			
	Константа	64,8475***			
pH <sub>KCl</sub> : 4,6–7,6					
<sup>40</sup> K	Хумус	–9,4142*	0,6414 (0,6267)	43,52	p<0,0001
	Глина	5,3719***			
	СаСО <sub>3</sub>	–3,1218**			
	Константа	442,94***			
<sup>210</sup> Pb	pH <sub>KCl</sub>	–5,4189**	0,3410 (0,3096)	10,86	p<0,001
	Крупан прах	0,1726			
	Константа	80,510***			

\*p<0,05, \*\* p<0,01, \*\*\* p<0,001; R<sup>2\*</sup> – прилагођени коефицијент детерминације.

На Слици 26. (у области рН<sub>KCl</sub>: 4,6–7,0) и Слици 27. (у области рН<sub>KCl</sub>: 7,1–7,6) илустрована је зависност измерених вредности концентрација активности <sup>232</sup>Th у земљишту од вредности предвиђених регресијом. Може се приметити да се статистички значајни параметри: укупан прах (50–2 μm), глина (<2 μm) и рН<sub>KCl</sub> на основу којих се расподела активности <sup>232</sup>Th могла описати нису разликовали у два испитивана интервала рН. Међутим, при преласку из области веће у област ниже рН (Табела 21), вредности коефицијента регресије су се променили, као и квалитет регресије (*F*-вредност је опала са 53,65 на 14,75), мада је ниво значајности остао исти (*p*<0,0001).

Гранулометријске фракције праха и глине, као параметари веће значајности у регресији, указивали су да се торијум првенствено може наћи у минералним фракцијама земљишта у укупном испитивном интервалу рН (рН<sub>KCl</sub> 4,6–7,6 што одговара интервалу рН<sub>H2O</sub> 5,4–8,3). Овакав резултат је очекиван јер је <sup>232</sup>Th један од најмање мобилних и растворљивих природних радионуклида у терестријалном окружењу који је чврсто везан за резидуалну фракцију земљишта [18].

У Табели 21. се може приметити промена знака уз параметар рН<sub>KCl</sub> из негативног у позитиван при прелазу из киселих у алкална земљишта. То се може тумачити тиме што првој групи земљишта (рН<sub>KCl</sub> 4,6–7,0) припадају безкарбонатни узорци који су показали најниже измерене рН вредности и уједно и највеће измерене концентрације активности <sup>232</sup>Th. У другој групи земљишта (рН<sub>KCl</sub> 7,1–7,6) са порастом рН може се приметити и пораст активности <sup>232</sup>Th (Слика 27) што је вероватно одраз већег степена сорпције торијума од стране земљишних честица. У студији Sheppard *et al.* (1990) у интервалу вредности рН 5,0–8,0 показало се очекиваним да ће се сав торијум наћи у чврстој фази земљишта, а у том истом интервалу његова сорпција је расла управо са рН [94].

На Слици 28. (рН<sub>KCl</sub>: 4,6–7,0) и Слици 29. (рН<sub>KCl</sub>: 7,1–7,6) илустрована је зависност измерених и регресијом предвиђених вредности концентрација активности <sup>226</sup>Ra у земљишту. Статистички значајни параметри на основу којих се расподела активности <sup>226</sup>Ra могла описати у киселом до неутралном земљишту били су крупан прах, глина, хумус и рН, а у неутралном до алкалном земљишту значајна су била само два параметра, садржај глине и рН вредност. При томе се

ниво значајности и квалитет регресије променио односно опао са  $F=33,06$  ( $p<0,0001$ ) на  $F=14,60$  ( $p<0,001$ ).

У нижем интервалу  $pH_{KCl}$  4,6–7,0, гранулометријске фракције крупан прах (50–10  $\mu m$ ) и глина (<2  $\mu m$ ) били су статистички значајнији параметри од параметара садржај хумуса и вредности  $pH$  (Табела 21). То указује да су минералне (и мање мобилне) компоненте земљишта биле важније при описивању расподеле  $^{226}Ra$  и да је већина радијума вероватно садржана у фракцијама земљишта средњих (50–10  $\mu m$ ) и најмањих (<2  $\mu m$ ) димензија. Резултати студије Blanco–Rodríguez *et al.* (2008) показали су да је пораст концентрације активности  $^{226}Ra$  повезан са смањењем димензија честица земљишта, односно да је активност измерена у финијим фракцијама земљишта (димензија <0,063 mm) у јакој позитивној корелацији са укупном активношћу датог земљишта [39].

Према неким истраживањима, веће концентрације радијума су садржане у органским фракцијама земљишта него у минералним фракцијама [15], па се веза између садржаја хумуса и  $^{226}Ra$  може очекивати. Међутим, у испитиваном земљишту са порастом хумуса и вредности  $pH$ , концентрација активности  $^{226}Ra$  је опадала, због чега се може предпоставити да су ови параметри узрок мобилисања односно уклањања  $^{226}Ra$  из датог слоја земљишта. Негативна веза се може објаснити тиме што су у првој групи испитиваног земљишта ( $pH_{KCl}$  4,6–7,0), најниже  $pH$  вредности утицале на растварање и испирање  $^{226}Ra$  првобитно везаног за органску фракцију земљишта. А затим, у другој групи ( $pH_{KCl}$  7,1–7,6), у којој са порастом  $pH$  растворљивост  $^{226}Ra$  постаје занемарљива, веза са садржајем хумуса није успостављена. Концентрација активности  $^{226}Ra$  је у овом интервалу расла са порастом глине и  $pH$ , при чему је добро познато да је у земљишту  $pH>7$  радијум чврсто апсорбован на фракцијама глине и минералних оксида [15].

На Слици 29. може се приметити и група вредности концентрација активности  $^{226}Ra$  које одступају од вредности предвиђених регресијом (маркери црвене боје) тј. које су искључене из анализе да би се постигао тражени квалитет регресије ( $R^2\geq 0,64$ ). Пад квалитета регресије уколико би одбачене тачке биле укључене може се објаснити тиме да је на испитиваним локацијама понашање  $^{226}Ra$  комплексније и да у обзир треба узети особине земљишта које нису испитиване у овом раду.

На Слици 30. и Слици 32. илустроване су релације између измерених и вредности предвиђених вишеструком линераном регресијом концентрација активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ , респективно у земљишту рН<sub>KCl</sub> реакције 4,6–7,0. Понашање уранијума у земљишту није изотопски зависно, па се може приметити у Табели 21. да су исти параметри земљишта били значајни у случају оба уранијумова изотопа.

Садржаји хумуса (негативног предзнака), глине (<2  $\mu\text{m}$ ) и фракција праха (50–2  $\mu\text{m}$ ) (позитивног предзнака) описивали су више од 65,8% варијација изотопа уранијума ( $p < 0,0001$ ), док је регресија имала исту  $F$ -вредност ( $F=26,3$ ). Студија утицаја текстуалних класа на концентрацију активности природних радионуклида показала је да је већина активности  $^{238}\text{U}$  сконцентрисана у средње крупним (0,5–0,063 mm) и финијим (<0,063 mm) фракцијама земљишта [39]. Фракције глине вероватно одржавају удео садржаја уранијума инкорпорираних у кристалним решеткама минерала, а фракције праха могу одражавати фракције (реверзибилно или ирреверзибилно) сорбованог уранијума.

Ретенција уранијума у испитиваном земљишту се очекује јер присуство честица органске материје (хумуса) и минерала глине обезбеђују довољно места за апсорпцију на њиховим површинама [12, 38]. Органске материје могу путем сорпције да утичу на смањивање покретљивости уранијума, међутим повећање покретљивости се може очекивати уколико се формирају органски комплекси уранијума, нарочито у одсуству карбоната у земљишту [6, 88]. Вероватно одавде следи негативна веза активности изотопа уранијума и садржаја хумуса у првој групи земљишта (рН<sub>KCl</sub> 4,6–7,0), које је било безкарбонатно или малог садржаја  $\text{CaCO}_3$  (~1%).

На Слици 31. и Слици 33. илустроване су релације добијене између измерених и вредности предвиђених вишеструком линераном регресијом концентрација активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ , респективно у земљишту веће рН<sub>KCl</sub> реакције (7,0–7,6). Може се приметити у Табели 21. да су се параметри земљишта који су описивали концентрације активности два уранијумова изотопа  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  разликовали, мада су и даље описивали око 65% варијација оба изотопа уранијума ( $p < 0,0001$ ). Са концентрацијама активности изотопа  $^{235}\text{U}$  били су везани садржаји  $\text{CaCO}_3$  и хумуса чији су коефицијенти били негативног предзнака. Утицај ових параметара је очекиван јер сорпција уранијума опада у земљишту рН $\geq 7$  [38].

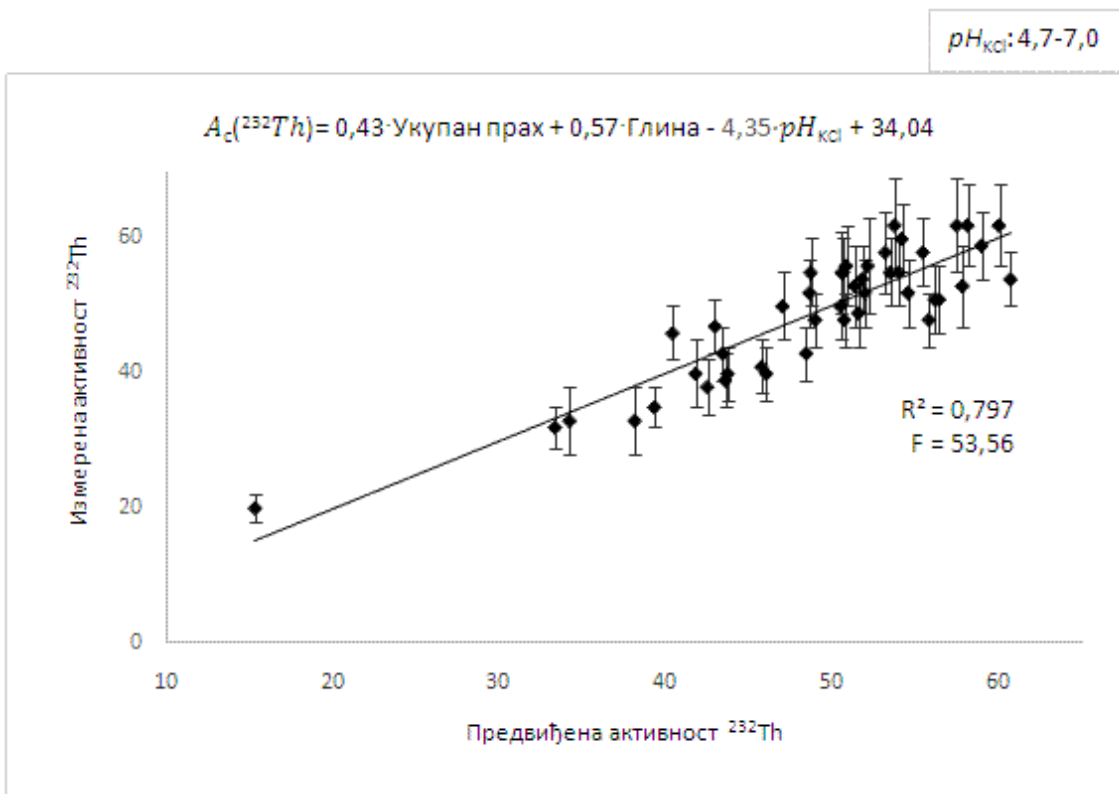
Градећи карбонатне или карбонатно–хумусне комплексе (који доминирају у земљишту  $pH \geq 7$ ), уранијум постаје значајно мобилан и тиме уклоњен из датог слоја земљишта, што објашњава негативну везу.

У интервалу  $pH_{KCl}$  (7,0–7,6) земљишта, садржаји хумуса и концентрације активности изотопа  $^{238}U$  су били повезани негативно као и у случају  $^{235}U$ . Међутим, као други значајан параметар у регресији показао се садржај физичке глине ( $<10 \mu m$ ), а не садржај карбоната указујући на различито понашање између изотопа  $^{235}U$  и  $^{238}U$ . Са порастом алкалности земљишта, реверзибилна сорпција  $^{238}U$  је можда могућа на фракцијама физичке глине, с обзиром на то да је неревверзибилна сорпција на  $pH \geq 7$  врло мало вероватна [12].

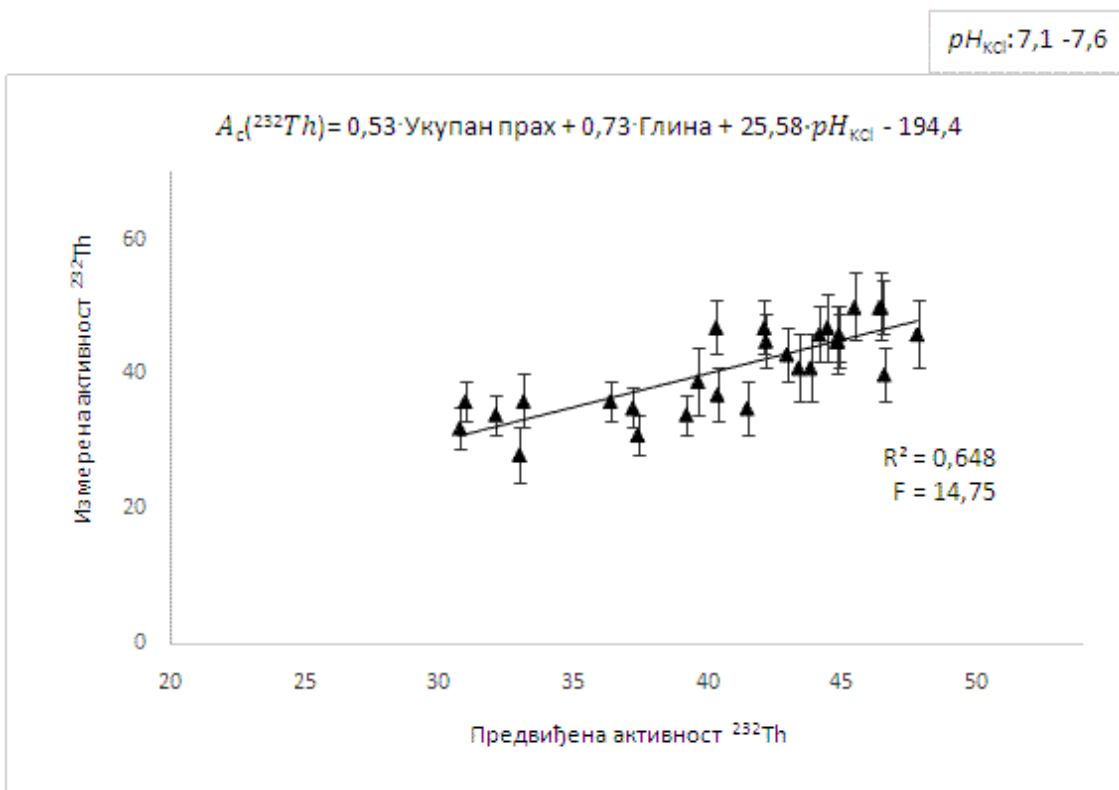
Може се закључити да у вишем интервалу  $pH_{KCl}$  (7,0–7,6) земљишта, концентрације активности уранијума, нарочито изотопа  $^{238}U$ , нису могле бити јасно предвиђене испитиваним особинама земљишта. Да би вишеструка регресија имала тражени квалитет, у случају уранијума приближно је трећина од укупног броја података морала бити искључена из анализе. На већини искључених локација однос концентрација активности  $^{235}U/^{238}U$  налазио се у интервалу 0,034–0,015 битно одступајући од природне вредности (0,046) што се може објаснити ограничењима гамаспектрометријског одређивања изотопа уранијума  $^{235}U$  и  $^{238}U$  (подпоглавље 2.3.4).

Анализом концентрација активности радионуклида  $^{40}K$  и  $^{210}Pb$  је утврђено да се њихово понашање може посматрати без разлика у укупном  $pH$  интервалу ( $pH_{KCl}$  4,6–7,6). На радиоактивни изотоп калијума, који је обично у профилима земаљишта хомогено дистрибуиран, најзначајнији и позитиван утицај имао је садржај глине, а затим мање значајан и негативан садржаји  $CaCO_3$  и хумуса (Табела 21), што су параметри познати у литератури на основу којих се концентрације  $^{40}K$  могу предвиђати [4, 5, 88].

Концентрације активности радионуклида  $^{210}Pb$  одређене су у мањем броју узорака (48 од укупно 80) јер њихово мерење није извршено на пољопривредном земљишту или је у неким узорцима вредност била испод вредности  $mdc$  услед мерења на детектору мање ефикасности на нижим енергијама ( $D_1$ ). Због мањег броја података коришћених у анализи, резултати вишеструке регресије објашњавали су само 34% варијација овог изотопа олова у земљишту.

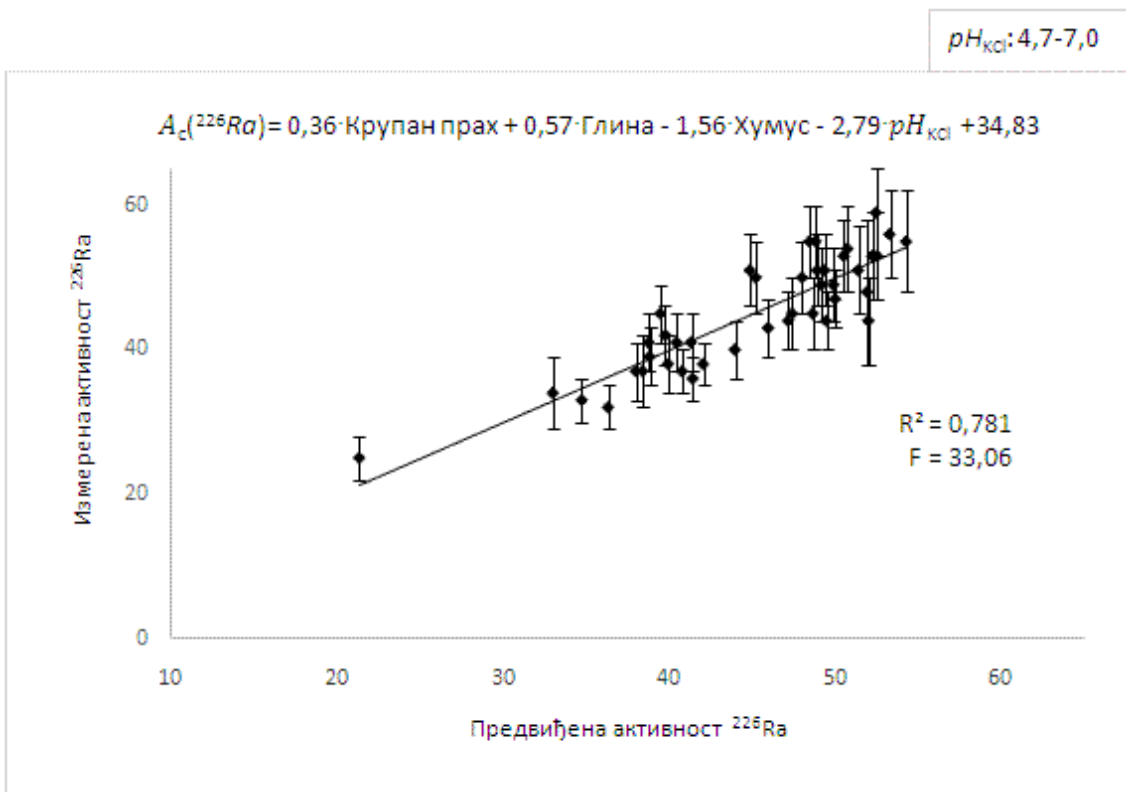


Слика 26. Измерене и предвиђене активности  $^{232}Th$  у земљишту ( $pH_{KCl}$  4,7–7,0)

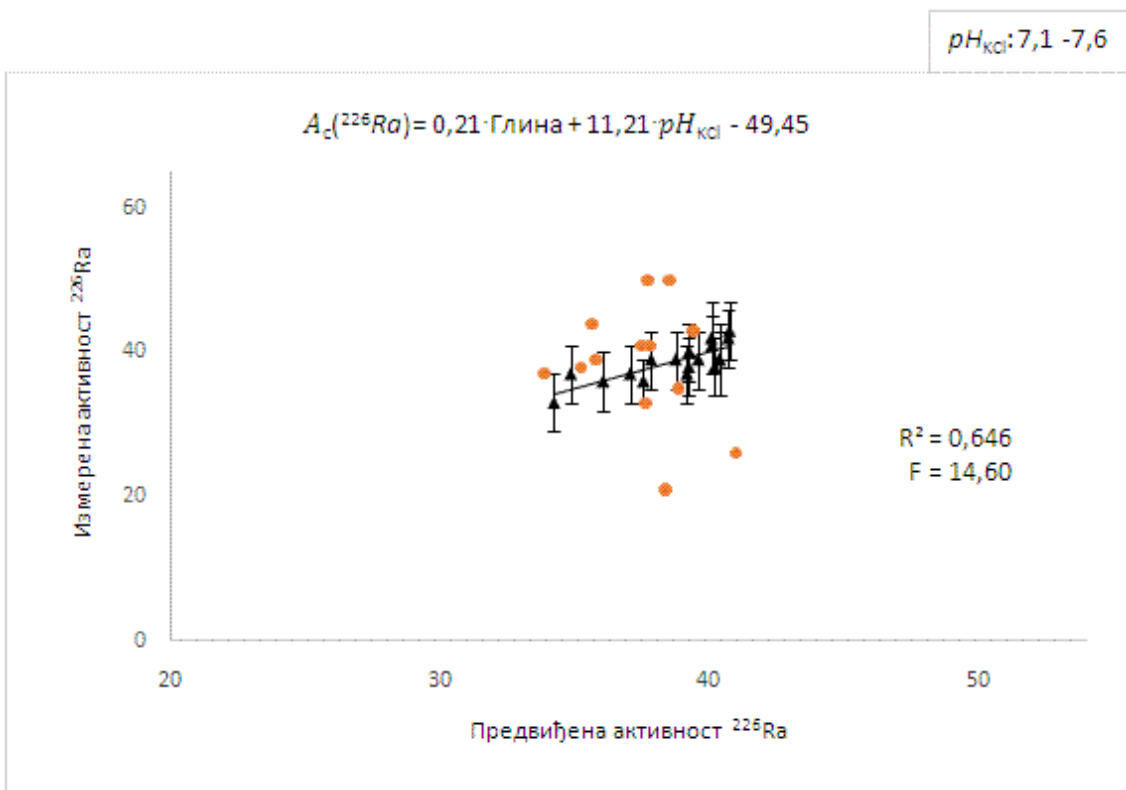


Слика 27. Измерене и предвиђене активности  $^{232}Th$  у земљишту ( $pH_{KCl}$  7,0–7,6)

