

UNIVERZITET U BEOGRADU
FAKULTET ZA FIZIČKU HEMIJU

Miloš Z. Živanović

**Optimizacija merenja koncentracije
radona u zatvorenom prostoru metodom
ugljenih filtera**

Doktorska disertacija

Beograd, 2016

UNIVERSITY OF BELGRADE
FACULTY OF PHYSICAL CHEMISTRY

Miloš Z. Živanović

**Optimisation of Indoor Radon
Concentration Measurements by Means
of Charcoal Canisters**

Doctoral Dissertation

Belgrade, 2016

Mentori:

dr Šćepan Miljanić, redovni profesor,
Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu

dr Gordana Pantelić, naučni saradnik,
Institut za nuklearne nauke „Vinča“

Članovi komisije:

dr Šćepan Miljanić, redovni profesor,
Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu

dr Gordana Pantelić, naučni saradnik,
Institut za nuklearne nauke „Vinča“

dr Marko Daković, docent,
Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu

dr Miloš Mojović, vanredni profesor
Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu

Datum odbrane: _____

Doktorska disertacija pod nazivom „Optimizacija merenja koncentracije radona u zatvorenom prostoru metodom ugljenih filtera”, izrađena je u okviru projekta “Nove tehnologije za monitoring i zaštitu životnog okruženja od štetnih hemijskih supstanci i radijacionog opterećenja“, br. III 43009, finansiranog od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije.

Posebnu zahvalnost dugujem dr Gordani Pantelić zbog velike pomoći u svim fazama izrade teze i korisnih saveta bez kojih bi istraživanja trajala značajno duže. Zahvalnost dugujem i kolegama iz INN „Vinča“ koje su mi pomogle pri izlaganju kanistera, merenjima i obradi rezultata: Dragani Divnić, dr Jeleni Krneti-Nikolić, Milici Rajačić, M.Sc. i dr Dragani Todorović. Zahvaljujem se i direktoru laboratorije „Zaštita“, dr Đorđu Lazareviću i zameniku direktora dr Oliveri Ciraj-Bjelac, zbog podrške i razumevanja u kritičnim trenucima, kada sam mislio da ova ova teza nikada neće biti napisana.

Zahvalnost dugujem i dr Šćepanu Miljaniću, za pomoć pri izradi teze, uloženo vreme i trud.

Veliku podršku u izradi teze su mi pružili majka Biljana, otac Zoran, brat Uroš i deda Jovo, a imali su i razumevanja za duge periode koje sam provodio za računarom pišući.

Optimizacija merenja koncentracije radona u zatvorenom prostoru metodom ugljenih filtera

Rezime

Merenje koncentracija radona u zatvorenom prostoru metodom ugljenih filtera se sprovodi duže od 30 godina. Postoji više varijanti ove metode, a varijanta koja se zasniva na otvorenim kanisterima i gama-spektrometrijskim merenjima (EPA metoda) ima relativno nizak prag detekcije i koristi se za kraća merenja, ali je osjetljiva na promenu uslova tokom izlaganja kanistera. U ovoj tezi su metoda i njena primena detaljno opisane i izvršen pregled dostupne literature, a posebna pažnja je posvećena određivanju krivih kalibracionog faktora i faktora podešavanja i diskutovani su alternativni načini kalibracije. U dostupnoj literaturi postoji vrlo malo podataka o određivanju merne nesigurnosti EPA metode.

Na osnovu merenja u školama i stanovima, određen je jednostavan model merne nesigurnosti, koji je primenjiv za najveći broj izlaganja kanistera. Takođe su određena optimalna podešavanja za gama-spektrometrijska merenja, uzevši u obzir mernu nesigurnost, jednostavnost merenja i potrebno vreme.

U laboratorijskoj zgradi u INN "Vinča" je sprovedena dugotrajna kampanja merenja koncentracije radona i pokazano je kako se ova metoda može koristiti za određivanje srednjih mesečnih i godišnjih koncentracija i sezonskih korekcionih faktora. Tokom izlaganja kanistera, kontinuirano su praćeni temperatura i relativna vlažnost vazduha, što je omogućilo da se proveriti uticaj ovih parametara na masu adsorbovane vode u recikliranim kanisterima i uporedi sa rezultatima ostvarenim sa novim kanisterima tokom kalibracije. Pošto su primećene značajne razlike u ponašanju kanistera, predložena je korekcija.