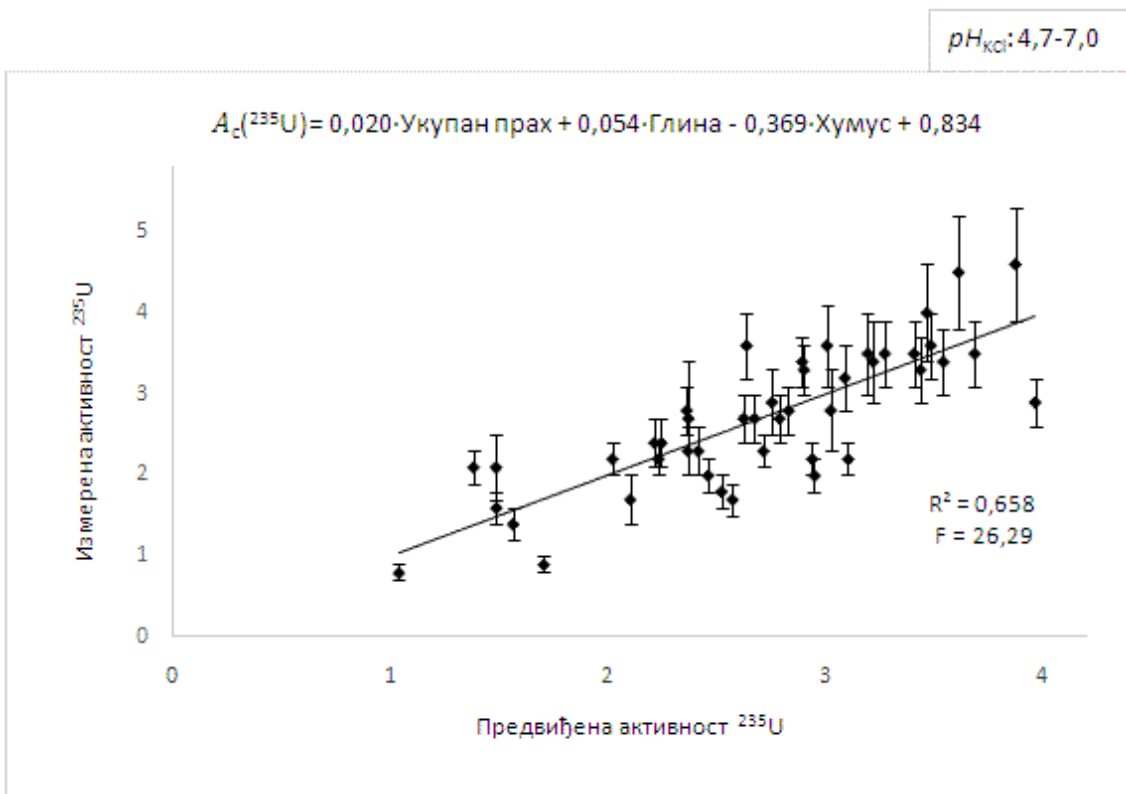




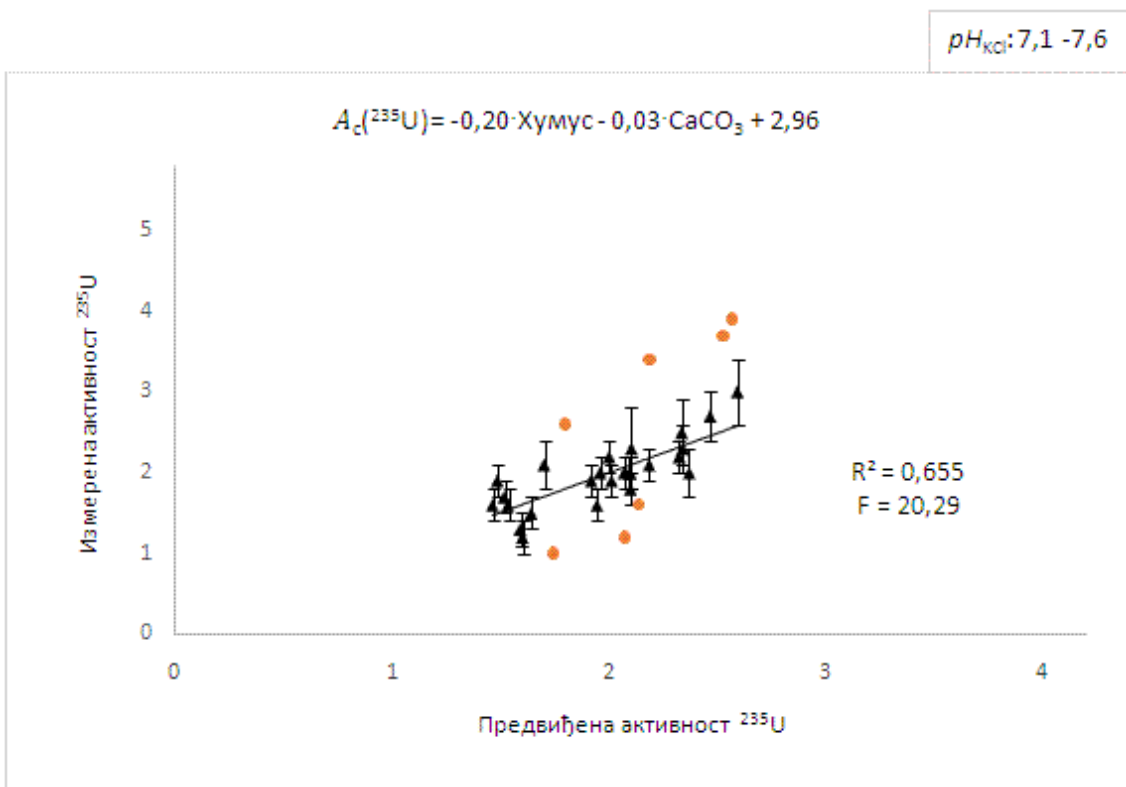
Слика 28. Измерене и предвиђене активности  $^{226}Ra$  у земљишту ( $pH_{KCl}$  4,7–7,0)



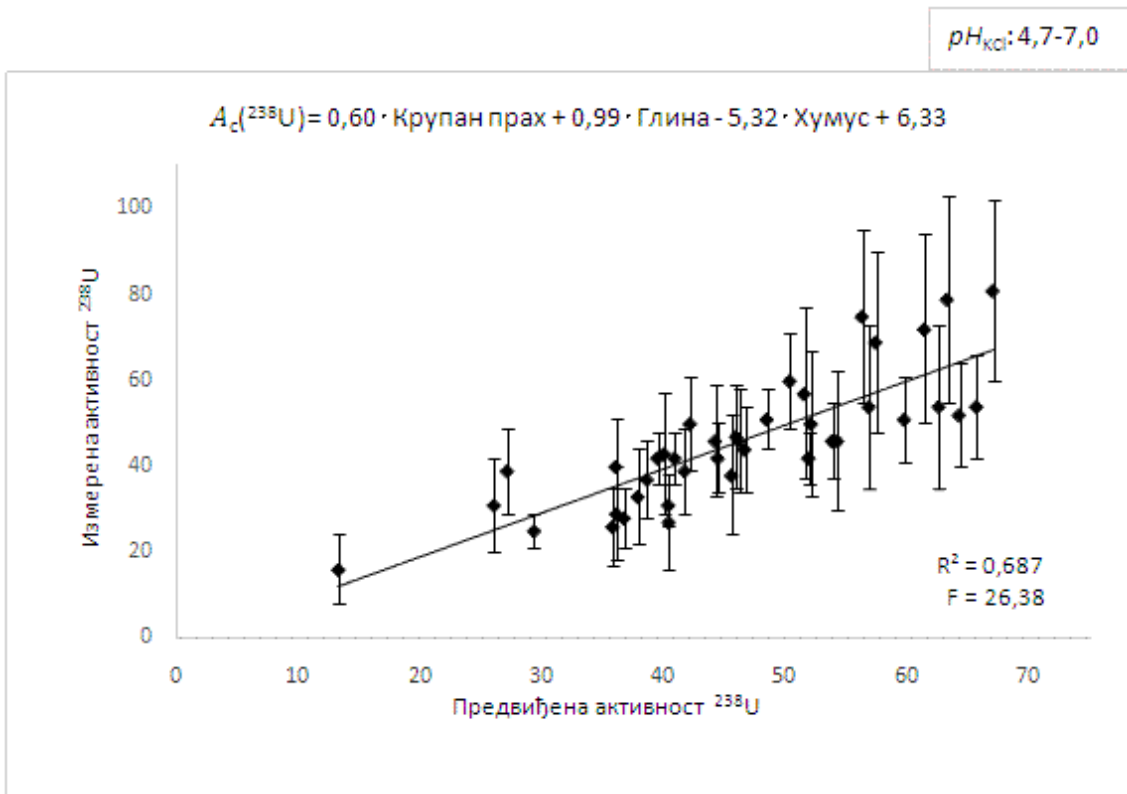
Слика 29. Измерене и предвиђене активности  $^{226}Ra$  у земљишту ( $pH_{KCl}$  7,0–7,6)



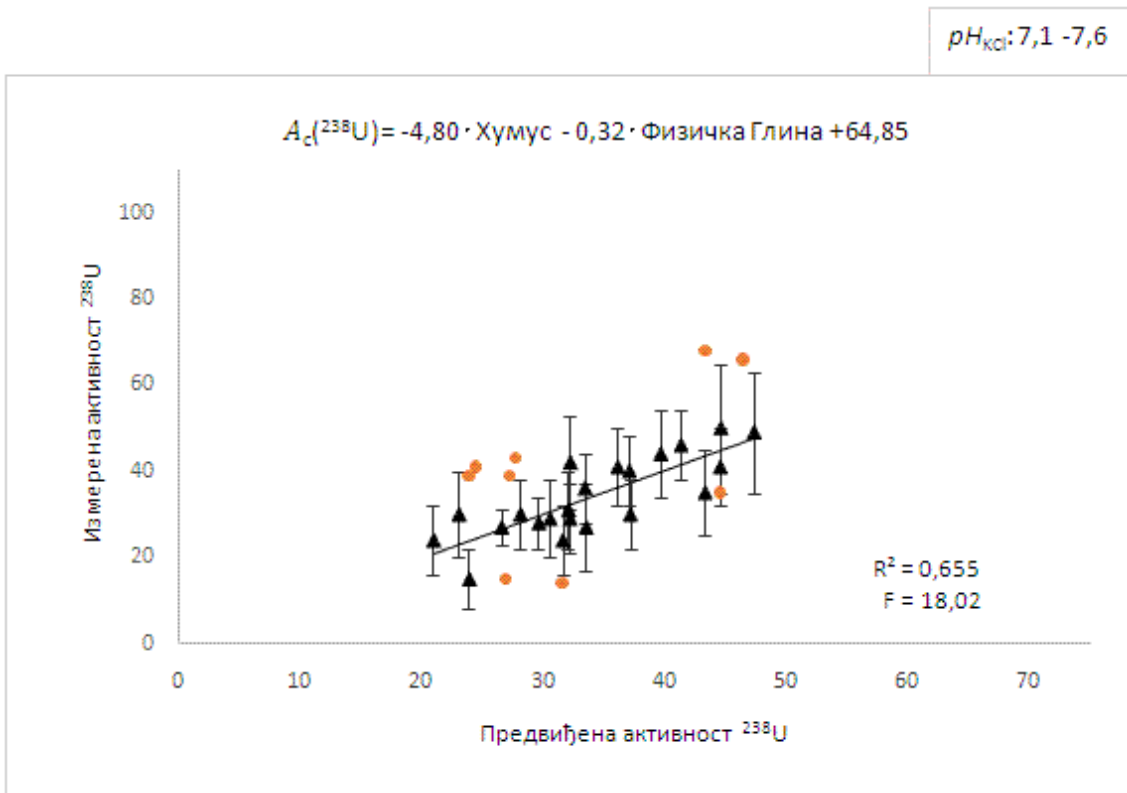
Слика 30. Измерене и предвиђене активности  $^{235}U$  у земљишту ( $pH_{KCl}$  4,7–7,0)



Слика 31. Измерене и предвиђене активности  $^{235}U$  у земљишту ( $pH_{KCl}$  7,0–7,6)



Слика 32. Измерене и предвиђене активности  $^{238}U$  у земљишту ( $pH_{KCl}$  4,7–7,0)



Слика 33. Измерене и предвиђене активности  $^{238}U$  у земљишту ( $pH_{KCl}$  7,0–7,6)

#### 4.5. Радионуклиди у узорцима лишћа листопадног дрвећа

Појединачни узорци лишћа *A. hippocastanum* и *Tilia spp.* сакупљани у градским парковима у периоду 2002–2005. и 2008–2012. мерени су непосредно након узорковања. Резултати мерења њихових концентрација активности ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) показали су присуство радионуклида  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{137}\text{Cs}$  чије су минималне и максималне вредности приказане у Табели 22. Да би се одредило да ли постоје значајне разлике концентрација активности природних  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{40}\text{K}$  и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  између узорака кестена и липе, затим између три испитивана парка, између сезона, као и између два периода испитивања (2002–2005 и 2008–2012) примењена је једнофакторска анализа варијансе. Треба напоменути да се вредности активности радионуклида измерених у лето и јесен статистички нису разликовале, што је био разлог престанка узорковања током летње сезоне након 2004. године.

У случају радионуклида  $^{210}\text{Pb}$  примећено је да се његове концентрације активности у једној сезони нису значајно разликовале међу врстама кестена и липе, међу парковима, нити између два испитивана периода. Примећено је да су концентрације активности  $^{210}\text{Pb}$  у лишћу расле током вегетативног периода сваке испитиване године и средња вредност  $^{210}\text{Pb}$  била је увек значајно већа у јесен у односу на пролеће ( $p < 0,05$ ). Супротно томе, концентрације  $^{40}\text{K}$  у лишћу су опадале током вегетативног периода, али средње концентрације активности  $^{40}\text{K}$  у пролеће су се значајно разликовале у односу на јесен само на локацији КР ( $p < 0,05$ ) и само у кестену на локацији SP ( $p < 0,05$ ), док на BG значајних разлика није било.

Концентрација активности  $^{137}\text{Cs}$  била је у већини узорака лишћа нижа од  $\text{mdc}$  вредности и била је чешће забележена у јесен него у пролеће (Табела 22). У сезони лето,  $^{137}\text{Cs}$  није могао бити детектован у лишћу липе, већ само кестена. Примећено је да је активност  $^{137}\text{Cs}$  у пролеће детектована у лишћу у свим парковима у периоду 2002–2005, али ни једном у пролеће у периоду 2008–2012, а на локацији BG у истом периоду ни у једној сезони (Табела 22). Овакво понашање би се могло тумачити тзв. „ефектом старења“  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту током дужег временског периода које је последица постепене иреверзибилне сорпције радиоактивног цезијума, а тиме и пратеће редукције трансфера из земљишта у лишће [95].

Табела 22. Минималне и максималне концентрације активности ( $Bq\ kg^{-1}$  суве масе)  $^{40}K$ ,  $^{210}Pb$  и  $^{137}Cs$  у изорцима лишћа *A. hippocastanum* и *Tilia spp.* у парковима BG, SP и KP сакупљеним и мереним у периоду 2002–2005. и 2008–2012. у сезонама пролеће и јесен и у периоду 2003–2004. у сезони лето.

	BG			SP			KP		
	$^{40}K$	$^{210}Pb$	$^{137}Cs$	$^{40}K$	$^{210}Pb$	$^{137}Cs$	$^{40}K$	$^{210}Pb$	$^{137}Cs$
<i>Tilia spp.</i> / Пролеће 2002–2005 (n=4)									
$X_{min}$	389 ± 27	< mdc	< mdc	546 ± 49	< mdc	< mdc	512 ± 46	< mdc	< mdc
$X_{max}$	1120 ± 101	20 ± 2	7 ± 1	900 ± 90	19 ± 3	0,9 ± 0,3	764 ± 53	14 ± 3	1,3 ± 0,4
<i>Tilia spp.</i> / Пролеће 2008–2012 (n=3)									
$X_{min}$	487 ± 44	< mdc	< mdc	309 ± 25	6 ± 2	< mdc	436 ± 44	< mdc	< mdc
$X_{max}$	679 ± 54	21 ± 5	< mdc	710 ± 67	79 ± 15	< mdc	564 ± 51	16 ± 4	< mdc
<i>Aesculus hippocastanum</i> / Пролеће 2002–2005 (n=4)									
$X_{min}$	421 ± 38	< mdc	< mdc	553 ± 50	< mdc	< mdc	358 ± 43	< mdc	< mdc
$X_{max}$	851 ± 76	32 ± 2	0,9 ± 0,2	735 ± 74	14 ± 3	1,1 ± 0,3	600 ± 54	15 ± 2	0,6 ± 0,3
<i>Aesculus hippocastanum</i> / Пролеће 2008–2012 (n=3)									
$X_{min}$	415 ± 37	20 ± 4	< mdc	626 ± 50	< mdc	< mdc	296 ± 30	< mdc	< mdc
$X_{max}$	835 ± 78	57 ± 14	< mdc	827 ± 66	20 ± 5	< mdc	372 ± 33	20 ± 3	< mdc
<i>Tilia spp.</i> / Лето 2003–2004 (n=2)									
$X_{min}$	528 ± 48	43 ± 6	< mdc	369 ± 33	37 ± 5	< mdc	354 ± 35	41 ± 5	< mdc
$X_{max}$	827 ± 58	34 ± 3	< mdc	690 ± 69	< mdc	< mdc	415 ± 29	< mdc	< mdc
<i>Aesculus hippocastanum</i> / Лето 2003–2004 (n=2)									
$X_{min}$	465 ± 37	51 ± 5	< mdc	448 ± 49	77 ± 18	< mdc	413 ± 37	33 ± 5	1,2 ± 0,5
$X_{max}$	897 ± 72	11 ± 4	< mdc	781 ± 78	< mdc	1,5 ± 0,4	536 ± 43	36 ± 5	< mdc
<i>Tilia spp.</i> / Јесен 2002–2005 (n=4)									
$X_{min}$	366 ± 62	< mdc	< mdc	315 ± 38	< mdc	< mdc	36 ± 9	< mdc	< mdc
$X_{max}$	539 ± 48	35 ± 5	2,9 ± 0,6	465 ± 42	65 ± 15	< mdc	501 ± 35	58 ± 6	5 ± 2
<i>Tilia spp.</i> / Јесен 2008–2012 (n=4)									
$X_{min}$	347 ± 31	35 ± 5	< mdc	301 ± 24	38 ± 5	< mdc	219 ± 20	31 ± 4	< mdc
$X_{max}$	637 ± 47	69 ± 6	< mdc	677 ± 54	53 ± 6	0,9 ± 0,4	451 ± 36	52 ± 6	1,2 ± 0,4
<i>Aesculus hippocastanum</i> / Јесен 2002–2005 (n=4)									
$X_{min}$	301 ± 33	< mdc	< mdc	165 ± 33	< mdc	< mdc	171 ± 20	< mdc	< mdc
$X_{max}$	744 ± 12	71 ± 7	1,3 ± 0,4	634 ± 57	60 ± 9	0,8 ± 0,3	410 ± 45	119 ± 27	0,5 ± 0,1
<i>Aesculus hippocastanum</i> / Јесен 2008–2012 (n=4)									
$X_{min}$	225 ± 22	50 ± 7	< mdc	359 ± 29	37 ± 4	< mdc	215 ± 25	38 ± 6	< mdc
$X_{max}$	467 ± 41	74 ± 8	< mdc	720 ± 58	53 ± 9	< mdc	348 ± 38	78 ± 8	1,3 ± 0,4

Напомена: У зависности од детектора, вредности mdc варираше су у интервалу ( $Bq\ kg^{-1}$  суве масе): 0,1–0,3 за  $^{137}Cs$  и 2–7 за  $^{210}Pb$ .

Резултати мерења интегралних узорака лишћа добијених спајањем појединачних узорака по врстама, сезонама пролеће и јесен и парковима у целом периоду испитивања (2002–2012) приказани су у Табели 23. С обзиром на то да су појединачни узорци лишћа претходно били минерализовани, резултати мерења концентрација активности интегралних узорака били су изражени на основу масе пепела ( $Bq\ kg^{-1}$  Пепела), а затим су коришћењем фактора концентрације ( $F_c$ ) вредности конвертоване и изражене на бази суве масе ( $Bq\ kg^{-1}$  С.М.).

У табели су такође представљене и средње вредности концентрација активности  $^{40}K$  добијених на основу активности појединачних узорака од којих се интегрални узорак састојао. Слагање између рачунатих и мерених активности на бази суве масе у случају  $^{40}K$  било је у оквиру граница експерименталне грешке мерења Будући да су појединачне активности  $^{137}Cs$  и  $^{210}Pb$  често биле испод  $m\delta$  вредности њихова средња вредност није могла бити израчуната и представљена само на основу доступних измерених вредности активности..