Poređenje rezultata ostvarenih EPA metodom sa drugim metodama, kao i sa drugim laboratorijama koje takođe koriste EPA metodu, pokazalo je da je podudaranje rezultata u većini okolnosti zadovoljavajuće, ali da to nije uvek slučaj. Takvi nalazi su zahtevali da se ponovo preispita budžet merne nesigurnosti, kao i zahtevi za način postavljanja kanistera. Dodatnim merenjima i detaljnom analizom postojećih rezultata, kao i analizom dostupnih literaturnih podataka, identifikovan je niz doprinosa mernoj nesigurnosti koji nisu razmatrani u literaturi niti u prethodnim merenjima u INN Vinča.

Ovi doprinosi su kvantifikovani i određene su preporuke za postavljanje kanistera u cilju smanjenja merne nesigurnosti i optimizacije metode.

Ključne reči: radon, ugljeni filteri, ugljeni kanisteri, optimizacija, merna nesigurnost, zatvoreni prostor, zaštita od zračenja

Naučna oblast: fizička hemija

Uža naučna oblast: radiohemija i nuklearna hemija, zaštita životne sredine

UDK broj: 544.58

Optimisation of Indoor Radon Concentration Measurements by Means of Charcoal Canisters

Abstract

Indoor radon concentrations have been measured by means of charcoal canisters for over 30 years. There are several variations of this method. Variant of the method with open-faced canisters and gamma spectrometric measurements (EPA method) is relatively sensitive and is used for short time measurements, but is susceptible to change in conditions during canister exposure. The method and its application are described in detail in this thesis and an overview of available literature is presented. Special attention is given to determination of calibration factors and adjustment factors. Alternative calibration procedures are also discussed. In the available literature, there is very little information about measurement uncertainty of EPA method.

A simple measurement uncertainty budget is presented, based on the measurements performed in schools and dwellings. This budget is applicable for most of the canister exposures and is easy for application. Optimum settings of the range of interest in gamma spectrum are determined, having in mind measurement uncertainty, ease of application and needed time.

Long term measurement campaign was conducted in a laboratory building in Vinča Institute. The results were used to show how EPA method can be used for determination of mean monthly and yearly concentrations and for calculation of seasonal correction factors. During the canister exposures, ambient temperature and relative air humidity were continuously monitored, which allowed the investigation of the influence of these parameters on the mass of adsorbed water in recycled canisters and comparison with the results for new canisters used for calibration. Significant differences were observed, and a correction was proposed.

Comparison of results obtained by EPA method with other methods, as well as with other laboratories using the same method, has shown that there are no significant differences for most exposure conditions. However, in some cases, significant differences were observed. Such observations prompted reevaluation of uncertainty budget and the requirements for canister exposure. Additional measurements were

conducted, the existing measurements analyzed and a detailed overview of available literature was conducted, which allowed to identify contributions to measurement uncertainty that are not discussed in available literature and not taken into account in previous measurements. These contributions were quantified and new recommendations for canister exposure are proposed, in order to optimize the method.

Keywords: radon, charcoal canisters, optimisation, measurement uncertainty, indoor, radiation protection

Scientific field: Physical chemistry

Field of Academic Expertise: Radiochemistry and Nuclear Chemistry, Environmental Protection

UDK Number: 544.58

Sadržaj

<u>1</u>	<u>UVOD</u>	<u>1</u>
1.1	CILJ ISTRAŽIVANJA	2
<u>2</u>	<u>RADIOAKTIVNOST I JONIZUJUĆE ZRAČENJE</u>	<u>4</u>
2.1	OSNOVNI KONCEPTI	4
2.2	APSORBOVANA, EKVIVALENTNA I EFEKTIVNA DOZA	5
2.3	RADIOAKTIVNOST	6
2.3.1	AKTIVNOST	6
2.3.2	RADIOAKTIVNA RAVNOTEŽA	7
2.3.3	TIPOVI RADIOAKTIVNOG RASPADA	7
2.4	JONIZUJUĆE ZRAČENJE U PRIRODI	8
2.4.1	PRIRODNI RADIOAKTIVNI NIZOVI I RADON	9
2.4.2	IZLAGANJE PRIRODNIM IZVORIMA ZRAČENJA	9
2.5	BIOLOŠKI EFEKTI JONIZUJUĆEG ZRAČENJA	14
<u>3</u>	<u>RADON</u>	<u>16</u>
3.1	OTKRIĆE I OSNOVNE OSOBINE	16
3.2	RADIOAKTIVNI RASPAD RADONA, TORONA I NJIHOVIH POTOMAKA	17
3.3	RADON I TORON I NJIHOVI POTOMCI U ATMOSFERI	17
3.4	KONCENTRACIJA RADONA I TORONA I PROCENA RIZIKA	20
3.5	MERNE TEHNIKE	22
3.6	BIOLOŠKI EFEKTI RADONA I NJEGOVIH POTOMAKA	23
3.6.1	KANCER PLUĆA	23
3.6.2	DRUGA OBOLJENJA	25
3.7	REGULATIVA	25
3.7.1	ISTORIJSKI PREGLED	25

3.7.2	PRESEK STANJA U EVROPI IZ 1997. GODINE KADA JE U PITANJU RADONSKA REGULATIVA	26
3.7.3	EURATOM DIREKTIVA IZ 2013	27
3.7.4	REGULATIVA U SRBIJI	28

4 ISPITIVANJE KONCENTRACIJE RADONA POMOĆU UGLJENIH FILTERA **29**

4.1	METODA EPA 520	30
4.1.1	KONSTRUKCIJA UGLJENOG KANISTERA	31
4.1.2	PRINCIP EPA METODE I JEDNAČINA ZA ODREĐIVANJE KONCENTRACIJE RADONA	32
4.1.3	KALIBRACIJA UGLJENIH FILTERA I KORIŠĆENJE EPA KALIBRACIONIH KRIVIH	35
4.1.4	GRANICA DETEKCIJE	36
4.1.5	POSTAVLJANJE UGLJENIH KANISTERA I UPUTSTVO ZA KORISNIKE	36
4.2	DRUGE METODE ZASNOVANE NA UGLJENIM FILTERIMA	37
4.3	PRIMENA UGLJENIH FILTERA U PRAKSI I LITERATURI	38

5 MERN NESIGURNOST I STATISTIČKI TESTOVI – TEORIJSKE POSTAVKE **41**

5.1	OPŠTE O MERNOJ NESIGURNOSTI	41
5.2	MERNA NESIGURNOST TIPA A I TIPA B	42
5.3	NIVO POUZDANOSTI I RASPODELA VEROVATNOĆE	43
5.4	KOMBINOVANA MERN NESIGURNOST	44
5.5	KORELACIJA MERNIH NESIGURNOSTI I KOVARIJANSA	46
5.6	BUDŽET MERNE NESIGURNOSTI I PRIKAZIVANJE MERNE NESIGURNOSTI	47
5.7	POREĐENJE DVA REZULTATA MERENJA – Z-TEST	48
5.8	FITOVANJE FUNKCIJA – T-TEST I R^2 VREDNOST	49

6 EKSPERIMENTALNE METODE I OPREMA KORIŠĆENI U IZRADI TEZE **50**

6.1	PRIMENA EPA METODE	50
------------	---------------------------	-----------

6.2	MERENJA TEMPERATURE I VLAŽNOSTI VAZDUHA	53
6.3	SOFTVERSKI PAKET IZRAĐEN ZA POTREBE OVOG DOKTORATA	53

7 ANALIZA PODATAKA IZ EPA METODE I DODATKA I ODREĐIVANJE KALIBRACIONOG FAKTORA **55**

7.1	ODREĐIVANJE C_F KRIVE I ODGOVARAJUĆE FUNKCIJE NA OSNOVU PODATAKA IZ EPA METODE	55
7.2	ODREĐIVANJE A_F KRIVIH I ODGOVARAJUĆIH FUNKCIJA NA OSNOVU PODATAKA IZ EPA METODE	57
7.3	ODREĐIVANJE C_F KRIVE NA OSNOVU PODATAKA IZ DODATKA EPA METODE	60
7.4	ODREĐIVANJE A_F KRIVIH NA OSNOVU PODATAKA IZ DODATKA EPA METODE	61
7.5	NORMIRANE A_F KRIVE	63
7.6	RAZLIKE IZMEĐU KALIBRACIONIH KRIVIH IZ EPA METODE I DODATKA I KOMENTAR O NJIHOVOM KORIŠĆENJU	64
7.7	KOMENTAR O KORIŠĆENJU KALIBRACIONIH KRIVIH	66