Резултати мерења интегралних узорака лишћа су показали да су након повећања ефикасности детекције радионуклиди  $^{226}Ra$ ,  $^{210}Pb$ ,  $^{40}K$  и  $^{137}Cs$  могли бити детектовани у свакој сезони, а  $^{238}U$ ,  $^{235}U$  и  $^{232}Th$  само у лето/јесен (Табела 23). Варијације концентрација активности  $^{226}Ra$ ,  $^{210}Pb$ ,  $^{40}K$  и  $^{137}Cs$  по сезонама и парковима су илустроване на Слици 34. Мерна несигурност концентрација активности интегралних узорака износила је ~7% за  $^{40}K$ , ~20% за  $^{226}Ra$ ,  $^{210}Pb$  и  $^{137}Cs$  и ~30% за  $^{238}U$ ,  $^{235}U$  и  $^{232}Th$ .

На Слици 34. се може приметити да се у сваком од паркова (BB, SP, KP) нивои  $^{226}Ra$  и  $^{210}Pb$  у лишћу повећавају током вегетативног периода, а снижавају у случају  $^{40}K$ , док  $^{137}Cs$  нема јасног тренда понашања. Резултати ANOVA теста показали су да се концентрације активности  $^{40}K$  и  $^{137}Cs$  нису разликовале по сезонама, а да су разлике постојале у случају  $^{226}Ra$  ( $p < 0,001$ ) и  $^{210}Pb$  ( $p < 0,001$ ) за вредности у пролеће у односу на лето и јесен. Такође, судећи према ANOVA тесту између концентрација активности узорака лишћа липе и кестена није било разлика у оквиру исте сезоне на основу чега су резултати активности радионуклида груписани по сезонама.

Табела 23. Концентрације активности интегралних узорака лишћа.

		<sup>238</sup> U	<sup>235</sup> U	<sup>226</sup> Ra	<sup>210</sup> Pb	<sup>232</sup> Th	<sup>40</sup> K	<sup>137</sup> Cs
<b>ЛИПА ПРОЛЕЋЕ</b>								
<b>BG</b> <b>Fc=7,40</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	< 12	< 0,5	4 ± 1	120 ± 30	< 2	4300 ± 300	7,5 ± 0,9
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)			0,5 ± 0,1	16 ± 4		580 ± 40	1,0 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						630 ± 60	
<b>SP</b> <b>Fc=6,62</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	< 13	< 0,6	5 ± 1	100 ± 28	< 2	4000 ± 200	2,2 ± 0,6
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)			0,8 ± 0,2	15 ± 4		600 ± 30	0,3 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						600 ± 90	
<b>KP</b> <b>Fc=8,50</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	< 26	< 1	16 ± 3	150 ± 50	< 2	3900 ± 300	10 ± 2
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)			1,9 ± 0,4	18 ± 6		460 ± 40	1,2 ± 0,2
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						520 ± 55	
<b>КЕСТЕН ПРОЛЕЋЕ</b>								
<b>BG</b> <b>Fc=7,20</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	< 12	< 0,5	5 ± 1	160 ± 30	< 2	4400 ± 300	3,8 ± 0,7
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)			0,7 ± 0,1	22 ± 4		610 ± 40	0,5 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						590 ± 76	
<b>SP</b> <b>Fc=9,00</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	< 30	< 1	11 ± 3	154 ± 67	< 1	5300 ± 300	4,4 ± 1,3
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)			1,2 ± 0,3	17 ± 7		590 ± 30	0,5 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						680 ± 70	
<b>KP</b> <b>Fc=8,00</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	< 16	< 0,7	13 ± 2	140 ± 30	< 3	3500 ± 200	3,4 ± 0,7
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)			1,6 ± 0,3	18 ± 4		440 ± 30	0,4 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						430 ± 50	
<b>ЛИПА ЈЕСЕН</b>								
<b>BG</b> <b>Fc=8,00</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	< 19	< 1	26 ± 3	300 ± 30	< 1	4200 ± 300	4 ± 1
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)			3,3 ± 0,4	38 ± 4		530 ± 40	0,5 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						490 ± 60	
<b>SP</b> <b>Fc=6,50</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	< 22	< 1,1	26 ± 5	280 ± 50	21±7	3100 ± 200	2,0 ± 0,7
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)			4,0 ± 0,8	43 ± 8	3,3±1,0	480 ± 30	0,3 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						450 ± 60	
<b>KP</b> <b>Fc=7,20</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	23±7	1,1±0,2	25 ± 3	190 ± 20	< 3	2100 ± 100	4,6 ± 0,8
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)	3,2±1,0	0,15±0,03	3,5 ± 0,4	26 ± 3		290 ± 10	0,6 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						320 ± 30	
<b>КЕСТЕН ЈЕСЕН</b>								
<b>BG</b> <b>Fc=8,00</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	60±20 <sup>^</sup>	7±1 <sup>^</sup>	21 ± 3	380 ± 30	< 1	3800 ± 200	6 ± 1
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)	9 ± 3	1,0 ± 0,1	2,6 ± 0,4	48 ± 4		480 ± 30	0,8 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						440 ± 40	
<b>SP</b> <b>Fc=6,00</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	70 ± 20	2,8±0,5	29 ± 3	220 ± 50	< 2	3200 ± 200	2,8 ± 0,8
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)	12±3	0,47±0,08	4,8 ± 0,8	37 ± 8		530 ± 30	0,5 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						510 ± 60	
<b>KP</b> <b>Fc=7,00</b>	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> Пепела)	19 ± 5	0,9±0,2	21 ± 2	290 ± 20	< 2	2200 ± 100	5,4 ± 0,6
	Ac (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)	2,7±0,7	0,13±0,03	3,0 ± 0,3	41 ± 3		310 ± 40	0,8 ± 0,1
	Ac* (Bq kg <sup>-1</sup> С.М.)						290 ± 50	

Ac (Bq kg<sup>-1</sup> Пепела) – измерене концентрација изражене на основу масе пепела;Ac (Bq kg<sup>-1</sup> С.М.) – вредности на бази суве масе (С.М.) рачunate путем фактора концентрације (Fc);Ac\* (Bq kg<sup>-1</sup> С.М.) – средња вредност активности на основу <sup>40</sup>K;<sup>^</sup>–резултат добијен на основу узорка на локацији BG у сезони лето (Fc=6,3)

У лишћу *A. hippocastanum* и *Tilia spp.* концентрација активности  $^{226}\text{Ra}$  у интервалу  $0,5\text{--}5,6 \text{ Bq kg}^{-1}$  била је ниска, али детектована у већини узорака (16 од 18) и у свим сезонама. Радионуклид  $^{226}\text{Ra}$ , као аналог есенцијалног Са, биљка често усваја из земљишних раствора, при чему се у биљном ткиву може детектовати само ако је довољно минерализованог материјала доступно за анализу [96]. За  $^{226}\text{Ra}$  се очекује да буде нагомилан у лишћу, јер после усвајања кореном бива транслоциран путем транспортног ткива (ксилема) и након инкорпорације у неком биљном органу остаје непокретан, тј. не дистрибуира се у друге делове биљке што објашњава његову акумулацију у листовима током вегетативног периода [15].

Концентрација активности  $^{210}\text{Pb}$  у лишћу кестена и липе је расла током вегетативног периода у интервалу  $15\text{--}52 \text{ Bq kg}^{-1}$ . Лишће различитих врста дрвећа на локацијама позадинског нивоа гама-зрачења показало је вредности активности  $7\text{--}25 \text{ Bq kg}^{-1}$  [97], за разлику од виших нивоа одређених у интервалу  $29\text{--}76 \text{ Bq kg}^{-1}$  на подручју рудника уранијума у лишћу врста *Quercus* и *Populus sp.* [98].

Познато је да олово  $^{210}\text{Pb}$  биљке усвајају фолијарно путем влажне или суве атмосферске депозиције, али донекле и из земљишта путем кореновог система, док је појединачни допринос сваке од путања тешко проценити [34]. У овој студији највеће активности  $^{210}\text{Pb}$  у лишћу поклапају се са природном производњом  $^{210}\text{Pb}$  у атмосфери која настаје након распада племенитог гаса радона  $^{222}\text{Rn}$  (продукта  $^{226}\text{Ra}$ ) и чија ексхалација из земљишта паркова такође достиже максимум у јесен [99]. Према томе, капацитет испитиваног лишћа да инкорпорира атмосферске честице које садрже  $^{210}\text{Pb}$  природног порекла може се огледати у порасту концентрација активности  $^{210}\text{Pb}$  од пролећа до јесени.

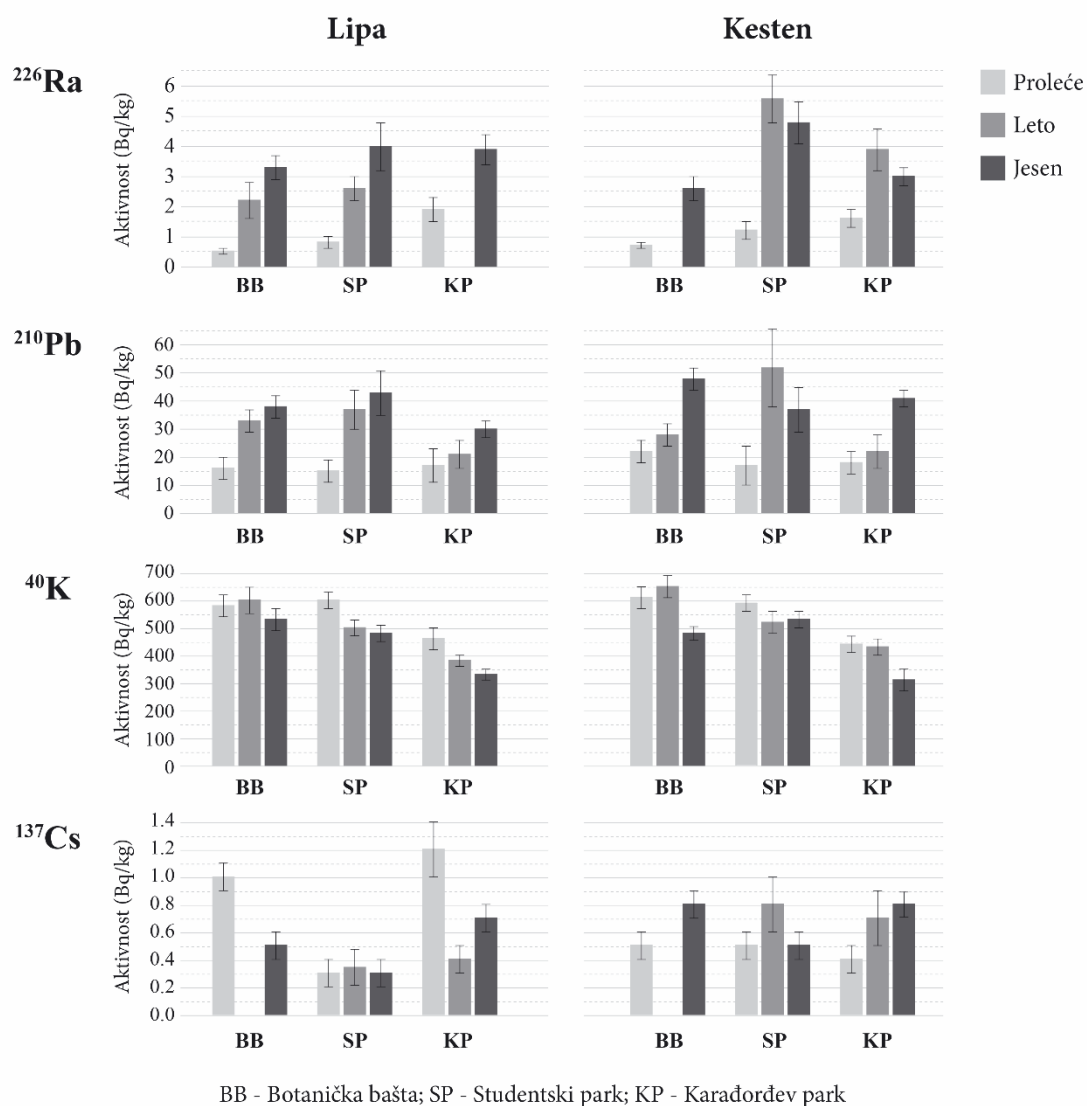
Ради поређења, у студији изведеној на истом подручју градских паркова, у периоду од 2006 до 2012, примећено је да се укупна концентрација елемента олова Рб смањила око 7 пута у амбијенталном ваздуху и око 3 пута у узорцима лишћа кестена, при чему је утврђено да је извор олова био доминантно антропогеног порекла [100].

Међутим, у овом раду концентрације активности изотопа олова  $^{210}\text{Pb}$  у једној, истој, сезони у периоду 2002–2005. се нису разликовале од оних у периоду 2008–2012. (на нивоу  $p < 0,05$ ), односно ниво активности се није мењо током времена указујући на доминантно природно порекло  $^{210}\text{Pb}$ . Овакав резултат је у



складу са податком да извори  $^{210}\text{Pb}$  антропогеног порекла доприносе мање од 1% укупном  $^{210}\text{Pb}$  у ваздуху [16].

У периоду 2002–2012, средња вредност концентрације  $^{210}\text{Pb}$  одређена у појединачним узорцима лишћа липе и кестена, респективно непосредно након сакупљања износила је  $22,4 \text{ Bq kg}^{-1}$  и  $20,3 \text{ Bq kg}^{-1}$  у пролеће и у јесен  $45,4 \text{ Bq kg}^{-1}$  и  $56,4 \text{ Bq kg}^{-1}$ .



Слика 34. Сезонске промене концентрација активности  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$  у интегралним узорцима лишћа кестена и липе сакупљеним у парковима Београда.

Концентрација активности радионуклида  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  је у већини узорака била испод  $\text{mдс}$  вредности и само су у летњем и/или јесењем периоду по четири узорка лишћа садржали  $^{238}\text{U}$  (2,7–11,7  $\text{Bq kg}^{-1}$ ) и  $^{235}\text{U}$  (0,13–1,0  $\text{Bq kg}^{-1}$ ), а три  $^{232}\text{Th}$  (1,8–3,3  $\text{Bq kg}^{-1}$ ).

У сличном интервалу у лишћу дрвећа тропских предела су биле активности  $^{238}\text{U}$  (9–11  $\text{Bq kg}^{-1}$ ) и  $^{232}\text{Th}$  (9–16  $\text{Bq kg}^{-1}$ ) када су оба радионуклида детектована и у узорцима коре дрвета, мада у ужем интервалу активности (9–10  $\text{Bq kg}^{-1}$ ) [101]. Тај резултат указује да се  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  усвајају путем кореновог система и да бивају транслоцирани и акумулирани у другим органима дрвета као што су листови или кора. Сличне концентрације активности као у овој студији измерене су у узорцима лишћа дрвећа шумских предела умереног појаса: 1,68–13,0  $\text{Bq kg}^{-1}$  за  $^{238}\text{U}$ ; 0,08–0,58  $\text{Bq kg}^{-1}$  за  $^{235}\text{U}$ ; 4,9–37,3  $\text{Bq kg}^{-1}$  за  $^{226}\text{Ra}$ ; 10,3–20,3  $\text{Bq kg}^{-1}$  за  $^{210}\text{Pb}$ , 0,08–1,10  $\text{Bq kg}^{-1}$  за  $^{232}\text{Th}$ , које се нису разликовале између зимзелених и листопадних врста [102].

Активности природних радионуклида у органима дрвећа су најчешће испитиване у областима захваћеним експлоатацијом уранијумових руда где су заступљене више активности уранијума и његових продуката распада [98], па је на таквом подручју активност  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  у зрелим листовима *Quercus* sp. и *Eucalyptus camaldulensis* била 2 до 7 пута већа него у младим листовима (у интервалу  $\sim 10^1$ – $10^2$   $\text{Bq kg}^{-1}$ ) [103]. У парковима, у условима ниског нивоа гама–зрачења, тако значајне промене није било могуће уочити, већ су ови радионуклиди могли бити детектовани само крајем вегетативног периода претежно у листовима кестена. Ефекат акумулације примећен је и за нуклид  $^{226}\text{Ra}$  у листовима дрвећа *Alnus glutinosa*, *Betula pendula* и *Sambucus nigra* које је успевало на јаловини уранијумског рудника и које је показало највеће вредности активности у августу и септембру (реда  $\sim 10^2$   $\text{Bq kg}^{-1}$ ) [104].

Концентрације есенцијалног елемента калијума и његовог радиоактивног изотопа у лишћу могу значајно да варирају и зависе од врсте дрвећа и типа земљишта [101]. Измерене активности  $^{40}\text{K}$  у више врста широколисног дрвећа тропских предела налазиле су се у ужем интервалу 50–370  $\text{Bq kg}^{-1}$  [105] него у парковима које су биле 310–650  $\text{Bq kg}^{-1}$ . Током вегетативног периода  $^{40}\text{K}$  се смањивао у лишћу (Слика 34) услед испирања и транспорта назад ка кореновом

систему крајем вегетативног периода, али ово смањење није се показало статистички значајним.

Табела 24. Вредности концентрација активности ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) радионуклида у интегралним узорцима лишћа кестена и липе и њихових трансфер фактора TF ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе/ $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) земљиште–лишће.

	Концентрација активности ( $\text{Bq kg}^{-1}$ С.М.)			TF (земљиште–лишће)	
		Интервал	$\bar{X}$ ( $\sigma$ )	Интервал	$\bar{X}$ ( $\sigma$ )
$^{238}\text{U}$	Јесен (n=4)	2,7 – 12,0	6,7 (4,4)	$2,12 \times 10^{-1} - 3,16 \times 10^{-1}$	$2,03 \times 10^{-1}$ ( $8,91 \times 10^{-2}$ )
$^{226}\text{Ra}$	Пролеће (n=6)	0,5 – 1,9	1,1 (0,5)	$1,30 \times 10^{-2} - 4,96 \times 10^{-2}$	$2,82 \times 10^{-2}$ ( $1,46 \times 10^{-2}$ )
	Јесен (n=6)	2,6 – 4,8	<b>3,5</b> (0,8)	$6,77 \times 10^{-2} - 1,11 \times 10^{-1}$	<b><math>8,78 \times 10^{-2}</math></b> ( $1,46 \times 10^{-2}$ )
$^{210}\text{Pb}$	Пролеће (n=6)	15 – 22	17,5 (2,4)	$3,05 \times 10^{-1} - 5,88 \times 10^{-1}$	$4,20 \times 10^{-1}$ ( $0,98 \times 10^{-2}$ )
	Јесен (n=6)	27 – 48	<b>39,0</b> (7,1)	$6,59 \times 10^{-1} - 1,28 \times 10^0$	<b><math>9,31 \times 10^{-1}</math></b> ( $2,21 \times 10^{-1}$ )
$^{235}\text{U}$	Јесен (n=4)	0,13 – 1,00	0,4 (0,4)	$4,87 \times 10^{-2} - 4,90 \times 10^{-1}$	$2,20 \times 10^{-1}$ ( $2,11 \times 10^{-1}$ )
$^{40}\text{K}$	Пролеће (n=6)	440 – 610	547 (76)	$7,85 \times 10^{-1} - 1,34 \times 10^0$	$1,12 \times 10^0$ ( $2,50 \times 10^{-1}$ )
	Јесен (n=6)	300 – 530	438 (106)	$5,35 \times 10^{-1} - 1,18 \times 10^0$	$9,04 \times 10^{-1}$ ( $2,85 \times 10^{-1}$ )
$^{137}\text{Cs}$	Пролеће (n=6)	0,3 – 1,2	0,7 (0,4)	$2,46 \times 10^{-2} - 4,90 \times 10^{-1}$	$1,58 \times 10^{-1}$ ( $1,82 \times 10^{-1}$ )
	Јесен (n=6)	0,3 – 0,8	0,6 (0,2)	$2,46 \times 10^{-2} - 3,92 \times 10^{-1}$	$1,39 \times 10^{-1}$ ( $1,48 \times 10^{-1}$ )

\*Вредности значајно различите ( $p < 0,05$ ) у односу на вредности пролеће су болдиране.

Концентрације активности  $^{137}\text{Cs}$  у лишћу кестена и липе налазиле су се у интервалу  $0,3-1,2 \text{ Bq kg}^{-1}$  и детектоване су у већини узорака (16 од 18), али без јасног тренда понашања по сезонама (Слика 34). За надземне делове листопадног храста на контаминираном земљишту (активности  $^{137}\text{Cs} > 100 \text{ Bq kg}^{-1}$ ), концентрације активности  $^{137}\text{Cs}$  кретале су се у низу: кора > гранчице > лишће > гране > стабло, а у лишћу су се налазиле у интервалу  $3,2-4,6 \text{ Bq kg}^{-1}$  [106].

Присуство  $^{137}\text{Cs}$  у узорцима лишћа у парковима је последица Чернобиљског акцидента [61, 99]. Пошто су концентрације активности  $^{137}\text{Cs}$  у ваздуху најчешће биле испод mdc вредности [99],  $^{137}\text{Cs}$  је у листове доминантно доспевао након усвајања кореном понашајући се аналогно калијуму. Када  $^{137}\text{Cs}$  у земљишту доспе у област ризосфере, степен контаминаности виших делова дрвета зависиће од капацитета усвајања кореновим системом [95, 106], а резултати овог испитивања указују да у том смислу нема разлике између кестена и липе.

#### 4.5.1. Утицај особина земљишта на трансфер из земљишта у лишће

У сваком парку у истој сезони трансфер фактори (TF) радионуклида између кестена и липе се нису значајно разликовали указујући на сличан механизам трансфера из земљишта у лишће. Из овог разлога су вредности TF груписане заједно по сезонама и вредности сваке групе радионуклида показале су да прате нормалну дистрибуцију.

Резултати концентрација активности ( $Bq\ kg^{-1}$  суве масе) у интегралним узорцима лишћа сакупљеним у сезонама пролеће и јесен током периода истраживања (2002–2012), заједно са њиховим земљиште–лишће трансфер факторима представљени су у Табели 24. Из ове анализе су искључени узорци сакупљени током летеће сезоне, па је користећи тест ANOVA посматрано да ли постоје разлике на почетку и на крају вегетивног периода.

Да би се испитале релације између вредности TF земљиште–биљка и особина земљишта, Пирсонова линеарна корелациона анализа је примењена и резултати су дати у Табели 25.