8 ODREĐIVANJE SPEKTRALNOG REGIONA OD INTERESA I JEDNOSTAVAN MODEL MERNE NESIGURNOSTI **68**

8.1	MERNA NESIGURNOST ODREĐIVANJA EFIKASNOSTI DETEKTORA	69
8.2	MERNA NESIGURNOST KOREKCIJE NA VREME POLURASPADA RADONA	70
8.3	MERNA NESIGURNOST KALIBRACIONOG FAKTORA	71
8.4	BUDŽET MERNE NESIGURNOSTI	72
8.5	MERNA NESIGURNOST SREDNJIH VREDNOSTI KONCENTRACIJE RADONA	74
8.6	ODREĐIVANJE SPEKTRALNOG REGIONA OD INTERESA	76
8.6.1	TRI NAČINA USPOSTAVLJANJA ROI KOJI OBUHVATA ZNAČAJNE GAMA-LINIJE ^{214}Pb I ^{214}Bi	77

9 MERNA KAMPANJA U LABORATORIJI INN VINČA **81**

9.1	PRELIMINARNA MERENJA I ODABIR POZICIJA ZA POSTAVLJANJE KANISTERA	81
9.2	MERNA KAMPANJA	83

9.3	MESEČNE I SEZONSKE VARIJACIJE KONCENTRACIJE RADONA	98
9.4	GODIŠNJA EFEKTIVNA DOZA ZA ZAPOSLENE U ISPITIVANOM OBJEKTU	100
9.5	KORIŠĆENJE POJEDINAČNIH MERENJA UGLJENIM FILTERIMA ZA ODREĐIVANJE SREDNJIH MESEČNIH I GODIŠNJIH KONCENTRACIJA	101
10	<u>UTICAJ KORIŠĆENJA RECIKLIRANIH KANISTERA</u>	103
10.1	SKLADIŠTENJE KANISTERA	103
10.2	KALIBRACIJA TERMOHIGROGRAFA	104
10.3	UTICAJ RECIKLIRANJA KANISTERA NA ODABIR ADEKVATNE A_F KRIVE	105
10.4	KOREKCIJA PROMENE MASE KANISTERA	107
10.4.1	PROMENA MASE NOVIH KANISTERA	107
10.4.2	PROMENA MASE RECIKLIRANIH KANISTERA	108
10.4.3	PRIMENA KOREKCIJE	112
11	<u>PARALELNA MERENJA I MEĐULABORATORIJSKA POREĐENJA</u>	113
11.1	PARALELNA MERENJA U INN VINČA	113
11.2	NACIONALNO MEĐULABORATORIJSKO POREĐENJE	114
11.3	MEĐULABORATORIJSKO POREĐENJE FERAS 2012	115
11.4	POREĐENJE EPA METODE I TRAG DETEKTORA (DUGO IZLAGANJE)	117
11.5	ZAKLJUČCI IZVEDENI NA OSNOVU MEĐULABORATORIJSKIH POREĐENJA I PARALELNIH MERENJA	118
12	<u>DODATNO RAZMATRANJE KALIBRACIONOG FAKTORA I OPTIMIZACIJA USLOVA MERENJA</u>	120
12.1	MERNA NESIGURNOST PREMA DRUGIM AUTORIMA	121
12.2	MERNA NESIGURNOST TIP A KALIBRACIONOG FAKTORA I FAKTORA PODEŠAVANJA	122
12.2.1	MERNA NESIGURNOST TIP A KALIBRACIONOG FAKTORA ZA 48 SATI IZRAČUNATOG PRIMENOM LINEARNE FUNKCIJE	123