Интервали трансфер фактора земљиште–лишће кестена и липе били су 0,212–0,316 за  $^{238}U$  и 0,049–0,490 за  $^{235}U$  и одређени су увек у сезони јесен, вредности TF за  $^{226}Ra$  су током вегетивног периода биле у интервалу 0,013–0,110 и средња вредност TF у пролеће (0,028) била је значајно мања ( $p < 0,001$ ) од вредности TF у јесен (0,088). Karunakara *et al.* (2003) су такође уочили промену вредности TF и  $^{226}Ra$  са старошћу лишћа [105].

Познато је да су земљиште–лишће вредности TF земноалкалног метала радијума (+II) обично веће него актинида уранијума (+IV) [12], али супротно томе у овој студији средње вредности TF за  $^{226}Ra$  у обе сезоне биле су значајно мање од оних за уранијум ( $p < 0,05$ ). Иако је радијум био континуално доступан и усвојен, транслокација и акумулација уранијума у листовима почевши од тренутка његове веће доступности у сезони јесен премашила је активност радијума у лишћу током целог вегетивног периода.

Такав резултат се може објаснити високом позитивном корелацијом између TF уранијума и  $CaCO_3$  ( $p < 0,01$ ) и pH ( $p < 0,001$ ) у јесен. Од места нижег садржаја  $CaCO_3$  (око 7% на KP) до места вишег садржаја (>20% на SP и BG), вредности TF  $^{238}U$  и  $^{235}U$  су порасле два и седам пута, респективно. Висок садржај  $CaCO_3$  у

парковском алкалном земљишту је главни услов веће доступности уранијума [12], али његов трансфер из земљишта у лишће се догодио на крају вегетативног периода, највероватније услед пораста рН земљишта од пролеће до јесени.

У парковима је фракција укупног песка (2000–50  $\mu\text{m}$ ) и ситног песка (200 – 50  $\mu\text{m}$ ) била позитивно корелисана са вредностима TF  $^{238}\text{U}$  ( $p < 0,01$ ) и  $^{235}\text{U}$  ( $p < 0,05$ ), респективно. Честице песка су могле имати утицаја на трансфер уранијума из земљишта у листове јер је утврђено да већи проценат уранијумове лабилне фракције потиче од фракција песка (крупног или ситног) него од осталих фракција земљишта [39].

Табела 25. Резултати Пирсонове корелационе анализе између трансфер фактора земљиште–лишће и основних особина земљишта.

		CaCO <sub>3</sub>	рН	Хумус	Крупан песак	Ситан песак	Крупан прах	Ситан прах	Глина
TF( $^{238}\text{U}$ )	Јесен	0,96 <sup>a</sup>	0,99 <sup>b</sup>					–0,98 <sup>a</sup>	–0,99 <sup>b</sup>
TF( $^{235}\text{U}$ )	Јесен					0,95 <sup>a</sup>			
TF( $^{226}\text{Ra}$ )	Пролеће Јесен	–0,88 <sup>a</sup>			0,83	–0,95 <sup>b</sup>		0,82 <sup>a</sup>	
TF( $^{210}\text{Pb}$ )	Пролеће Јесен			–0,82 <sup>a</sup>			0,83 <sup>a</sup>		
TF( $^{40}\text{K}$ )	Пролеће Јесен	0,99 <sup>c</sup>	0,94 <sup>b</sup>			0,95 <sup>b</sup>		–0,99 <sup>c</sup>	–0,93 <sup>b</sup>
		0,98 <sup>c</sup>	0,91 <sup>a</sup>			0,96 <sup>b</sup>		–0,97 <sup>b</sup>	–0,90 <sup>a</sup>
TF( $^{137}\text{Cs}$ )	Пролеће Јесен						0,84 <sup>a</sup>		
				–0,85 <sup>a</sup>			0,88 <sup>a</sup>		

<sup>a</sup> $p < 0,05$ ; <sup>b</sup> $p < 0,01$ ; <sup>c</sup> $p < 0,001$

Вредности TF за  $^{226}\text{Ra}$  показале су значајне корелације са фракцијама ситног праха (10–2  $\mu\text{m}$ ) у пролеће ( $r = 0,82$ ,  $p < 0,05$ ), а затим са крупним песком (2000–200  $\mu\text{m}$ ) у јесен ( $r = 0,83$ ,  $p < 0,05$ ). Слично томе, песак (2000–50  $\mu\text{m}$ ) и лабилне фракције екстраховане из праха (<67  $\mu\text{m}$ ) идентификоване су као фракције са највећим капацитетом за ослобађање радијума када су коришћене као супстрат за раст биљака уместо самог земљишта [74].

Ово сугерише да су се услови доступности и усвајања  $^{226}\text{Ra}$  путем корена виших биљака променили током вегетативног периода, па је на крају тог периода трансфер радијума из земљишта у лишће постао повезан са најкрупнијим честицама, слично као у случају уранијума. Изгледа да у јесен, са порастом рН, доступност оба радионуклида потиче од крупнијих честица земљишта што се може

повезати са механизмом реверзибилне (физичке) сорпције, а не од честица најмањих димензија које су радије узрок ретенције услед иреверзибилне (хемијске) сорпције радионуклида [35].

Вредности трансфер фактора земљиште–лишће кестена и липе у случају  $^{210}\text{Pb}$  варирале су од 0,305 до 1,283 током вегетативног периода, са значајно мањом средњом вредношћу TF у пролеће (0,420) у односу на јесен (0,931) ( $p < 0,001$ ). Вредности TF изотопа олова веће од 1 нађене су и у случају лишћа јабука [90] демонстрирајући веће усвајање  $^{210}\text{Pb}$  фолијарном депозицијом него кореновим путем. У парковима је можда и било усвајања путем корена кестена и липе на основу позитивне корелације  $^{210}\text{Pb}$  TF са крупним прахом ( $r=0,83$ ,  $p < 0,05$ ) у пролеће, али у јесен никакве корелације нису пронађене. Неједнаки кумулативни ефекат  $^{210}\text{Pb}$  депонованог из ваздуха на листове кестена и липе могао је да маскира потенцијалне корелације са особинама земљишта, али је вероватније да је усвајање путем корена потпуно спречено због јаке сорпције олова у присуству већег садржаја  $\text{CaCO}_3$  ( $>10\%$ ) у алкалном земљишту ( $\text{pH} > 7$ ) [91].

Вредности TF липе и кестена варирале су од 0,535 до 1,337 за  $^{40}\text{K}$  и од 0,025 до 0,490 за  $^{137}\text{Cs}$ . Према студији Tagami и Uchida (2010), вредности TF из земљишта у лишће дрвећа не разликују се значајно од вредности из земљишта у лиснато поврће у интервалу од 0,003 до 0,73 за  $^{137}\text{Cs}$  и 1,2 до 1,3 за  $^{40}\text{K}$  [34] и не зависе од климатских разлика за које је утврђено да не утичу значајно на вредности TF стабилних елемената и њихових радиоактивних изотопа [107].

Средње вредности TF за  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{40}\text{K}$  се нису значајно разликовале између сезона и паркова. У свакој сезони, главна позитивна корелација одређена је између фракција крупног праха (50–10  $\mu\text{m}$ ) и вредности TF  $^{137}\text{Cs}$  ( $p < 0,05$ ) и негативна између ситног праха (10–2  $\mu\text{m}$ ) и вредности TF  $^{40}\text{K}$  ( $p < 0,01$ ). Локација SP се могла издвојити као место најмањег садржаја свих фракција праха и највеће концентрације активности цезијума у земљишту на којој су одређене најмање вредности TF  $^{137}\text{Cs}$ , а супротно томе било је у случају трансфера изотопа калијума  $^{40}\text{K}$  (Табела 25). Овакво понашање се могло објаснити употребом ђубрива на бази калијума у земљишту паркова које се обично користи да обезбеди веће фракције доступног калијума које је тиме довело до редуковања усвајања  $^{137}\text{Cs}$  [95].

#### 4.6. Радионуклиди у узорцима траве

У овом поглављу су представљени резултати испитивања радиоактивности узорака биљака сакупљених: а) на земљишту у околини депонија које припадају свакој од четири испитиване термоелектране на угаљ (ТЕ Морава, ТЕ Колубара, ТЕНТ А и ТЕНТ В) и б) на земљишту–пепелу пасивне касете у склопу депонија пепела поменутих термоелектрана. У Табели 26. представљене су особине земљишта у непосредној близини (ознаке 1, 4 и 7) и на већој удаљености (ознаке 2, 5 и 8) од депонија термоелектрана ТЕМ и ТЕК, као и особине земљишта–пепела (у даљем тексту пепела) равног дела пасивне касете депонија пепела (ознаке 3 и 6). На исти начин су у Табели 27. представљени резултати термоелектрана ТЕНТ А и ТЕНТ Б. Вредности концентрација активности природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  у узорцима биљака, земљишта, пепела и њихових трансфер фактора карактеристичним за сваку од четири испитиване локације приказани су у Табелама 28–31.

Пепео се као несагориви остатак настао након процеса сагоревања угља састоји, као и угаљ, од органског и неорганског дела. У подпоглављу 3.1.2. је поменуто да су узорци биљног материјала и одговарајући узорци земљишта–пепела сакупљени са равног дела пасивне касете која се у дужем временском периоду налазила у фази мировања (6 до 10 година) и на чијој површини се применом агротехничких мера формирао биопокривач. Из ових разлога је било очекивано да ће особине узорака пепела сакупљених са пасивне касете депонија пепела показати неке сличности и разлике у односу на узорке земљишта сакупљене у њиховој околини.

Нормалност података као неопходног услова примене статистичке анализе је тестирана и резултати су показали да групе података које се састоје од мерених вредности рН, садржаја хумуса, фракција праха (крупан, ситан, укупан), глине и физичке глине прате нормалну расподелу. Вредности садржаја  $\text{CaCO}_3$  и фракција песка (крупан, ситан, укупан) нормалну расподелу прате након логаритамске трансформације података. Једнофакторска анализа варијансе је примењена да би се уочиле разлике између особина пепела и земљишта, а резултати анализе су приказани у Табели 32.

Табела 26. Особине земљишта и пепела пасивне касете са којег су сакупљени узорци биљака у близини ТЕ Морава и ТЕ Колубара

		Дијаметар фракција								pH <sub>H2O</sub>	pH <sub>KCl</sub>	Хумус (%)	СаСО <sub>3</sub> (%)	Узорак
		Укупан песак (2000-50 µm)	Крупан песак (2000-200µm)	Ситан песак (200-50 µm)	Укупан прах (50-2 µm)	Крупан прах (50-10 µm)	Ситан прах (10-2 µm)	Глина (<2 µm)	Физичка глина (<10 µm)					
ТЕ Морава														
2012	Земљиште у близини ТЕМ	10,3	9,1	1,2	77,4	62,6	14,8	12,3	27,1	7,58	7,20	2,43	3,9	ТЕМ 1
	Земљиште Црквенац	1,6	1,5	0,1	69,3	38,8	30,5	29,2	59,6	6,20	5,50	2,59	0,2	ТЕМ 2
	Пепео пасивна касета ТЕМ	63,5	24,3	39,2	33,3	12,8	20,5	3,2	23,7	8,00	7,81	2,83	4,4	ТЕМ 3
2013	Земљиште у близини ТЕМ	4,3	0,1	4,2	63,7	21,8	41,9	32,1	74,0	7,83	6,87	2,21	0,5	ТЕМ 4
	Земљиште Црквенац	23,0	3,8	19,1	56,0	36,3	19,7	21,1	40,7	7,43	6,58	1,85	0,0	ТЕМ 5
	Пепео пасивна касета ТЕМ	21,9	3,3	18,6	75,8	39,7	36,1	2,3	38,4	8,16	8,17	1,59	2,8	ТЕМ 6
2014	Земљиште у близини ТЕМ	42,3	8,7	33,5	35,1	14,1	21,0	22,7	43,6	7,17	6,79	3,41	1,1	ТЕМ 7
	Земљиште Црквенац	40,8	24,8	16,0	39,0	18,3	20,7	20,2	41,0	7,55	7,02	2,24	1,5	ТЕМ 8
ТЕ Колубара														
2012	Земљиште Велики Црљени	9,9	2,3	7,6	60,3	40,1	20,2	29,8	50,0	7,11	6,47	3,87	0,4	ТЕК 1
	Земљиште Соколово	9,2	1,3	7,8	62,0	46,1	15,8	28,9	44,7	6,07	5,41	2,47	0,4	ТЕК 2
	Пепео пасивна касета ТЕК	59,4	8,3	51,1	35,2	11,9	23,2	5,4	28,6	8,17	8,09	6,56	1,1	ТЕК 3
2013	Земљиште Велики Црљени	17,8	2,5	15,3	56,1	19,3	36,8	26,1	62,9	7,94	7,01	1,48	5,6	ТЕК 4
	Земљиште Соколово	5,6	3,2	2,4	63,9	24,9	39,0	30,6	69,6	6,92	5,89	4,39	0,0	ТЕК 5
	Пепео пасивна касета ТЕК	13,3	2,7	10,6	53,9	23,0	30,9	32,7	63,7	7,46	6,17	0,57	0,0	ТЕК 6
2014	Земљиште Велики Црљени	17,4	6,4	11,0	51,6	17,0	34,5	31,1	65,6	7,1	6,18	3,68	0,2	ТЕК 7
	Земљиште Соколово	8,0	2,8	5,2	55,1	19,5	35,6	37,0	72,6	7,14	6,33	3,45	0,2	ТЕК 8



Табела 27. Особине земљишта и пепела пасивне касете са којег су сакупљени узорци биљака у близини ТЕНТ А и ТЕНТ Б

		Дијаметар фракција								pH <sub>H2O</sub>	pH <sub>KCl</sub>	Хумус (%)	СаСО <sub>3</sub> (%)	Узорак
		Укупан песак (2000-50 µm)	Крупан песак (2000-200µm)	Ситан песак (200-50 µm)	Укупан прах (50-2 µm)	Крупан прах (50-10 µm)	Ситан прах (10-2 µm)	Глина (<2 µm)	Физичка глина (<10 µm)					
ТЕНТ А														
2012	Земљиште у близ. ТЕНТ А	41,5	14,8	26,6	30,6	25,6	5,0	27,9	32,9	7,38	6,82	3,97	2,7	ТЕНТ А 1
	Земљиште Уровци	22,4	4,1	18,2	42,5	25,7	16,8	35,1	51,9	7,52	6,99	4,00	2,8	ТЕНТ А 2
	Пепео пасивна кас. ТЕНТ А	76,5	43,6	32,8	18,9	12,3	6,6	4,6	11,2	7,29	6,86	7,26	0,7	ТЕНТ А 3
2013	Земљиште у близ. ТЕНТ А	5,4	1,5	3,9	75,8	37,3	38,5	18,8	57,3	7,91	7,17	5,30	15,0	ТЕНТ А 4
	Земљиште Уровци	31,7	17,1	14,6	41,8	16,5	25,3	26,5	51,8	7,17	6,47	5,30	0,0	ТЕНТ А 5
	Пепео пасивна кас. ТЕНТ А	56,6	23,3	33,3	40,9	31,0	9,9	2,4	12,4	7,48	7,11	5,30	0,7	ТЕНТ А 6
ТЕНТ В														
2012	Земљиште у близ. ТЕНТ Б	30,7	21,3	9,4	40,1	22,1	18,1	29,2	47,2	7,93	6,88	1,20	2,3	ТЕНТ В 1
	Земљиште Ушће	8,1	3,4	4,7	53,0	33,6	19,4	38,9	58,3	7,1	6,48	3,70	1,1	ТЕНТ В 2
	Пепео пасивна кас. ТЕНТ Б	76,9	19,8	57,1	19,5	12,7	6,8	3,6	10,4	8,44	8,16	1,81	1,0	ТЕНТ В 3
2013	Земљиште у близ. ТЕНТ Б	4,3	0,1	4,2	63,7	21,8	41,9	32,1	74,0	7,83	6,87	2,21	0,5	ТЕНТ В 4
	Земљиште Ушће	23,0	3,8	19,1	56,0	36,3	19,7	21,1	40,7	7,43	6,58	1,85	0,0	ТЕНТ В 5
	Пепео пасивна кас. ТЕНТ Б	79,6	37,0	42,6	16,9	8,8	8,2	3,5	11,7	8,14	7,63	1,97	1,3	ТЕНТ В 6

Табела 28. Концентрације активности ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) у узорцима биљака, земљишта и пепела природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  и вредности њихових трансфер фактора TF ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе/ $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) у близини ТЕ Морава

		$^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$
2012	Биљке у близини ТЕМ	$8,1 \pm 1,9$	$0,31 \pm 0,04$	$8,3 \pm 0,6$	$31 \pm 5$	$2,8 \pm 0,5$	$430 \pm 30$	$<0,08$
	Земљиште у близини ТЕМ	$29 \pm 8$	$1,0 \pm 0,1$	$26 \pm 2$	$42 \pm 16$	$24 \pm 2$	$420 \pm 20$	$31 \pm 1$
	TF ТЕМ 1	0,279	0,310	0,319	0,738	0,117	1,024	–
	Биљке Црквенац	$< 2$	$< 0,1$	$7,8 \pm 0,9$	$16 \pm 4$	$0,6 \pm 0,4$	$940 \pm 60$	$0,18 \pm 0,08$
	Земљиште Црквенац	$37 \pm 9$	$1,7 \pm 0,2$	$37 \pm 4$	$< 8$	$40 \pm 4$	$480 \pm 40$	$25 \pm 2$
	TF ТЕМ 2	–	–	0,211	–	0,015	1,958	0,0072
	Биљке пепео ТЕМ	$5,6 \pm 1,9$	$0,18 \pm 0,04$	$3,4 \pm 0,6$	$35 \pm 5$	$2,4 \pm 0,5$	$260 \pm 20$	$0,20 \pm 0,08$
	Пепео пасивна касета ТЕМ	$110 \pm 20$	$3,8 \pm 0,2$	$131 \pm 7$	$41 \pm 22$	$68 \pm 4$	$440 \pm 20$	$< 0,6$
TF ТЕМ 3	0,051	0,047	0,026	0,854	0,035	0,591	–	
2013	Биљке у близини ТЕМ	$21 \pm 3$	$1,00 \pm 0,08$	$19 \pm 2$	$53 \pm 8$	$10 \pm 1$	$190 \pm 10$	$0,4 \pm 0,1$
	Земљиште у близини ТЕМ	$33 \pm 4$	$2,3 \pm 0,2$	$33 \pm 3$	$30 \pm 4$	$47 \pm 3$	$610 \pm 40$	$3,4 \pm 0,4$
	TF ТЕМ 4	0,636	0,435	0,576	1,767	0,213	0,311	0,118
	Биљке Црквенац	$< 3$	$< 0,2$	$5,2 \pm 0,7$	$53 \pm 6$	$< 0,6$	$80 \pm 6$	$0,18 \pm 0,07$
	Земљиште Црквенац	$24 \pm 7$	$2,1 \pm 0,2$	$25 \pm 2$	$40 \pm 20$	$38 \pm 3$	$540 \pm 30$	$8,1 \pm 0,6$
	TF ТЕМ 5	–	–	0,208	1,325	–	0,148	0,0222
	Биљке пепео ТЕМ	$11,4 \pm 2,5$	$0,47 \pm 0,05$	$11,3 \pm 1,0$	$37 \pm 6$	$6,1 \pm 0,7$	$190 \pm 12$	$< 0,05$
	Пепео пасивна касета ТЕМ	$160 \pm 10$	$9,5 \pm 0,6$	$156 \pm 10$	$160 \pm 10$	$77 \pm 6$	$440 \pm 30$	$< 0,5$
TF ТЕМ 6	0,071	0,049	0,072	0,231	0,079	0,432	–	
2014	Биљке у близини ТЕМ	$< 2$	$< 0,1$	$< 0,5$	$60 \pm 7$	$1,3 \pm 0,4$	$600 \pm 40$	$< 0,03$
	Земљиште у близини ТЕМ	$35 \pm 5$	$1,8 \pm 0,2$	$39 \pm 3$	$42 \pm 4$	$43 \pm 3$	$580 \pm 40$	$19 \pm 1$
	TF ТЕМ 7	–	–	–	1,429	0,030	1,034	–
	Биљке Црквенац	$< 2$	$< 0,1$	$1,1 \pm 0,2$	$19 \pm 7$	$3,2 \pm 0,7$	$840 \pm 50$	$1,2 \pm 0,2$
	Земљиште Црквенац	$33 \pm 5$	$1,4 \pm 0,1$	$33 \pm 2$	$38 \pm 4$	$37 \pm 3$	$450 \pm 30$	$24 \pm 2$
	TF ТЕМ 8	–	–	0,033	0,500	0,086	1,867	–

Табела 29. Концентрације активности ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) у узорцима биљака, земљишта и пепела природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  и вредности њихових трансфер фактора ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе/ $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) у близини ТЕ Колубара.