12.2.2	MERNA NESIGURNOST TIPA A FAKTORA PODEŠAVANJA IZRAČUNATOG PRIMENOM KVADRATNIH FUNKCIJA	124
12.2.3	KOMBINOVANA MERNA NESIGURNOST KALIBRACIONOG FAKTORA	126
12.3	PROMENA MASE KANISTERA, VLAŽNOST VAZDUHA I KALIBRACIONI FAKTOR	128
12.4	UTICAJ TEMPERATURE NA KALIBRACIONI FAKTOR	129
12.5	PROMENA KONCENTRACIJE RADONA	130
12.6	UTICAJ KRETANJA VAZDUHA	132
12.7	VLAŽNOST IZMEĐU KRIVIH I DRUGI NAČINI KONSTRUKCIJE A_F KRIVIH	133
12.7.1	MERNA NESIGURNOST ZBOG RAZLIKE IZMEĐU A_F KRIVIH	133
12.7.2	DRUGI NAČINI KONSTRUKCIJE A_F KRIVIH	134
12.8	KONTROLA STABILNOSTI GAMA-SPEKTROMETRA I DUGOVREMENSKA STABILNOST EFIKASNOSTI DETEKTORA	135
12.9	DRUGI SLUČAJNI EFEKTI PRI IZLAGANJU I MERENJU KANISTERA	139
12.10	INTERFERENCIJE TORONA I NJегоVIH POTOMAKA, KAO I RADONOVIH POTOMAKA	141
12.11	KOMBINOVANA MERNA NESIGURNOST U NAJBOLJEM I NAJGOREM SLUČAJU	142
12.11.1	NAJBOLJI SLUČAJ	142
12.11.2	NAJGORI SLUČAJ	143
12.12	OPTIMIZACIJA USLOVA MERENJA	145
13	<u>ZAKLJUČAK</u>	147
14	<u>LITERATURA</u>	149
	<u>BIOGRAFIJA AUTORA</u>	158
	<u>NAUČNI DOPRINOS</u>	159
	<u>IZJAVA O AUTORSTVU</u>	161
	<u>IZJAVA O ISTOVETNOSTI ŠTAMPANE I ELEKTRONSKE VERZIJE</u>	
	<u>DOKTORSKOG RADA</u>	162
	<u>IZJAVA O KORIŠĆENJU</u>	163

1 Uvod

Radon je drugi najvažniji uzročnik karcinoma pluća kod čoveka, posle pušenja. Radon je plemeniti gas, koji nastaje radioaktivnim raspadom različitih izotopa radijuma, koji su pak članovi prirodnih radioaktivnih nizova. Koncentracija radona u vazduhu je zbog toga u tesnoj vezi sa koncentracijom radonovih predaka u zemljištu, stenama, građevinskom materijalu itd., ali takođe zavisi i od mnogih drugih parametara, kao što su ventilacija, poroznost materijala, ambijentalni uslovi i količina vlage u materijalu (UNSCEAR, 2000).

Najveće zabeležene koncentracije radona su u podzemnim rudnicima sa visokim sadržajem uranijuma ili torijuma, posebno u uranijumskim rudnicima, pa je u takvom okruženju i najveća verovatnoća ispoljavanja štetnih efekata. Izmerene koncentracije radona mogu dostići vrednosti od čak nekoliko miliona Bq/m³ (Gillmore et al, 2005). Upravo u podzemnim rudnicima je prvi put primećen štetni uticaj radona, davno pre otkrića radioaktivnosti (Agricola, 1956), a u tom okruženju su izvršene i pionirske studije 50-ih godina prošlog veka, koje su omogućile da se koncentracija radona dovede u vezu sa povećanim rizikom od oboljevanja od kancera pluća. Koncentracija radona se u navedenim studijama kretala u opsegu od nekoliko hiljada do nekoliko desetina hiljada Bq/m³ (BEIR VI, 1999).