		$^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$
2012	Биљке Велики Црљени	$5 \pm 2$	$< 0,1$	$7,9 \pm 0,6$	$25 \pm 5$	$3,5 \pm 0,5$	$180 \pm 10$	$< 0,08$
	Земљиште Велики Црљени	$49 \pm 10$	$2,4 \pm 0,2$	$49 \pm 4$	$48 \pm 13$	$51 \pm 4$	$560 \pm 40$	$12 \pm 1$
	TF ТЕК 1	0,102	–	0,161	0,521	0,069	0,321	–
	Биљке Соколово	$< 1,4$	$< 0,07$	$1,8 \pm 0,2$	$13 \pm 3$	$1,2 \pm 0,3$	$280 \pm 20$	$0,13 \pm 0,04$
	Земљиште Соколово	$55 \pm 12$	$4,0 \pm 0,4$	$48 \pm 4$	$90 \pm 20$	$71 \pm 5$	$790 \pm 50$	$41 \pm 3$
	TF ТЕК 2	–	–	0,038	0,141	0,017	0,354	0,003
	Биљке пепео ТЕК	$10,6 \pm 2,5$	$0,20 \pm 0,08$	$1,8 \pm 0,3$	$37 \pm 7$	$2,1 \pm 0,6$	$250 \pm 20$	$0,7 \pm 0,2$
	Пепео пасивна касета ТЕК	$190 \pm 50$	$9,1 \pm 0,8$	$167 \pm 12$	$260 \pm 60$	$130 \pm 10$	$600 \pm 40$	$< 0,3$
TF ТЕК 3	0,056	0,022	0,011	0,143	0,016	0,417	–	
2013	Биљке Велики Црљени	$11 \pm 2$	$0,25 \pm 0,08$	$7 \pm 1$	$65 \pm 6$	$6,1 \pm 1,3$	$145 \pm 10$	$< 0,06$
	Земљиште Велики Црљени	$43 \pm 11$	$2,2 \pm 0,2$	$42 \pm 3$	$< 5$	$51 \pm 4$	$530 \pm 30$	$7,6 \pm 0,6$
	TF ТЕК 4	0,256	0,114	0,167	–	0,120	0,272	–
	Биљке Соколово	$< 3,4$	$< 0,07$	$7,9 \pm 1,1$	$64 \pm 8$	$2,3 \pm 0,8$	$220 \pm 20$	$< 0,09$
	Земљиште Соколово	$38 \pm 10$	$2,1 \pm 0,2$	$47 \pm 4$	$92 \pm 24$	$52 \pm 4$	$500 \pm 30$	$26 \pm 2$
	TF ТЕК 5	–	–	0,168	0,696	0,044	0,438	–
	Биљке пепео ТЕМ	$4,3 \pm 1,5$	$0,17 \pm 0,03$	$3,5 \pm 0,3$	$36 \pm 5$	$4,1 \pm 0,5$	$250 \pm 20$	$< 0,04$
	Пепео пасивна касета ТЕМ	$46 \pm 5$	$2,7 \pm 0,2$	$42 \pm 3$	$32 \pm 5$	$52 \pm 4$	$560 \pm 40$	$0,8 \pm 0,3$
TF ТЕК 6	0,093	0,063	0,083	1,125	0,079	0,446	–	
2014	Биљке Велики Црљени	$< 3$	$0,28 \pm 0,06$	$5,0 \pm 0,8$	$28 \pm 6$	$5,7 \pm 0,8$	$430 \pm 30$	$2,2 \pm 0,2$
	Земљиште Велики Црљени	$51 \pm 4$	$3,5 \pm 0,2$	$37 \pm 3$	$51 \pm 5$	$53 \pm 4$	$550 \pm 30$	$26 \pm 2$
	TF ТЕК 7	–	0,080	0,135	0,549	0,108	0,782	0,085
	Биљке Соколово	$< 2$	$< 0,1$	$< 0,7$	$89 \pm 8$	$1,2 \pm 0,4$	$114 \pm 8$	$0,21 \pm 0,06$
	Земљиште Соколово	$52 \pm 6$	$3,1 \pm 0,3$	$46 \pm 3$	$56 \pm 6$	$63 \pm 4$	$540 \pm 60$	$35 \pm 2$
TF ТЕК 8	–	–	–	1,589	0,019	0,211	0,006	

Табела 30. Концентрације активности ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) у узорцима биљака, земљишта и пепела природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  и вредности њихових трансфер фактора ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе/ $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) у близини ТЕНТ А.

		$^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$
2012	Биљке у близини ТЕНТ А	$3,2 \pm 1,1$	$0,11 \pm 0,02$	$1,3 \pm 0,2$	$29 \pm 5$	$0,8 \pm 0,2$	$350 \pm 20$	$0,3 \pm 0,1$
	Земљиште у близ. ТЕНТ А	$37 \pm 9$	$1,7 \pm 0,2$	$42 \pm 4$	$< 13$	$41 \pm 4$	$430 \pm 40$	$55 \pm 5$
	TF ТЕНТ А 1	0,086	0,065	0,031	–	0,020	0,814	0,005
	Биљке Уровци	$< 1,9$	$< 0,14$	$< 0,8$	$15 \pm 5$	$< 0,3$	$300 \pm 30$	$0,16 \pm 0,08$
	Земљиште Уровци	$31 \pm 5$	$1,8 \pm 0,2$	$37 \pm 3$	$44 \pm 5$	$43 \pm 4$	$560 \pm 50$	$21 \pm 2$
	TF ТЕНТ А 2	–	–	–	0,341	–	0,536	0,008
	Биљке пепео ТЕНТ А	$< 1,3$	$< 0,1$	$2,6 \pm 0,5$	$30 \pm 6$	$< 0,2$	$400 \pm 40$	$< 0,05$
	Пепео пасивна кас, ТЕНТ А	$92 \pm 15$	$4,5 \pm 0,4$	$113 \pm 10$	$94 \pm 26$	$73 \pm 7$	$340 \pm 30$	$< 0,2$
TF ТЕНТ А 3	–	–	0,023	0,319	–	1,176	–	
2013	Биљке у блис, ТЕНТ А	$4,6 \pm 1,2$	$0,16 \pm 0,05$	$1,6 \pm 0,2$	$15 \pm 2$	$< 0,7$	$220 \pm 20$	$< 0,2$
	Земљиште у близ, ТЕНТ А	$30 \pm 10$	$1,9 \pm 0,2$	$34 \pm 3$	$44 \pm 14$	$34 \pm 3$	$460 \pm 30$	$24 \pm 2$
	TF ТЕНТ А 4	0,153	0,084	0,047	0,341	–	0,487	–
	Биљке Уровци	$< 2,4$	$< 0,13$	$< 0,4$	$28 \pm 5$	$1,8 \pm 0,4$	$390 \pm 30$	$0,36 \pm 0,09$
	Земљиште Уровци	$28 \pm 4$	$1,9 \pm 0,2$	$33 \pm 3$	$44 \pm 5$	$36 \pm 3$	$490 \pm 30$	$30 \pm 2$
	TF ТЕНТ А 5	–	–	–	0,050	0,800	0,636	0,012
	Биљке пепео ТЕНТ А	$< 1,8$	$< 0,1$	$3,3 \pm 0,1$	$28 \pm 4$	$1,8 \pm 0,4$	$220 \pm 10$	$0,20 \pm 0,06$
	Пепео пасивна кас. ТЕНТ А	$97 \pm 8$	$5,4 \pm 0,4$	$98 \pm 7$	$91 \pm 8$	$70 \pm 5$	$340 \pm 20$	$< 0,1$
TF ТЕНТ А 6	–	–	0,034	0,026	0,650	0,308	–	

Табела 31. Концентрације активности ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) у узорцима биљака, земљишта и пепела природних радионуклида и произведеног  $^{137}\text{Cs}$  и вредности њихових трансфер фактора ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе/ $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) у близини ТЕНТ В.

		$^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$
2012	Биљке у блис. ТЕНТ В	$3,2 \pm 1,3$	$0,12 \pm 0,04$	$5,8 \pm 0,6$	$17 \pm 3$	$1,4 \pm 0,4$	$470 \pm 30$	$< 0,06$
	Земљиште у близ. ТЕНТ В	$47 \pm 11$	$2,0 \pm 0,2$	$56 \pm 5$	$43 \pm 18$	$58 \pm 5$	$700 \pm 60$	$21 \pm 2$
	TF ТЕНТ В 1	0,671	0,068	0,104	0,060	0,024	0,395	–
	Биљке Ушће	$< 3$	$< 0,1$	$3,6 \pm 0,4$	$< 5$	$< 0,4$	$700 \pm 40$	$< 0,09$
	Земљиште Ушће	$56 \pm 7$	$2,4 \pm 0,2$	$47 \pm 4$	$45 \pm 5$	$55 \pm 5$	$630 \pm 50$	$11 \pm 1$
	TF ТЕНТ В 2	–	–	0,077	–	–	1,111	–
	Биљке пепео ТЕНТ В	$< 1,6$	$< 0,12$	$0,4 \pm 0,1$	$< 4$	$1,1 \pm 0,4$	$310 \pm 30$	$0,10 \pm 0,05$
	Пепео пасивна кас, ТЕНТ В	$110 \pm 11$	$5,1 \pm 0,5$	$88 \pm 8$	$75 \pm 8$	$69 \pm 6$	$360 \pm 30$	$< 0,07$
TF ТЕНТ В 3	–	–	0,004	–	0,016	0,861	–	
2013	Биљке у блис. ТЕНТ В	$< 2,4$	$< 0,1$	$2,5 \pm 0,3$	$20 \pm 4$	$1,8 \pm 0,5$	$290 \pm 20$	$0,20 \pm 0,08$
	Земљиште у близ. ТЕНТ В	$39 \pm 10$	$2,9 \pm 0,2$	$39 \pm 3$	$38 \pm 21$	$57 \pm 4$	$630 \pm 40$	$19 \pm 1$
	TF ТЕНТ В 4	–	–	0,064	0,526	0,032	0,460	0,011
	Биљке Ушће	$< 0,7$	$< 0,06$	$1,5 \pm 0,3$	$20 \pm 2$	$2,5 \pm 0,6$	$260 \pm 20$	$0,5 \pm 0,1$
	Земљиште Ушће	$38 \pm 10$	$1,9 \pm 0,2$	$40 \pm 3$	$38 \pm 21$	$50 \pm 4$	$670 \pm 40$	$< 0,1$
	TF ТЕНТ В 5	–	–	0,038	0,526	0,050	0,388	–
	Биљке пепео ТЕНТ В	$< 1,3$	$0,10 \pm 0,02$	$1,2 \pm 0,2$	$16 \pm 3$	$1,9 \pm 0,3$	$180 \pm 10$	$< 0,02$
	Пепео пасивна кас. ТЕНТ В	$110 \pm 10$	$5,5 \pm 0,4$	$90 \pm 6$	$68 \pm 8$	$70 \pm 5$	$330 \pm 20$	$< 2$
TF ТЕНТ В 6	–	0,018	0,013	0,235	0,027	0,545	–	

Средња вредност садржаја  $\text{CaCO}_3$  није се значајно разликовала између пепела (1,5%) и земљишта (1,9%), као ни садржај хумуса који је износио ~3% на обе подлоге. У пепелу пасивне касете акумулирани хумус може потицати од растуће вегетације или из несагорелог дела угља. Пепео пасивне касете био је слабо алкалан са рН (у  $\text{H}_2\text{O}$ ) у интервалу 7,3 до 8,4. Његова средња рН вредност (7,9) значајно се разликовала од оне у земљишту у близини депонија (7,3) која је била слабо киселе до слабо алкалне реакције (6,1 до 7,9).

Узорци пепела су били најбогатији честицама песка димензија 2000–50  $\mu\text{m}$  при чему је средњи садржај укупног песка у пепелу (56%) био значајно већи ( $p < 0,0001$ ) од оног у земљишту (12%). Средњи укупни садржај укупног праха (50–2  $\mu\text{m}$ ) био је такође значајно већи ( $p < 0,05$ ) у земљишту (54,7%) него у пепелу (36,8%), али се појединачне фракције крупног (50–10  $\mu\text{m}$ ) и ситног (10–2  $\mu\text{m}$ ) праха нису статистички разликовале између те две подлоге (Табела 32). Главна разлика је уочена за механичку фракцију глине ( $F=87,39$ ;  $p < 0,0001$ ), тј. за честице димензија  $< 2 \mu\text{m}$  чији је средњи садржај био значајно већи у земљишту (28,3%) него у пепелу (3,6%). Студије расподеле честица различитих димензија у узорцима пепела насталог након сагоревања угља су показале веома малу заступљеност честица најмањих димензија ( $\leq 2 \mu\text{m}$ ) [93]. Међутим, на овакву расподелу механичких фракција у испитиваним узорцима пепела сакупљеним из површинских слојева могло је утицати и испирање финијих честица ка дубљим слојевима пасивне касете у току периода мировања.

У Табели 32. представљене су вредности концентрација активности одређене у земљишту–пепелу и у земљишту. Вредности концентрација активности било је потребно трансформисати логаритамски (природни логаритам за основу  $e$ ) да би пратиле нормалну расподелу и да би се варијансе међу анализираним групама стабилизовале. Резултати ANOVA теста примењеног након логаритамске трансформације показали су да су вредности концентрација активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$  увек биле значајно веће у пепелу него у земљишту, што је и очекивано. Супротно томе, средње концентрације активности  $^{40}\text{K}$  биле су веће у земљишту (556  $\text{Bq kg}^{-1}$ ) него у пепелу (426  $\text{Bq kg}^{-1}$ ).

Табела 32. Анализа варијансе особина земљишта и концентрација активности ( $Bq\ kg^{-1}$ ) радионуклида између подлоге земљишта и пепела на местима узорковања биљног материјала.

	Земљиште	Пепео	<i>F</i> – однос	<i>p</i> – вредност
2000–50 $\mu m$ (%)	<b>12,0</b> (1,6–42,3)	<b>56,0</b> (13,3–79,6)	28,22	<0,0001
2000–200 $\mu m$ (%)	<b>6,7</b> (0,1–24,8)	<b>20,3</b> (2,7–43,6)	10,73	<0,01
200–50 $\mu m$ (%)	<b>10,4</b> (0,1–33,5)	<b>35,7</b> (10,6–57,1)	29,63	<0,0001
50–2 $\mu m$ (%)	54,7 (30,6–77,4)	36,8 (16,9–75,8)	7,7	<0,05
50–10 $\mu m$ (%)	28,2 (14,1–62,6)	19,0 (8,8–39,7)		
10–2 $\mu m$ (%)	26,4 (5,0–41,9)	17,8 (6,6–36,1)		
<2 $\mu m$ (%)	28,3 (12,3–39,8)	3,6 (2,3–5,4)	87,39	<0,0001
<10 $\mu m$ (%)	54,7 (27,1–74,6)	25,0 (10,4–63,7)	21,45	<0,001
ОМ (%)	3,3 (1,2–5,3)	3,5 (0,6–7,3)		
CaCO <sub>3</sub> (%)	<b>1,9</b> (0–15,0)	<b>1,5</b> (0–4,4)		
pH (H <sub>2</sub> O)	7,3 (6,1–7,9)	7,9 (7,3–8,4)	9,66	<0,01
pH (KCl)	6,5 (5,4–7,2)	7,5 (6,2–8,2)	15,95	<0,001
<sup>238</sup> U	<b>38,2</b> (24–56)	<b>106,3</b> (46–190)	66,10	<0,0001
<sup>235</sup> U	<b>2,1</b> (1,0–4,0)	<b>5,3</b> (2,7–9,5)	40,68	<0,0001
<sup>226</sup> Ra	<b>38,7</b> (25–56)	<b>102,9</b> (42–167)	66,62	<0,0001
<sup>232</sup> Th	<b>45,9</b> (24–71)	<b>73,7</b> (52–130)	20,3	<0,001
<sup>40</sup> K	<b>548</b> (420–790)	<b>416</b> (330–600)	12,55	<0,01
<sup>210</sup> Pb	<b>46,5</b> (30–92)	<b>83,5</b> (32–258)	9,43	<0,01
<sup>137</sup> Cs	<b>19,5</b> (3,4–55,0)	0,8 –		

\*Напомена: за лог–нормалану расподелу дата је геометријска средина (болдираним цифрама), за нормалну расподелу аритметичка средина

Раније је поменуто (подпоглавље 3.1.2) да су ради постизања значајнијих разлика међу вредностима концентрација активности природних радионуклида које се могу одредити у земљишту испитивани и узорци биљака са подлоге која није земљиште већ земљиште–пепео сакупљен са депонија пепела термоелектрана.

У даљем тексту биће коришћен термин *супстрат* да би означио подлогу на којој је сакупљан биљни материјал истог типа (траве и лековите траве) без обзира на то да ли је то земљиште или земљиште–пепео (у даљем тексту пепео).

У Табели 32. може се приметити да су се измерене концентрације активности супстрата налазиле у укупном интервалу ( $Bq\ kg^{-1}$ ): 24–190 за  $^{238}U$ , 1,0–9,5 за  $^{235}U$ , 25–167 за  $^{226}Ra$ , 30–258 за  $^{210}Pb$ , 24–130 за  $^{232}Th$ , 330–790 за  $^{40}K$  чиме је постигнут шири интервал концентрација активности у супстрату него у случају да је подлогу представљало само земљиште.

Уочено је да је вредност концентрација активности  $^{238}U$ ,  $^{235}U$ ,  $^{226}Ra$  била већа просечно 2,7 пута у пепелу у односу на земљиште уз термоелектране и просечно 1,7 пута у случају  $^{210}Pb$  и  $^{232}Th$ . У литератури се може наћи да су након сагоревања Колубарског лигнита одређене сличне вредности обогаћења летећег пепела и шљаке природним радионуклидима од приближно 2,5 и 1,5 пута, респективно у ТЕК и ТЕНТ А [51]. Блиске вредности повећања концентрације активности природних радионуклида у пепелу у односу на земљиште и у пепелу у односу на угаљ (Колубарски лигнит) су највероватније одређене будући да се сматра да је активност земљишта и угља истог геолошког порекла слична [16].

Што се тиче произведеног  $^{137}Cs$ , његове активности су одређене у сваком узорку земљишта ( $3,4–55,0\ Bq\ kg^{-1}$ ), а у пепелу пасивне касете активност је одређена у једном узорку ( $0,8\ Bq\ kg^{-1}$ ), а у осталим је била испод  $mdc$  вредности.

Резултати мерења концентрација активности узорака биљног материјала сакупљених на земљишту и пепелу приказани су у Табели 33. Најчешће је у узорцима биљног материјала био детектован  $^{40}K$  (број узорака  $n=28$ ), а затим и  $^{226}Ra$ ,  $^{210}Pb$  и  $^{232}Th$  ( $n=24–26$ ). У биљкама су детектовани и изотопи уранијума ( $n=11$ ) и  $^{137}Cs$  ( $n=15$ ), али им се активност чешће налазила испод  $mdc$  вредности. Све појединачне групе концентрација активности пратиле су нормалну расподелу након логаритамске трансформације (за основу  $e$ ).

Претходно је у Табели 32. приказано да су у пепелу одређене значајно веће концентрације активности природних радионуклида (осим  $^{40}K$ ) у односу на земљиште. Међутим, ANOVA тест примењен на лог–трансформисане вредности концентрација активности у узорцима биљка на пепелу је показао да се оне нису статистички значајно разликовале од оних на земљишту (на нивоу  $p<0,05$ ).



У студији радиоактивности различитих врста лековитог биља пореклом из Србије које је сакупљено на земљишту истог нивоа активности као у овом раду одређене су концентрације активности ( $Bq\ kg^{-1}$  суве масе):  $<mdc-38,7$  за  $^{226}Ra$ ;  $<mdc-30$  за  $^{232}Th$ ;  $176-1615$  за  $^{40}K$ ,  $<mdc-24$  за  $^{137}Cs$  [64], чије се вредности налазе у ширем интервалу него у овом раду. И у близини термоелектрана на угаљ на подручју Румуније у узорцима исте врсте као у овом раду (самоникла вегетација) одређене су веће горње вредности активности ( $Bq\ kg^{-1}$  суве масе):  $0,1-61,0$  за  $^{238}U$ ,  $0,7-40$  за  $^{226}Ra$ ,  $1,5-83$  за  $^{232}Th$ ,  $220-1450$  за  $^{40}K$  [108]. Такве разлике су очекиване јер је усвајање радионуклида комплексан процес који зависи више фактора, као што су климатски услови у којима биљна врста успева, карактеристике земљишта, физичко-хемијски облици радионуклида у земљишту итд. [12, 34].

Када се ради о трансфер факторима (TF), све групе вредности TF испитиваних радионуклида у узорцима трава показале су лог-нормалну расподелу, као и концентрације активности радионуклида. Познато је да вредности TF земљиште-биљка типично прате лог-нормалну расподелу, тако да геометријска средња вредност и геометријска стандардна девијација карактеришу такве скупове података [34, 38, 76, 77]. Геометријске средине и интервали трансфер фактора испитиваних радионуклида дати су у Табели 33. Вредности TF у овом раду биле су у оквиру интервала трансфер фактора земљиште-трава за прашкаста земљишта наведеним у публикацији ИАЕА (2010):  $3,7 \cdot 10^{-4}-4,56 \cdot 10^{-1}$  за U,  $9,63 \cdot 10^{-2}-7,19 \cdot 10^{-1}$  за Ra,  $7,4 \cdot 10^{-4}-6,52 \cdot 10^{-1}$  за Th и  $1,2 \cdot 10^{-2}-2,1 \cdot 10^{-1}$  за Cs [34].

Након логаритмовања, уочено је да се вредности TF радионуклида  $^{210}Pb$ ,  $^{232}Th$  и  $^{40}K$  из пепела у биљке нису значајно разликовале од оних из земљишта у биљке (на нивоу  $p < 0,05$ ). Значајне разлике су одређене за  $^{238}U$  ( $F=14,50$ ;  $p < 0,01$ ),  $^{235}U$  ( $F=9,0$ ;  $p < 0,05$ ) и  $^{226}Ra$  ( $F=5,23$ ;  $p < 0,05$ ) чије су вредности TF биле за ред величина веће при трансферу из земљишта у биљке (0,104; 0,170; 0,122) него из пепела у биљке (0,023; 0,036; 0,066; респективно). Исти резултат, да разлика нема за  $^{210}Pb$ ,  $^{232}Th$  и  $^{40}K$  и да су разлике значајне за  $^{238}U$ ,  $^{235}U$  и  $^{226}Ra$  добијен је у студији Скоко *et al.* (2017) за узорак траве и лековитог биља при поређењу вредности TF из земљишта у биљке и из пепела у биљке [109]. Овакво понашање би могло бити последица тзв. механизма сатурације као физиолошког одговора многих биљака,

па и фамилија траве, на повећање концентрација активности радионуклида у супстрату [76, 77].

Иако су веће концентрације за  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{226}\text{Ra}$  одређене у пепелу, TF пепео–биљка био је мањи од TF земљиште–биљка што се може тумачити мањом покретљивишћу, а тиме и доступношћу ових радионуклида биљкама које су успевале на пепелу. Зависност добијених вредности TF за  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{232}\text{Th}$  (у интервалу 0,004–0,350) од концентрација активности радионуклида у супстрату (20–200  $\text{Bq kg}^{-1}$ ) илустрована је на Слици 35. Такав типични експоненцијални пад вредности TF земљиште–биљка са укупним концентрацијама у земљишту одређен је у литератури за есенцијалне и неесенцијалне елементе [34, 75, 76].

Табела 33. Геометријске средине и интервали активности ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе) испитиваних радионуклида у узорцима биљног материјала и њихових трансфер фактора ( $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе/ $\text{Bq kg}^{-1}$  суве масе).

	Активност ( $\text{Bq kg}^{-1}$ С.М.)		TF ( $\text{Bq kg}^{-1}$ С.М./ $\text{Bq kg}^{-1}$ С.М.)	
	Биљка (Земљиште)	Биљка (Пепео)	Земљиште– биљка	Пепео– биљка
$^{238}\text{U}$	6,4 (<1,4–21,0)	7,3 (<1,3–11,4)	0,170 (0,068–0,636)	0,066 (0,051–0,093)
$^{235}\text{U}$	0,2 (<0,1–1,0)	0,2 (<0,1–0,5)	0,122 (0,060–0,435)	0,036 (0,018–0,063)
$^{226}\text{Ra}$	4,0 (<0,8–19,0)	2,3 (0,4–11,3)	0,104 (0,031–0,576)	0,023 (0,004–0,083)
$^{232}\text{Th}$	2,2 (<0,4–10,0)	2,4 (<0,2–6,1)	0,047 (0,015–0,213)	0,033 (0,016–0,079)
$^{40}\text{K}$	310 (80–940)	250 (180–400)	0,560 (0,148–1,958)	0,601 (0,417–1,176)
$^{210}\text{Pb}$	29,1 (<5–89)	30,3 (<4–37)	0,617 (0,141–1,767)	0,357 (0,143–1,125)
$^{137}\text{Cs}$	0,3 (<0,06–2,2)	0,2 (<0,02–0,7)	0,013 (0,003–0,117)	–

Посматрајући TF вредности независно од подлоге на којој су узорковане биљке, једнофакторском анализом варијансе је уочено и да су се геометријске средње вредности шест група трансфер фактора ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) међусобно значајно разликовале ( $F=74,70$ ;  $p<0,0001$ ).

При томе су се као хомогене показале групе TF вредности парова радионуклида  $^{238}\text{U}$  (0,080) и  $^{235}\text{U}$  (0,062), затим  $^{226}\text{Ra}$  (0,036) и  $^{232}\text{Th}$  (0,027) и пара  $^{210}\text{Pb}$  (0,438) и  $^{40}\text{K}$  (0,521). Усвајање  $^{238}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  није изотопски зависно па се разлике међу њиховим TF вредностима и не очекују. Међутим, сличности у усвајању  $^{226}\text{Ra}$

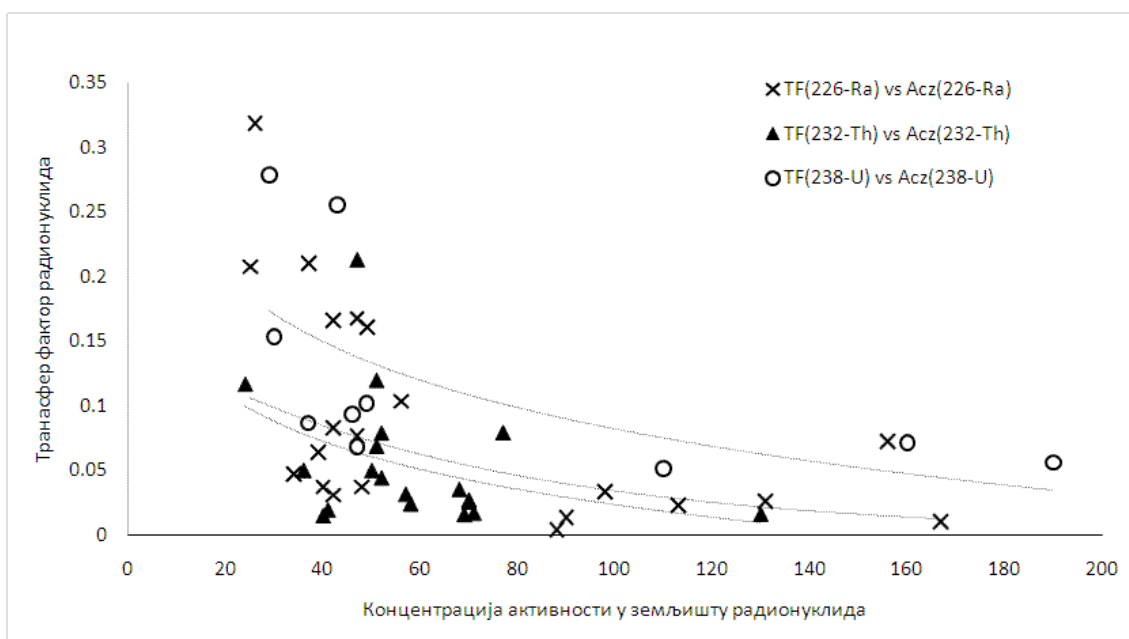
и  $^{232}\text{Th}$  нису очекиване јер је торијум веома недоступан елемент због своје мале растворљивости и слабе покретљивости, а супротно томе радијум је биљкама веома доступан елемент због свог аналогног понашања есенцијалном калцијуму [15].

Активности  $^{232}\text{Th}$  одређене су применом гамаспектрометријског метода под претпоставком секуларне равнотеже између  $^{232}\text{Th}$  и његових потомака  $^{228}\text{Ra}$  и  $^{228}\text{Ac}$  за коју се не може тврдити да је успостављена у узорцима биљака [110]. С обзиром на већу покретљивост и доступност изотопа радијума у земљишту, може доћи до сепарације  $^{228}\text{Ra}$  у односу на  $^{232}\text{Th}$  што узрокује нарушавање равнотеже у низу, а након усвајања од стране биљке, време вегетативног периода је исувише кратко за поновно успостављање равнотеже. Због тога се не може разлучити да ли су измерене концентрације активности  $^{228}\text{Ac}$  биљних узорака које се приписују  $^{232}\text{Th}$  последица усвајања и распада  $^{232}\text{Th}$  или последица директног усвајања  $^{228}\text{Ra}$  из супстрата [109, 110], што је разлог одсуства разлика између вредности TF за  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{232}\text{Th}$ .

Када се ради о радионуклидима  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{40}\text{K}$ , уочено је: а) одсуство значајних разлика међу њиховим свеукупним средњим вредностима TF (0,438 и 0,521, респективно), б) њихове средње вредности TF биле су за ред величина веће ( $p < 0,01$ ) од вредности TF осталих природних радионуклида и в) међу вредностима TF  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{40}\text{K}$  одређеним на подлогама земљишта и пепела није било разлика (на нивоу  $p < 0,05$ ). За ред величине веће вредности трансфер фактора  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{40}\text{K}$  указују на њихово веће усвајање од стране биљака у односу на остале испитиване радионуклиде, међутим то усвајање има различито порекло.

Примећено је да су земљиште–трава вредности TF радионуклида  $^{40}\text{K}$  одређене у интервалу 0,16–2,42 за узорке сакупљене на необрађиваном земљишту (у периоду од 11 година) [111] биле врло сличне вредностима у овом раду у интервалу 0,148–1,958, иако су просечне концентрације активности  $^{40}\text{K}$  у супстрату биле ниже у поменутој студији ( $224 \text{ Bq kg}^{-1}$ ) него у овом раду ( $518 \text{ Bq kg}^{-1}$ ). Мале разлике међу поменутиим вредностима TF одраз су сличних потреба различитих фамилија трава за есенцијалним елементом калијумом. Биљке континуално усвајају калијум, а тиме и изотоп  $^{40}\text{K}$  током вегетативног периода путем кореновог система у зависности од свог метаболизма, а независно од његове концентрације у земљишту односно супстрату [97, 101, 105].

Супротно томе, фолијарна депозиција изотопа  $^{210}\text{Pb}$  из атмосфере сматра се доминантном путањом у односу на путању усвајања кореном. У овом раду је концентрација активности  $^{210}\text{Pb}$  у пепелу била значајно већа него у земљишту, али истовремено се вредности  $\text{TF } ^{210}\text{Pb}$  из пепела у биљке нису разликовале од оних из земљишта у биљке. Овај резултат указује да се значај усвајања путем кореновог система може занемарити у односу на доминантно усвајање изотопа олова фолијарним путем из атмосфере које се у истој мери одвијало на обе подлоге.



Слика 35. Зависност трансфер фактора радионуклида  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{232}\text{Th}$  од њихове концентрације активности у земљишту

#### 4.6.1. Утицај особина земљишта на трансфер из земљишта у траву

Утицај особина земљишта на вредности  $\text{TF}$  радионуклида из супстрата (земљишта или пепела) у биљке испитан је одређивањем степена корелисаности између ових величина Пирсоновом анализом. Резултати анализе представљени су у Табели 34. у којој се може приметити да су значајне корелације успостављене само са механичким саставом земљишта, али не и са особинама  $\text{pH}$  вредношћу, садржајем хумуса и калцијум–карбоната. Слично томе, корелације нису успостављене у студији трансфера природних радионуклида из пепела у биљке

између вредности TF и особина рН, губитка масе жарењем (пропорционалном садржају органске материје) и електричне проводљивости [109].

Концентрација радионуклида у земљишном раствору, а тиме и његова доступност биљкама је највероватније повезана са реакцијама сорпције/десорпције на земљишним честицама [98]. Због тога гранулометријска расподела земљишта битно утиче на доступну фракцију радионуклида, а тиме и на трансфер из земљишта у биљке [12, 39, 72, 73, 95].

У овом раду, вредност TF природних радионуклида из супстрата у биљке значајно је расла заједно са садржајима финијих фракција земљишта, праха и глине. Јака позитивна корелација је одређена између вредности  $\ln TF^{238U}$  ( $p < 0,05$ ) и  $\ln TF^{235U}$  ( $p < 0,01$ ) и фракције физичке глине ( $< 10 \mu m$ ). Између вредности  $\ln TF^{226Ra}$  ( $p < 0,01$ ) и  $\ln TF^{232Th}$  ( $p < 0,05$ ) одређена је средње јака до јака позитивна корелација са фракцијом укупног праха ( $50-2 \mu m$ ).

За разлику од вредности TF за U, Ra и Th, механичке фракције су биле у слабој корелацији са  $\ln TF^{210Pb}$  (физичка глина) и  $\ln TF^{40K}$  (песак) чији узрок су већ поменути различити механизми усвајања радионуклида  $^{40K}$  и  $^{210Pb}$  међусобно и у односу на остале радионуклиде. Анализа трансфера радиоизотопа цезијума из земљишта у биљке није спроведена услед недостатка корелација између особина земљишта и вредности TF за  $^{137Cs}$ .

Табела 34. Резултати Пирсонове корелационе анализе између трансфер фактора земљиште–биљка и пепео–биљка посматраних заједно и механичких фракција супстрата.

	Укупан песак	Крупан песак	Ситан песак	Укупан прах	Крупан прах	Ситан прах	Физичка глина	Глина	<i>n</i>
$\ln TF^{(238U)}$	-0,71 <sup>a</sup>		-0,66 <sup>a</sup>	0,71 <sup>a</sup>	0,60 <sup>a</sup>		0,79 <sup>a</sup>		10
$\ln TF^{(235U)}$	-0,79 <sup>b</sup>	-0,62 <sup>a</sup>	-0,77 <sup>b</sup>			0,63 <sup>a</sup>	0,83 <sup>b</sup>	0,68 <sup>a</sup>	11
$\ln TF^{(226Ra)}$	-0,78 <sup>c</sup>	-0,58 <sup>b</sup>	-0,80 <sup>c</sup>	0,75 <sup>c</sup>	0,54 <sup>b</sup>	0,54 <sup>b</sup>	0,64 <sup>c</sup>	0,55 <sup>b</sup>	24
$\ln TF^{(210Pb)}$						0,45 <sup>a</sup>	0,46 <sup>a</sup>	0,43 <sup>a</sup>	23
$\ln TF^{(232Th)}$	-0,58 <sup>b</sup>		-0,59 <sup>b</sup>	0,63 <sup>b</sup>		0,50 <sup>a</sup>	0,44 <sup>a</sup>		21
$\ln TF^{(40K)}$	0,44 <sup>a</sup>	0,53 <sup>b</sup>		-0,43 <sup>a</sup>		-0,59 <sup>b</sup>	-0,51 <sup>b</sup>		26
$\ln TF^{(137Cs)}$									10

Ниво значајности: <sup>a</sup> $p < 0,05$ ; <sup>b</sup> $p < 0,01$ ; <sup>c</sup> $p < 0,001$

Уведимо сада претпоставку да трансфер фактор не зависи од укупне активности неког радионуклида у супстрату, већ од дела активности доступном биљкама. Резултат претходне анализе наговештава да је тај део активности у релацији са процентуалним садржајем неке механичке фракције супстрата из које би она могла да потиче.

Ако трансфер не зависи од укупне активности радионуклида у супстрату  $A_{CZ}$ , већ од доступног дела активности  $A'_{CZ}$  који потиче од одређене механичке фракције, онда би се „доступна“ активност могла проценити на следећи начин из једначине (70):

$$A'_{CZ} = f \cdot A_{CZ} \quad (70)$$

где је  $A'_{CZ}$  ( $Bq\ kg^{-1}$ ) део активности који учествује у трансферу из земљишта у биљке,  $A_{CZ}$  ( $Bq\ kg^{-1}$ ) укупна измерена активност у супстрату, а  $f$  (%) процентуални садржај одређене механичке фракције.

Ако би за вредност фракције  $f$  био коришћен процентуални садржај физичке глине у случају  $^{238}U$  и  $^{235}U$  и укупног праха у случају  $^{226}Ra$  и  $^{232}Th(^{228}Ra)$  добијен на основу резултата корелационе анализе (Табела 34), испитајмо квалитет резултата којим би се проверила претпоставка линаерности. Раније поменута једначина (53) би се кориговала, тако да се добија:

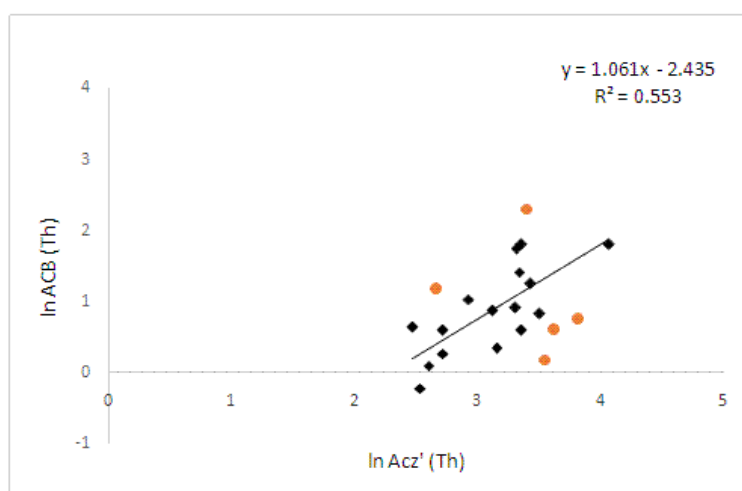
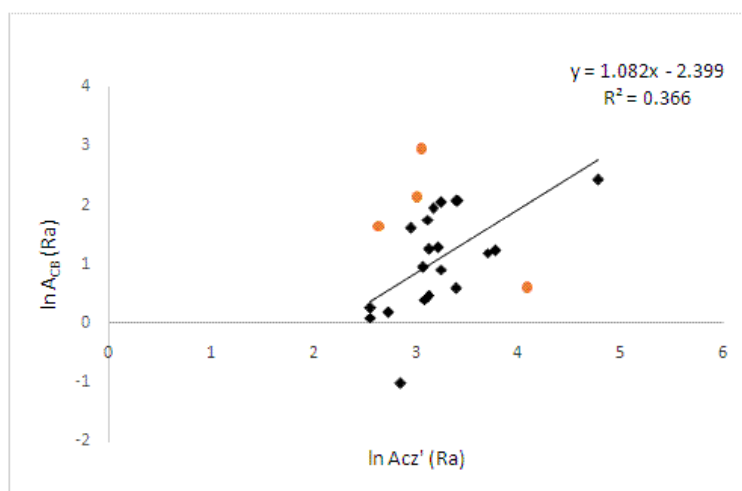
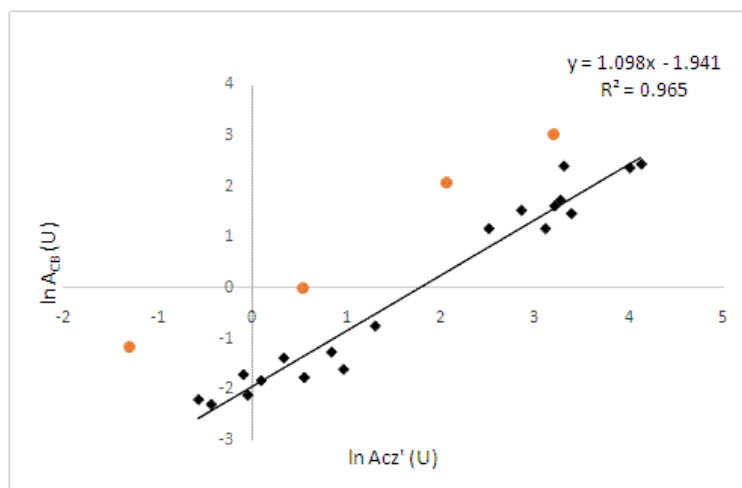
$$\ln A_{CB} = k \cdot \ln A'_{CZ} + \ln F_v \quad (71)$$

Ако се након просте линеране регресионе анализе над експерименталним подацима за коефицијент правца добија вредност  $k=1$ , онда се на основу одсечка на  $y$ -оси  $n$  може одредити  $F_v$ :

$$n = \ln F_v \quad \Rightarrow \quad F_v = e^n \quad (72)$$

односно фактор концентрисања ( $F_v$ ) једнак је трансфер фактору (TF) датог радионуклида који онда не зависи од концентрације активности радионуклида у супстрату у испитиваном интервалу вредности.

Резултати линеарне регресије су дати у Табели 35. и илустровани на Слици 36. Раније је показано да се средње вредности TF два изотопа уранијума  $^{238}U$  (0,080) и  $^{235}U$  (0,062) статистички нису значајно разликовале и из овог разлога су њихове концентрације активности посматране као једна група података.



Слика 36. Зависност природног логаритма концентрације активности уранијума, радијума и торијума у биљном материјалу  $\ln A_{CB}$  од логаритма кориговане концентрације активности у земљишту  $\ln A_{CZ}'$ .

На распршеност података која се може посматрати на Слици 36. утиче више фактора (поглавље 2.3.4), а најзначајнији је нехомогена композиција узорака биљног материјала која се разликовала у односу на место узорковања. Раније је поменуто да вредности концентрација активности  $^{235,238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{232}\text{Th}$  у биљном материјалу прате лог-нормалну расподелу, без обзира на нехомогеност узоракованог биљног материјала. Да би проста линеарна регресиона анализа могла бити примењена одбачене су статистички нетипичне тачке (маркиране црвеном бојом, Слика 36) које су већином одговарале вредностима трансфер фактора већим од 0,200 независно од врсте радионуклида.

Табела 35. Вредности коефицијента правца  $k$  и одсечка  $n$  на  $y$ -оси добијени простом линеарном регресионом анализом.

	$k \pm \Delta k$	$n \pm \Delta n$	$r$	$R^2$ ( $R^{2*}$ )	$p$
$^{235,238}\text{U}$	$1,098 \pm 0,051$	$-1,942 \pm 0,119$	0,982	0,965 (0,963)	$p < 0,0001$
$^{226}\text{Ra}$	$1,082 \pm 0,336$	$-2,399 \pm 1,092$	0,605	0,366 (0,331)	$p < 0,01$
$^{232}\text{Th}$	$1,061 \pm 0,255$	$-2,435 \pm 0,801$	0,744	0,553 (0,521)	$p < 0,001$

На основу коефицијената детерминације (Табела 35) се може закључити да за испитане радионуклиде приближно важи претпоставка линеарности ( $k \approx 1$ ) што упућује на то да у трансферу учествује део активности који потенцијално потиче од одређене механичке фракције супстрата. Судајући према параметрима којима се регресија оцењује, претпоставка да трансфер  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{232}\text{Th}$  ( $^{228}\text{Ra}$ ) из супстрата у биљке потиче од фракције укупног праха се може у мањој мери прихватити вероватно услед утицаја и других особина земљишта осим механичких фракција. Параметри регресије којима се проверава да ли је фракције физичке глине повезана са доступношћу изотопа уранијума били су бољег квалитета захваљујући широком интервалу концентрација активности супстрата који је могао бити обухваћен (два реда величина).

На основу одсечка на  $y$ -оси, одређене су вредности  $Fv$  односно TF из супстрата у биљке карактеристичне за испитивано подручје термоелектрана. Добијене вредности TF које износе 0,143 за уранијум, затим 0,091 за радијум и 0,088 за торијум могле би се сматрати општим вредностима трансфер фактора



испитиваних радионуклида из земљишта и из пепела у биљке путем кореновог система у близини термоелектрана. Вредности трансфер фактора веће од наведених би онда упућивале да је усвајање датог радионуклида другачијег порекла (нпр. од ресуспендованих честица земљишта или фолијарна депозиција), а ниже вредности на смањену доступност односно већу ретенцију датог нуклида у супстрату.

На основу добијених резултата може се закључити да постоји оправданост постављене предпоставке да у трансферу из супстата у биљке не учествује укупна концентрација активности присутна у земљишту већ њен део повезан са одређеном механичком фракцијом, а да би се на основу њеног процентуалног садржаја одредила доступна фракција потребна су детаљнија испитивања.

## 5. Закључак

У земљишту третираном фосфатним ђубривима, урбаном и у непосредној близини термоелектрана на фосилна горива измерене концентрације активности налазиле су се у интервалима ( $Bq\ kg^{-1}$ ): 14–117 за  $^{238}U$ , 21–115 за  $^{226}Ra$ , <3–65 за  $^{210}Pb$ , 0,8–6,0 за  $^{235}U$ , 20–69 за  $^{232}Th$ , 320–740 за  $^{40}K$  и <0,10–54 за  $^{137}Cs$ . Наведене вредности природних радионуклида одговарале су просечним вредностима из UNSCEAR (2010) извештаја осим у једном узорку земљишта сакупљеном у близини термоелектрана (концентрација активности  $117\ Bq\ kg^{-1}$  за  $^{238}U$ ,  $115\ Bq\ kg^{-1}$  за  $^{226}Ra$ ,  $69\ Bq\ kg^{-1}$  за  $^{232}Th$ ).

На појединачним локацијама дистрибуције вредности концентрација активности испитиваних радионуклида показале су значајне корелације са основним физичко–хемијским особинама земљишта: гранулометријским саставом, рН вредношћу, садржајима органске материје/хумуса и калцијум–карбоната добијеним на основу Пирсонове корелационе анализе.

У земљишту третираном фосфатним ђубривима, на основу одступања односа активности  $^{238}U/^{40}K$ ,  $^{238}U/^{226}Ra$  и  $^{238}U/^{232}Th$  од очекиваних природних вредности у слоју дубине 0–80 cm могло се закључити да се укупна активност уранијума  $^{238}U$  састојала из дела природног порекла и дела унесеног у земљиште антропогеним дејством.

У земљишту урбаног подручја испитане су варијације вредности односа активности  $^{238}U/^{226}Ra$ ,  $^{232}Th/^{226}Ra$ ,  $^{235}U/^{238}U$  и  $^{210}Pb/^{137}Cs$  у слоју дубине 0–50 cm биле су у значајним корелацијама са особинама земљишта. При томе, исти ефекат на вредности односа  $^{238}U/^{226}Ra$  пореклом из земљишта и логаритама  $^{210}Pb/^{137}Cs$  пореклом из ваздуха имали су алкална рН реакција, акумулација органске материје у површинском слоју и калцијум–карбоната у најдубљем слоју земљишта.

Анализирајући све мерене вредности концентрација активности примећено је да на њих утицај имају основне физичко–хемијске особине земљишта независно од врсте антропогеног дејства.

На основу једнофакторске анализе варијансе могло се закључити да се концентрације активности радионуклида у земљишту значајно разликују у две области дефинисане вредношћу рН у КСI у интервалу 4,6–7,0 (кисела до неутрална) и 7,1–7,6 (слабо до средње алкална). Средња вредност концентрација активности

$^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$  увек је била значајно већа у нижем интервалу рН у односу на вредност у вишем. Више киселу реакцију већином су показивали узорци земљишта сакупљени у близини термоелектрана, алкалну реакцију узорци из паркова, а узорци земљишта третирани фосфатним ђубривом су се могли наћи у оба издвојена интервала.

Применом методе вишеструке линеарне регресије у оба карактеристична рН интервала, добијени су модели којима се концентрације активности природних радионуклида могу предвидети основним физичко–хемијским особинама земљишта. Међутим, дистрибуција  $^{137}\text{Cs}$  као произведеног радионуклида је могла бити описивана особинама земљишта само на појединачним локацијама.

Судећи према оценама квалитета регресије, понашање  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{232}\text{Th}$  у киселом до неутралном земљишту се могло боље описивати испитиваним особинама него у алкалном највероватније услед њихове мање покретљивости у нижем рН интервалу. Најслабије резултате показало је моделовање активности  $^{238}\text{U}$  у алкалном земљишту што је последица ограничења одређивања  $^{238}\text{U}$  методом гамаспектрометрије.

Током вишегодишњег истраживања (2002–2012) и након постигнуте веће ефикасности детекције одређени су нивои основног гама–зрачења у узорцима лишћа листопадног дрвећа кестена и липе у сезонама пролеће, лето, јесен. Укупне измерене вредности концентрација активности узорака лишћа налазиле су се у интервалу ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 2,7–11,7 за  $^{238}\text{U}$ , 0,13–1,0 за  $^{235}\text{U}$ , 0,5–5,6 за  $^{226}\text{Ra}$ , 15–52 за  $^{210}\text{Pb}$ , 1,8–3,3 за  $^{232}\text{Th}$ , 310–650 за  $^{40}\text{K}$  и 0,3–1,2 за  $^{137}\text{Cs}$ .

Садржаји  $\text{CaCO}_3$  и рН земљишта показали су значајне позитивне корелације са вредностима земљиште–лишће трансфер фактора  $^{238}\text{U}$  и  $^{40}\text{K}$ , садржаји хумуса негативне са вредностима  $\text{TF}^{210}\text{Pb}$  и  $^{137}\text{Cs}$ , а механичке фракције песка (ситног, крупног или укупног) позитивно су корелисале са вредностима  $\text{TF}^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{226}\text{Ra}$  из земљишта у лишће у јесен.

Проширење интервала концентрација активности које је измерено у укупном интервалу ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ): 24–190 за  $^{238}\text{U}$ , 1,0–9,5 за  $^{235}\text{U}$ , 25–167 за  $^{226}\text{Ra}$ , 30–258 за  $^{210}\text{Pb}$ , 24–130 за  $^{232}\text{Th}$ , 330–790 за  $^{40}\text{K}$ , 0,8–55 за  $^{137}\text{Cs}$  постигнуто је коришћењем земљишта и пепела као супстрата са којих је сакупљена самоникла вегетација истог типа (траве и лековите раве). Као супстрат за раст биљака, алкални

пепео и рН неутрално земљиште показали су сличности судећи по садржајима калцијум-карбоната, органске материје и фракција крупног и финог песка.

Концентрације активности свих испитиваних радионуклида увек биле мање у земљишту него у пепелу (осим за  $^{40}\text{K}$ ) али се концентрације активности у узорцима биљака на пепелу нису статистички значајно разликовале од оних на земљишту указујући да усвајање не зависи од типа супстрата. Вредности концентрација активности узорака трава и лековитих трава су се налазиле у укупном интервалу ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ):  $<1,3\text{--}21,0$  за  $^{238}\text{U}$ ,  $<0,1\text{--}1,0$  за  $^{235}\text{U}$ ,  $<0,4\text{--}19,0$  за  $^{226}\text{Ra}$ ,  $<4\text{--}89$  за  $^{210}\text{Pb}$ ,  $<0,2\text{--}10,0$  за  $^{232}\text{Th}$ ,  $80\text{--}940$  за  $^{40}\text{K}$ ,  $<0,02\text{--}2,2$  за  $^{137}\text{Cs}$ .

Резултати корелационе анализе показали су значајне везе између вредности ТФ радионуклида (осим  $^{137}\text{Cs}$ ) са механичким саставом земљишта. Испитана је претпоставка да ли у трансферу из супстрата у биљке не учествује укупна активност неког радионуклида у супстрату, већ само део те активности доступан биљкама. Резултати анализе су упућивали да тај део потенцијално потиче од одређене механичке фракције супстрата.

## Литература

- [1] Иван А. Гржетић, И. А., Раде Ј. Јеленковић, Р. Ј., Природни радиоактивни елементи, геолошко порекло и облици појављивања и миграције, у: Јонизујућа зрачења из природе, Југословенско друштво за заштиту од зрачења, Уредник Милојко Ковачевић, Београд (1995) 3–39
- [2] Дангић, А. В., Геохемијски процеси у природи и радионуклиди, у: Јонизујућа зрачења из природе, ЈДЗЗ, Београд (1995) 41–56.
- [3] Ivanovich, M., Uranium series disequilibrium: concepts and applications. *Radiochimica Acta* 64(2) (1994) 81–94.
- [4] Navas A, Soto J, Machin J  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{40}\text{K}$  activities in soil profiles of the Fylsch sector (Central Spanish Pyrenees). *App Radiat Isot* 57 (2002) 579–589.
- [5] Fujiyoshi, R., Sawamura, S., Mesoscale variability of vertical profiles of environmental radionuclides ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$ ) in temperate forest soils in Germany, *Sci Total Environ* 320 (2004) 177–88
- [6] Dowdall, M., O’Dea, J.,  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$  disequilibrium in an upland organic soil exhibiting elevated natural radioactivity, *J Environ Radioact* 59 (2002) 91–104
- [7] Anagnostakis, M.J., Hinis, E.P., Karangelos, D.J., Petropoulos, N.P., Rouni P.K., Simopoulos, S.E., Žunić, Z.S., Determination of depleted uranium in environmental samples by gamma spectroscopic techniques. *Arch Oncol* 9(4) (2001) 231–236.
- [8] Konoplev A, Golosov V, Wakiyama Y, Takase T, Yoschenko V, Yoshihara T, Parenjuk O, Cresswell A, Ivanov M, Carradine M., Natural attenuation of Fukushima-derived radiocesium in soils due to its vertical and lateral migration. *J Environ Radioact* 186 (2017) 23–33.
- [9] Forkapić, S., Vasin, J., Bikit, I., Mrdja, D., Bikit, K., Milić, S., Correlations between soil characteristics and radioactivity content of Vojvodina soil. *J Environ Radioact* 166 (2017) 104–111.
- [10] Papaefthymiou, H. V., Manousakas, M., Fouskas, A., Siavalas, G., Spatial and vertical distribution and risk assessment of natural radionuclides in soils surrounding the lignite-fired power plants in Megalopolis basin, Greece. *Radiat Prot Dosimetry* 156 (2013) 49–58.
- [11] Nenadović, S., Nenadović, M., Kljajević, L., Vukanac, I., Poznanović, M., Mihajlović-Radosavljević, A., Pavlović, V., Vertical distribution of natural radionuclides in soil: Assessment of external exposure of population in cultivated and undisturbed areas. *Sci Total Environ* 429 (2012) 309–316.
- [12] Mitchell, N., Pérez-Sánchez, D., Thorne, M.C., A review of the behaviour of U–238 series radionuclides in soils and plants. *J Radiol Prot* 33 (2013) R17–R48.
- [13] Ђурић, Г., Поповић, Д., Загађивање животне средине радиоактивним супстанцијама, у: Јонизујућа зрачења, мерење и заштита, Друштво за мерну технику Србије и Привредна комора Србије, Београд (1987) 113–131.

- [14] Маринков, Л., Основи нуклеарне физике, Природно–математички факултет Универзитет у Новом Саду (2010)
- [15] IAEA (International Atomic Energy Agency), The environmental behavior of radium: revised edition. Technical Report Series No. 476, Vienna, Austria (2014)
- [16] UNSCEAR (The United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), Sources and effects of ionizing radiation. United nations scientific committee on the effects of atomic radiation. Exposures of the public and workers from various sources of radiation, Annex B. United Nations, New York (2010)
- [17] Mabit, L., Benmansour, M., Abril, J.M., Walling, D.E., Meusburger, K., Iurian, A.R., Bernard, C., Tarján, S., Owens, P.N., Blake, W.H. and Alewell, C., Fallout  $^{210}\text{Pb}$  as a soil and sediment tracer in catchment sediment budget investigations: a review. *Earth–Science Reviews* 138 (2014) 335–351.
- [18] Kabata–Pendias, A., Arun B.M, Trace elements from soil to human. Springer, Berlin Heidelberg New York (2007)
- [19] Evans, C.V., Morton, L.S., Harbottle, G., Pedologic assessment of radionuclide distributions: use of a radio–pedogenic index. *Soil Science Society of America Journal* 61 (1997) 1440–1449.
- [20] Debertin, K., Helmer, R. G., Gamma– and X– ray Spectrometry with Semiconductor Detectors. Elsevier New York (1998)
- [21] Knoll, G.F., Radiation detection and measurement, John Wiley and Sons, Inc., New York (2010)
- [22] Helmer, R.G., Cline, J.E., Greenwood, R.C., The electromagnetic interaction in nuclear spectroscopy. Editor W.D. Hamilton, North–Holland Publishing Company, Oxford (1975)
- [23] Debertin, K., Jianping R., Measurement of the activity of radioactive samples in Marinelli Beakers. *Nucl Instrum Methods Phys Res A* 278 (1989) 541–549.
- [24] Daza, M.J., Quintana, B., Garcia–Talavera, M., Fernandez, F., Efficiency calibration of a HPGe detector in the 46.54–2000 keV energy range for the measurement of environmental samples. *Nucl Instrum Methods Phys Res A* 470 (2001) 520–532.
- [25] Sima, O., Arnold, D., Self–attenuation and coincidence–summing corrections calculated by Monte Carlo simulations for gamma–spectrometric measurements with well–type germanium detectors. *App Rad Isotop* 47 (9–10) (1996) 889–893.
- [26] Anagnostakis, M.J., Simopoulos, S.E., An experimental/numerical method for the efficiency calibration of low–energy germanium detectors. *Environment International* 22 (1996) S93–S99.
- [27] Dryak, P., Kovar, P., Suran, J. Determination of corrections to true summations of photons for measurements in Marinelli beakers. *Appl Radiat Isotop* 56 (2002) 111–116.
- [28] US Environmental Protection Agency, Measurement Uncertainty, (2015) <https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-05/documents/402-b-04-001c-19-final.pdf>

- [29] Dovlete, C., Povinec, P.P., Quantification of uncertainty in gamma-spectrometric analysis of environmental samples. In: IAEA-TECDOC-1401, Quantifying uncertainty in nuclear analytical measurements, IAEA, Vienna (2004) 103–126.
- [30] Крнета–Николић, Ј., Примена аналитичког, експерименталног, полумпиријског и Монте Карло метода за калибрацију ефикасности HPGe детектора у гамаспектрометрији узорака из животне средине, Докторска дисертација, Физички факултет Универзитета у Београду (2015)
- [31] National Nuclear Data Center, <http://www.nndc.bnl.gov>; [https://www.radiochemistry.org/periodictable/gamma\\_spectra](https://www.radiochemistry.org/periodictable/gamma_spectra)
- [32] El-Daoushy, F., Hernández, F., Gamma spectrometry of  $^{234}\text{Th}$  ( $^{238}\text{U}$ ) in environmental samples. *Analyst* 127(7) (2002) 981–989.
- [33] Papachristodoulou, C. A., Assimakopoulos, P. A., Patronis, N. E., Ioannides, K. G., Use of HPGe  $\gamma$ -ray spectrometry to assess the isotopic composition of uranium in soils. *J Environ Radioact* 64 (2003) 195–203.
- [34] IAEA, Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environment. Technical Report Series No. 472, Vienna, Austria (2010)
- [35] Smičiklas, I., Šljivić–Ivanović, M., Radioactive contamination of the soil: Assessment of pollutants mobility with implication to remediation strategies. In M. L. Larramendy, S. Soloneski (Eds), Environmental sciences, soil contamination–current consequences and further solutions. InTech, Rijeka (2016)
- [36] Đorđević, A.R., Radmanović, S.B., Pedologija, Univerzitet u Beogradu, Poljoprivredni fakultet, Beograd–Zemun (2016)
- [37] IAEA, Applicability of Monitored Natural Attenuation at Radioactively Contaminated Sites, Technical Reports Series No. 445 IAEA, Vienna, Austria (2006).
- [38] Vandenhove, H., Gil–García, C., Rigol, A. and Vidal, M., New best estimates for radionuclide solid–liquid distribution coefficients in soils. Part 2: Naturally occurring radionuclides. *J Environ Radioact* 100 (9) (2009) 697–703.
- [39] Blanco–Rodríguez, P., Vera Tomé, F., Lozano, J. C., Pérez Fernández, M. A., Influence of soil texture on the distribution and availability of U–238, Th–230 and Ra–226 in soils. *J Environ Radioact* 99 (2008) 1247–1254.
- [40] Larsson., M., The influence of soil properties on the transfer of  $^{137}\text{Cs}$  from soil to plant: results from a field study 21 years after the Chernobyl accident. MSc Thesis, Swedish University of Agricultural Science (2008)
- [41] Tsukada, H., Takeda, A., Hisamatsu, S.I., Inaba., J., Concentration and specific activity of fallout  $^{137}\text{Cs}$  in extracted and particle–size fractions of cultivated soils. *J Environ Radioact* 99(6) (2008) 875–81.
- [42] Dragović, S.D., Gajić, B., Dragović, R.M., Janković–Mandić, Lj., Slavković–Beskoski, L., Mihailović, N.L., Momcilović, M., Cujić, M., Edaphic factors affecting the vertical distribution of radionuclides in the different soil types of Belgrade, Serbia., *J Environ Monit* 14 (2013) 127–137.

- [43] Кљајић, Р., Шипка, В., Угљеви и минерална ђубрива као извор технолошког повећања природне радиоактивности, у: Јонизујућа зрачења из природе, ЈДЗЗ, Београд (1995) 41–56.
- [44] IAEA, Naturally occurring radioactive materials (NORM VI). In: Proceedings of an international symposium on NORM, Marrakesh, Morocco, 22–26 March 2010, Vienna, Austria (2011)
- [45] Megumi, K., Oka, T., Doi, M., Rimura, S., Tsujimoto, T., Ishiyama, T., Katsurayama, K., Relationships between the concentrations of natural radionuclides and the mineral composition of the surface soil, *Radiat Prot Dosimetry* 24 (1988) 69–72.
- [46] Stojanović, M.D., Babić, M., Stevanović, D., Martinović, Lj., Effect of long-term application of phosphorus fertilizers on uranium contamination of Serbian soils. In: *Radionuclide Contamination of Serbian Soils and Remediation Possibility*, ITNMS, Belgrade, Serbia (2006)
- [47] Takeda, A., Tsukada, H., Takaku, Y., Hisamatsu, S., Nanzyo, M., Accumulation of uranium derived from long-term fertilizer applications in a cultivated Andisol. *Sci Total Environ* 367 (2006) 924–931.
- [48] Mortvedt., J.J., Plant and soil relationships of uranium and thorium decay series radionuclides – a review. *J Environ Qual* 23 (1994) 643–650.
- [49] Todorović, N., Bikit, I., Vesković, M., Mrdja, D., Forkapić, S., Hansman, J., Nikolov, J., Bikit, K., Krmar, M. Radioactivity in fertilizers and radiological impact. *J Radioanal Nucl Chem* 303, (2015) 2505-2509.
- [50] Papastefanou, C., Escaping radioactivity from coal-fired power plants (CPPs) due to coal burning and the associated hazards: a review. *J Environ Radioact* 101 (2010) 191–200.
- [51] Đurašević, M., Kandić, A., Stefanović, P., Vukanac, I., Šešlak, B., Milošević, Z., Marković, T., Natural radioactivity in lignite samples from open pit mines “Kolubara”, Serbia–risk assessment. *App Radiat Isot* 87 (2014) 73–76.
- [52] Papp, Z., Dezso, Z., Daroczy, S., Significant radioactive contamination of soil around a coal-fired thermal power plant. *J Environ Radioact* 59 (2002) 191–205.
- [53] Praharaj, T., Tripathy, S., Powell, M. A., Hart, B. R., Geochemical studies to delineate topsoil contamination around an ash pond of a coal-based thermal power plant in India. *Environ Geol* 45 (2003) 86–97.
- [54] Belivermis, M., Vertical distributions of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in soil samples from Istanbul and its environs, Turkey. *Radiat Prot Dosim* 151 (2012) 511–521.
- [55] Montes, M.L., Mercader, R.C., Taylor, M.A., Runco, J., Desimoni, J., Assessment of natural radioactivity levels and their relationship with soil characteristics in undisturbed soils of the northeast of Buenos Aires province, Argentina. *J Environ Radioact* 105 (2012) 30–39.
- [56] Tsai, T.L., Liu, C.C., Chuang, C.Y., Wei, H.J., Men, L.C., The effects of physico-chemical properties on natural radioactivity levels, associated dose rate and evaluation of



radiation hazard in the soil of Taiwan using statistical analysis. *J Radioanal Nucl Chem* 288 (2011) 927–936.

[57] Camargo, S.P., Figueiredo, A.M.G., Sigolo, J.B., Uranium and Thorium in Urban Park Soils of Sao Paulo. In: *Proceeding of 2009 International Nuclear Atlantic Conference*, September 27 to October 2, Rio de Janeiro, Brazil (2009)

[58] Charro, E., Pardo, R., Peña, V., Chemometric interpretation of vertical profiles of radionuclides in soils near a Spanish coal-fired power plant. *Chemosphere* 90 (2013) 488–496.

[59] Dai, L., *et al.*, Spatial distribution and risk assessment of radionuclides in soils around a coal-fired power plant: a case study from the city of Baoji, China *Environ Res* 104 (2007) 201–208.

[60] Flues, M., *et al.*, The influence of a coal-fired power plant operation on radionuclide concentrations in soil, *J Environ Radioact* 63 (2002) 285–294.

[61] Popović, D., Todorović, D., Jokić, V.S., Nikolić, J., Ajtić, J., Contents of radionuclides in soils in Serbia: Dose calculations and environmental risk assessment, In: Daniels, J.A. (Ed), *Advances in Environmental Research* 6, Nova Science Publishers (2012) 91–134.

[62] Tanić, M., Momčilović, M., Kovačević, J., Dragović, S.D., Bačić, G.G., Assessment of radiation exposure around abandoned uranium mining area of Stara planina Mt., Serbia, *Nuclear Technology and Radiation Protection* 29 (2014) 58–66.

[63] Mitrović, B., Ajtić, J., Lazić, M., Andrić, V., Krstić, N., Vranješ, B., Vićentijević, M., Natural and anthropogenic radioactivity in the environment of Kopaonik mountain, Serbia, *Environ Pollut* 215 (2016) 273–279.

[64] Djelic, G., Krstic, D., Stajic, J.M., Milenkovic, B., Topuzovic, M., Nikezic, D., Vucic, D., Zeremski, T., Stankovic, M., Kostic, D., Transfer factors of natural radionuclides and  $^{137}\text{Cs}$  from soil to plants used in traditional medicine in central Serbia. *J Environ Radioact* 158 (2016) 81–88.

[65] Charlesworth, S., De Miguel, E., Ordonez, A., A review of the distribution of particulate trace elements in urban terrestrial environments and its application to considerations of risk. *Environ Geochem Health* 33 (2011) 103–123.

[66] Ujić, P., Čeliković, I., Kandić, A., Vukanac, I., Đurašević, M., Dragosavac, D., Žunić, Z.S., Internal exposure from building materials exhaling  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{220}\text{Rn}$  as compared to external exposure due to their natural radioactivity content. *App Rad Isotop* 68 (2010) 201–206.

[67] Kirchner, G., Strebl, F., Bossew, P., Ehlken, S., Gerzabek, M.H., Vertical migration of radionuclides in undisturbed grassland soils. *J Environ Radioact* 100 (2009) 716–720.

[68] Krstić, D., Nikezić, D., Stevanović, N., Jelić, M., Vertical profile of  $^{137}\text{Cs}$  in soil. *App Rad Isotop* 61 (2004) 1487–1492.

[69] Soto, J., Navas, A., A simple model of Cs-137 profile to estimate soil redistribution in cultivated stony soils, *Radiat Meas* 43 (2008) 1285–1293.

- [70] Du, M., Yang, H., Chang, Q., Minami, K., Hatta, T., Caesium-137 fallout depth distribution in different soil profiles and significance for estimating soil erosion rate, *Sci Soils* 3 (1998) 23–33.
- [71] Uematsu, S., Vandenhove, H., Sweeck, L., Van Hees, M., Wannijn, J., Smolders, E., Variability of the soil-to-plant radiocaesium transfer factor for Japanese soils predicted with soil and plant properties. *J Environ Radioact* 153 (2016) 51–60.
- [72] Saito T, Makino H, Tanaka S., Geochemical and grain-size distribution of radioactive and stable cesium in Fukushima soils: implications for their long-term behavior. *J Environ Radioact* 138 (2014) 8–11.
- [73] Vandenhove, H., Olyslaegers, G., Sanzharova, N., Shubina, O., Reed, E., Shang, Z., Velasco, H., Proposal for new best estimates of the soil-to-plant transfer factor of U, Th, Ra, Pb and Po, *J Environ Radioact* 100 (2009) 721–732.
- [74] Rodríguez, P.B., Tomé, F.V., Lozano, J.C., Influence of soil structure on the “Fv approach” applied to  $^{238}\text{U}$  and  $^{226}\text{Ra}$ . *Chemosphere* 168 (2017) 832–838.
- [75] Tuovinen, T. S., Kolehmainen, M., Roivainen, P., Kumlin, T., Makkonen, S., Holopainen, T., Juutilainen, J. Nonlinear transfer of elements from soil to plants: impact on radioecological modeling. *Radiat Environ Biophys* 55(3) (2016) 393–400.
- [76] Sheppard, S.C., Evenden, W.G., The assumption of linearity in soil and plant concentration ratios: an experimental evaluation. *J Environ Radioact* 7 (1988) 221–247.
- [77] Sheppard, S.C., Sheppard, M.I., Ilin, M., Tait, J., Sanipelli, B., Primordial radionuclides in Canadian background sites: secular equilibrium and isotopic differences. *J Environ Radioact* 99 (2008) 933–946.
- [78] Основна Геолошка карта СФРЈ 1:100.000, Лист Београд, (1970)
- [79] Танасијевић, Ђ.М., Јеремић, М.Р., Алексић, Ж.Б., Никодијевић В.Ч., Антоновић, Г.М., Спасојевић, М.С., Филиповић, Ђ.М., Педолошка карта северо–западне Србије са околином Београда, размера 1:50.000, Институт за проучавање земљишта, Београд –Топчидер (1964)
- [80] IUSS Working Group WRB, World Reference Base for Soil Resources 2014. International soil classification system for naming soils and creating legends for soil maps. World Soil Resources Reports No. 106. FAO, Rome (2014)
- [81] Vukašinović, I., Todorović, D., Popović, D., The dependenc of Ge detectors efficiency on the density of the samples in gamma-ray spectrometry, *Nuclear Technology and Radiation Protection* 2 (2007) 58–63.
- [82] Живковић, М., Упоредна испитивања разних метода припреме бескарбонатних земљишта за механичку анализу. *Земљиште и биљка* 15(3) (1966) 381–407.
- [83] Богдановић, М., *et al.*, Приручник за испитивање земљишта, књига И, Хемијске методе испитивања земљишта, Београд, Југословенско друштво за проучавање земљишта (1966)

- [84] Минеев, В.Г., Сычев, В.Г., Амелянчик, О.А., Большева, Т.Н., Гомонова, Н.Ф. Дурьнина, Е.П., Егоров, В.С., Егорова, Е.В., Едемская, Н.Л., Карпова, Е.А., Прижукова, В.Г., Практикум по агрохимии – 2–е изд. Учебное пособие (2001)
- [85] Tabachnick, B.G., Fidell, L.S., Using multivariate statistics (6th ed.). Harlow: Pearson Education (2012)
- [86] Golmakani, S., Moghaddam, M.V., Hosseini, T., Factors affecting the transfer of radionuclides from the environment to plants, *Rad Prot Dos* 130 (2008) 368–375.
- [87] Hinsinger, P., Bioavailability of trace elements as related to root-induced chemical changes in the rhizosphere. In: *Trace Elements in the Rhizosphere*. CRC Press, Boca Raton, FL, USA (2001) 25–41.
- [88] Navas, A., Gaspar, L., Lopez–Vicente, M., Machin, J., Spatial distribution of natural and artificial radionuclides at the catchment scale (South Central Pyrenees). *Radiat Meas* 46 (2011) 261–269.
- [89] Doörr, H., Münnich, K.O., Downward movement of soil organic matter and its influence on trace–element transport ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) in the soil. *Radiocarbon* 31 (1989) 655–663.
- [90] Fujiyoshi, R., Yamaguchi, T., Takekoshi, N., Okamoto, K., Sumiyoshi, T., Kobal, I., Vaupotič, J., Tracing depositional consequences of environmental radionuclides ( $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Pb}$ ) in Slovenian forest soils. *Open Geosci* 3 (2011) 291–301.
- [91] Sipos, P., Nemeth, T., Mohai, I., Distribution and possible immobilization of lead in a forest soil (Luvisol) profile. *Environ Geochem Health* 27 (2005) 1–10.
- [92] Stirling, C.H., Andersen, M.B., Warthmann, R., Halliday, A.N., Isotope fractionation of  $^{238}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$  during biologically mediated uranium reduction. *Geochim Cosmochim Acta* 163 (2015) 200–218.
- [93] Bašćarević, Z., Komljenović, M., Petrašinović–Stojkanović, Lj., Jovanović, N., Rosić, A., Ršumpvoć, M., Ispitivanje svojstava elektro–filterskog pepela termoelektrana u cilju njegove upotebe kao sekundarne sirovine za proizvodnju portland–cementnog klinkera, *Hem Ind* 60 (2006) 245–252.
- [94] Sheppard, M. I., Thibault, D. H., Default soil solid/liquid partition coefficients,  $K_{ds}$ , for four major soil types: a compendium, *Health Phys* 59 (1990) 471–482
- [95] Guillén, J.; Baeza, A.; Salas, A.; Muñoz–Muñoz, J.G., Muñoz–Serrano, A., Factors Influencing the Soil to Plant Transfer of Radiocaesium. In: D.K. Gupta, C. Walther (eds.), *Impact of Cesium on Plants and the Environment*. Springer International Publishing, Switzerland (2017) 19–33.
- [96] Hancock, G.J., Murray, A.S., Brunskill, G.J., Argent, R.M., Ra isotopes in trees: Their application to the estimation of heartwood growth rates and tree ages, *Global biogeochemical cycles* 20 (4) (2006) 1–13.
- [97] Al–Masri, M.S., Al–Akel, B., Nashawani, A., Amin, Y., Khalifa, K.H., Al–Ain, F., Transfer of  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , and  $^{210}\text{Po}$  from soil to plant in various locations in south of Syria, *J Environ Radioact* 99 (2008) 322–331.

- [98] Charro, E., Moyano, A., Soil and vegetation influence in plants natural radionuclides uptake at a uranium mining site, *Radiat Phys Chem* 141 (2017) 200–206.
- [99] Todorović, D., Popović, D., Ajtić, J., Nikolić, J., Leaves of higher plants as biomonitors of radionuclides ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$ ) in urban air. *Environ Sci Pollut Res* 20 (2013) 525–532.
- [100] Deljanin, I., Antanasijević, D., Urošević, A.M., Tomašević, M., Sekulić, Z., Perić–Grujić, A. Ristić, M., Selected trace element concentrations in ambient air and in horse chestnut leaves in Belgrade. *Chem Ind Chem Eng Q* 21 (2015) 169–178.
- [101] Manigandan, P.K., Shekar, B.C., Uptake of some radionuclides by woody plants growing in rainforest of Western Ghats in India, *J Environ Radioact* 130 (2014) 63–67.
- [102] Carvalho, F.P., Oliveira, J.M., Malta, M., Exposure to radionuclides in smoke from vegetation fires, *Sci Total Environ* 472 (2014) 421–424.
- [103] Blanco–Rodríguez, P., Vera Tomé, F., Lozano, J.C., Fernández, M.P., Transfer of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ , and  $^{210}\text{Pb}$  from soils to tree and shrub species in a Mediterranean area. *App Radiat Isot* 68 (2010) 1154–1159.
- [104] Soudek, P., Petrová, Š., Benešová, D., Tykva, R., Vaňková, R., Vaněk, T., Comparison of  $^{226}\text{Ra}$  nuclide from soil by three woody species *Betula pendula*, *Sambucus nigra* and *Alnus glutinosa* during the vegetation period. *J Environ Radioact* 97(1) (2007) 76–82.
- [105] Karunakara, N., Somashekarappa, H.M., Narayana, Y., Avadhani, D.N., Mahesh, H.M., Siddappa, K.,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{40}\text{K}$  and  $^7\text{Be}$  activity concentrations in plants in the environment of Kaiga, India, *J Environ Radioact* 65 (2003) 255–266.
- [106] Zhiyanski, M., Sokolovska, M., Bech, J., Clouvas, A., Penev, I. Badulin, V., Cesium–137 contamination of oak (*Quercus petrae* Liebl.) from sub–mediterranean zone in South Bulgaria. *J Environ Radioact* 101 (2010) 864–868.
- [107] Tagami, K., Uchida, S., Can elemental composition data of crop leaves be used to estimate radionuclide transfer to tree leaves? *Radiat Env Biophys* 49 (2010) 583–590.
- [108] Botezatu, E., Iacob. O., Radiological Impact of TENORM on the Environment in Romania, In: Proceedings of the IRPA11, Madrid (2004)
- [109] Skoko, B., Marović, G., Babić, D., Šoštarić, M., Jukić, M., Plant uptake of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{40}\text{K}$  from a coal ash and slag disposal site and control soil under field conditions: A preliminary study, *J Environ Radioact* 172 (2017) 113–121.
- [110] Baeza, A., Barandica, J., Paniagua, J.M., Rufo, M., Sterling, A., Using  $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$  disequilibrium to determine the residence half–lives of radium in vegetation compartments. *J Environ Radioact* 43 (1998) 291–304.
- [111] Papastefanou, C., Manolopoulou, M., Stoulos, S., Ioannidou, A., Gerasopoulos, E., Soil–to–plant transfer of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  and  $^7\text{Be}$ . *J Environ Radioact* 45 (1999) 59–65.

## Биографија

Ивана Вукашиновић, рођена је 9.9.1969. у Београду. Стекла је звање Дипломирани физичар за општу физику 1998. године, на Физичком факултету Универзитета у Београду и одбранила дипломски рад под називом „Одређивање изотопског састава урана методом спектрометрије гама–зрачења“. На истом факултету магистрирала је 2010. године, одбранивши тезу „Зависност ефикасности германијумског детектора од густине узорака у спектрометрији гама зрачења“ на студијској групи Метрологија. Студент је треће године докторских студија, студијска група Примењена физика, које је уписала на Физичком факултету Универзитета у Београду, 2016/2017. године.

Од 1999. године запослена је на Пољопривредном факултету, Универзитета у Београду, прво као приправник за стручно оспособљавање на предмету Физика (школске 1999/2000), а затим хонорарно (у периоду 2001–2003.) изводи рачунске и лабораторијске вежбе општег курса физике. За асистента–приравника за предмет Физика, изабрана је 2004. године на Пољопривредном факултету Универзитета у Београду, а затим је изабрана у звање асистента 2011. године. Од новембра 2017. је запослена на истом факултету у звању стручни сарадник без сарадничког звања.

Од 2011. године била је ангажована на пројекту 43007 МНТР под називом „Истраживање климатских промена на животну средину – праћење утицаја, адаптација и ублажавања“. Године 2014. стекла је сертификат компаније JEOL о завршеној обуци за рад на електронском микроскопу, након чега учествује у раду Лабораторије за електронску микроскопију Пољопривредног факултета у Београду која је опремљена скенирајућим (JEOL JSM–6390) и трансмисионим (JEOL JEM–1400) електронским микроскопом.

Ивана Вукашиновић је као први аутор објавила радове категорије M22 (3), M23 (2), затим категорија M51 (2), M52 (1), M33 (2), M63 (1) и поглавље у монографији националног значаја категорије M45 (1). Као коаутор објавила је и радове категорија M21 (1), M28 (1), M34 (4).

Публикације проистекле из ове докторске дисертације:

*M22 Истакнути међународни часопис*

1. Vukašinović, I., Todorović, D., Krneta–Nikolić, J., Rajačić, M., Životić, Lj., Seasonal variations of naturally occurring radionuclides and  $^{137}\text{Cs}$  in the leaves of deciduous tree species at sites of background radioactivity levels, Romanian Journal of Physics 64 (2019) 812-823. ISSN: 1221-146X, IF: 1,460

2. Vukašinović, I., Todorović, D., Životić, Lj., Kaluđerović, L., Đorđević, A., An analysis of naturally occurring radionuclides and  $^{137}\text{Cs}$  in the soils of urban areas using gamma–ray spectrometry. International Journal of Environmental Science and Technology 15 (2018) 1049–1600. ISSN: 1735–1472, IF: 2,031

3. Vukašinović, I.Ž., Todorović, D.J., Rajković, M.B., Đorđević, A.R., Pavlović, V.B. Distribution of natural radionuclides in anthrosol–type soil. Turkish Journal of Agriculture and Forestry 34 (2010) 539–546. ISSN: 1300–011X, IF: 0,675

*M23 Међународни часопис*

1. Vukašinović, I.Ž., Todorović, D.J., Nikolić, N.S., Mihajlović–Radosavljević, A.S., Nenadović, S.S., Eremić Savković, M.M., Radioactivity measurements in soils surrounding four coal–fired power plants in Serbia by gamma–ray spectrometry and associated dose. Nuclear Technology & Radiation Protection 29 (2014) 296–306. ISSN: 1451–3994, IF: 0,560

2. Vukašinović, I., Todorović, D., Đorđević, A., Rajković, M.B., Pavlović, V.B., Depth distribution of  $^{137}\text{Cs}$  in anthrosol from the experimental field “Radmilovac” near Belgrade, Serbia. Archives of Industrial Hygiene and Toxicology 64 (2013) 425–430. ISSN: 0004–1254, IF: 0,727

*M45 Поглавље у књизи M42 или рад у тематском зборнику националног значаја*

1. Vukašinović, I.Ž., Rajković, M.B., Todorović, D.J. Distribucija  $^{137}\text{Cs}$  u kultivisanom zemljištu, Monografija: ČERNOBILJ: 30 godina posle, urednik Gordana Pantelić–Beograd: Institut za nuklearne nauke “Vinča”, Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu

životne sredine “Zaštita”, Društvo za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore (2016) 195–206. ISBN: 978–86–7306–138–2

*M33 Rad saopšten na skupu međunarodnog značaja štampan u celini*

1. Vukašinović, I., Todorović, D., Nikolić, N., Nikolić, J., Rajačić, M., Janković, M., Influence of soil properties on soil–to–plant transfer factors of natural radionuclides in the vicinity of coal fired power plants in Serbia. Proceedings of the The Second International Conference on Radiation and Dosimetry in Various Fields of Research (RAD 2014), 27–30. Maj, University of Niš, Faculty of Electronic Engineering (2014) 267–270. ISBN: 978-86-6125-101-6

*M63 Rad saopšten na skupu nacionalnog značaja štampan u celini*

1. Vukašinović, I., Todorović, D., Nikolić, J., Rajačić, M., Ajtić, J., Sezonske promene aktivnosti prirodnih radionuklida i proizvedenog  $^{137}\text{Cs}$  u uzorcima lišća listopadnog drveća, XXIX Simpozijum DZZSCG, Srbija, Srebrno jezero, Septembar 27–29, Zbornik radova, Institut za nuklearne nauke "Vinča" i Društvo za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore (2017) 117–123. ISBN: 978-86-7306-144-3

Прилог 1.

## Изјава о ауторству

Потписани-а \_\_\_\_\_ Ивана Вукашиновић \_\_\_\_\_

Број индекса \_\_\_\_\_ 2016/8017 \_\_\_\_\_

### Изјављујем

да је докторска дисертација под насловом

ЗАВИСНОСТ ДИСТРИБУЦИЈЕ РАДИОНУКЛИДА U- И Th-СЕРИЈЕ, <sup>40</sup>K И <sup>137</sup>Cs ОД  
ФИЗИЧКО-ХЕМИЈСКИХ ОСОБИНА ЗЕМЉИШТА У СИСТЕМУ ЗЕМЉИШТЕ-БИЉКА

- резултат сопственог истраживачког рада,
- да предложена дисертација у целини ни у деловима није била предложена за добијање било које дипломе према студијским програмима других високошколских установа,
- да су резултати коректно наведени и
- да нисам кршио/ла ауторска права и користио интелектуалну својину других лица.

**Потпис докторанда**

У Београду, \_\_\_\_\_

\_\_\_\_\_



Прилог 2.

Изјава о истоветности штампане и електронске верзије  
докторског рада

Име и презиме аутора Ивана Вукашиновић

Број уписа 2016/8017

Студијски програм Примењена физика

Наслов рада ЗАВИСНОСТ ДИСТРИБУЦИЈЕ РАДИОНУКЛИДА U- И Th-  
СЕРИЈЕ, <sup>40</sup>K И <sup>137</sup>Cs ОД ФИЗИЧКО-ХЕМИЈСКИХ ОСОБИНА ЗЕМЉИШТА У  
СИСТЕМУ ЗЕМЉИШТЕ-БИЉКА

Ментор др Драгана Тодоровић

Потписани \_\_\_\_\_

изјављујем да је штампана верзија мог докторског рада истоветна електронској верзији коју сам предао/ла за објављивање на порталу **Дигиталног репозиторијума Универзитета у Београду**.

Дозвољавам да се објаве моји лични подаци везани за добијање академског звања доктора наука, као што су име и презиме, година и место рођења и датум одбране рада.

Ови лични подаци могу се објавити на мрежним страницама дигиталне библиотеке, у електронском каталогу и у публикацијама Универзитета у Београду.

**Потпис докторанда**

У Београду, \_\_\_\_\_

\_\_\_\_\_

Прилог 3.

## Изјава о коришћењу

Овлашћујем Универзитетску библиотеку „Светозар Марковић“ да у Дигитални репозиторијум Универзитета у Београду унесе моју докторску дисертацију под насловом:

ЗАВИСНОСТ ДИСТРИБУЦИЈЕ РАДИОНУКЛИДА U- И Th-СЕРИЈЕ,  $^{40}\text{K}$  И  $^{137}\text{Cs}$  ОД  
ФИЗИЧКО-ХЕМИЈСКИХ ОСОБИНА ЗЕМЉИШТА У СИСТЕМУ ЗЕМЉИШТЕ-БИЉКА

---

која је моје ауторско дело.

Дисертацију са свим прилозима предао/ла сам у електронском формату погодном за трајно архивирање.

Моју докторску дисертацију похрањену у Дигитални репозиторијум Универзитета у Београду могу да користе сви који поштују одредбе садржане у одабраном типу лиценце Креативне заједнице (Creative Commons) за коју сам се одлучио/ла.

1. Ауторство
2. Ауторство - некомерцијално
3. Ауторство – некомерцијално – без прераде
4. Ауторство – некомерцијално – делити под истим условима
5. Ауторство – без прераде
6. Ауторство – делити под истим условима

(Молимо да заокружите само једну од шест понуђених лиценци, кратак опис лиценци дат је на полеђини листа).

**Потпис докторанда**

У Београду, \_\_\_\_\_

\_\_\_\_\_

1. Ауторство - Дозвољавање умножавања, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце, чак и у комерцијалне сврхе. Ово је најслободнија од свих лиценци.

2. Ауторство – некомерцијално. Дозвољавање умножавања, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце. Ова лиценца не дозвољава комерцијалну употребу дела.

3. Ауторство - некомерцијално – без прераде. Дозвољавање умножавања, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, без промена, преобликовања или употребе дела у свом делу, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце. Ова лиценца не дозвољава комерцијалну употребу дела. У односу на све остале лиценце, овом лиценцом се ограничава највећи обим права коришћења дела.

4. Ауторство - некомерцијално – делити под истим условима. Дозвољавање умножавања, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце и ако се прерада дистрибуира под истом или сличном лиценцом. Ова лиценца не дозвољава комерцијалну употребу дела и прерада.

5. Ауторство – без прераде. Дозвољавање умножавања, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, без промена, преобликовања или употребе дела у свом делу, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце. Ова лиценца дозвољава комерцијалну употребу дела.

6. Ауторство - делити под истим условима. Дозвољавање умножавања, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце и ако се прерада дистрибуира под истом или сличном лиценцом. Ова лиценца дозвољава комерцијалну употребу дела и прерада. Слична је софтверским лиценцама, односно лиценцама отвореног кода.