Koncentracije radona kojima je izložen prosečan čovek su značajno manje od koncentracija u rudnicima i sa njihovim sistematskim ispitivanjem se počelo značajno kasnije. Koncentracije se najčešće kreću od 1 Bq/m³ do 100 Bq/m³ na otvorenom i u sličnom opsegu u stambenom i poslovnom prostoru (UNSCEAR, 2000). Međutim, u pojedinim objektima je moguće prisustvo značajno većih koncentracija radona, pogotovo u prizemnim i podrumskim prostorijama, zbog čega su sistematska ispitivanja važna za zdravlje ljudi. Na primer, u jednoj kući u okrugu Keri u Irskoj, zabeležena je koncentracija radona od 49000 Bq/m³ (Gillmore et al, 2005). Pored toga, novija istraživanja pokazuju da postoji značajno povećanje rizika od karcinoma pluća i za male koncentracije radona (reda veličine 100 Bq/m³), što povećava potrebe za pouzdanim merenjima nižih koncentracija (European Council, 2014).

Metoda merenja radona pomoću ugljenih filtera se koristi duže od trideset godina i danas je jedna od najčešće korišćenih metoda. Varijanta metode opisana u dokumentu EPA 520 (Gray and Windham, 1987) ili EPA metoda, je najčešće korišćena metoda u našoj zemlji. U ovoj tezi će najviše govora biti upravo o ovoj metodi.

1.1 Cilj istraživanja

Osnovni cilj istraživanja opisanih u ovoj doktorskoj disertaciji je optimizacija merenja koncentracije radona u zatvorenom prostoru metodom ugljenih filtera prema dokumentu EPA 520, tako što će biti izvršena detaljna procena merne nesigurnosti i zatim biti objašnjeno na koji način merna nesigurnost može da se smanji.

S obzirom na to da u dostupnoj literaturi postoji vrlo malo podataka o mernoj nesigurnosti ove metode, u prvom koraku je izvršeno detaljno ispitivanje svih doprinosa mernoj nesigurnosti koji su mogli biti identifikovani u toku eksperimentalnog rada, pregledom literature, iz postavke same metode, kao i proučavanjem međunarodno priznatih uputstava za izražavanje merne nesigurnosti. Pošto su doprinosi identifikovani, optimizacija je izvršena tako što su predložene korekcije za slučajeve kada je moguće izvršiti potrebna merenja ili korekciju izračunati na osnovu teorijskog modela, odnosno tako što su predloženi dodatni uslovi za postavljanje kanistera i gama-spektrometrijsko merenje, koji obezbeđuju manje varijacije uticajnih veličina i smanjenje kombinovane merne nesigurnosti. Posebno je važan uticaj vlažnosti vazduha kod recikliranih kanistera, jer se ovaj uticaj znatno razlikuje kod recikliranih i novih kanistera i može dovesti do značajnih sistematskih grešaka. Takođe je predložena korekcija za navedeni uticaj.

Drugi cilj istraživanja je bio provera načina na koji se sprovodi metoda i određuje merna nesigurnost, kroz poređenje sa drugim metodama, učešće u interkomparacijama, sprovođenje kontrole kvaliteta, ali i kroz merenja koncentracije radona u stambenim, radnim i javnim prostorijama.

Treći cilj istraživanja je bio da se ispituju mogućnosti primene metode za dugoročna merenja koncentracije radona i određivanje sezonskih i mesečnih varijacija i odgovarajućih korekcionih faktora. To je urađeno kroz studiju slučaja u laboratorijskim

prostorijama INN Vinča, u kojoj je takođe izvršena i procena efektivnih doza za zaposlene koji borave u ispitivanom prostoru.

Konačno, cilj je bio i izrada softvera koji je omogućio brzo računanje koncentracija radona na osnovu ulaznih podataka (vreme izlaganja kanistera, vreme merenja, promena mase kanistera, odbroj u gama-spektru itd), a uz primenu predloženih korekcija, kao i bez njih, što je omogućilo brže poređenje rezultata. Navedeni program je korišćen i za brzo računanje srednjih vrednosti koncentracije radona i merne nesigurnosti srednjih vrednosti, uzevši u obzir korelacije merenih nesigurnosti pojedinačnih merenja.

2 Radioaktivnost i jonizujuće zračenje

2.1 Osnovni koncepti

Jonizujuće zračenje je svako zračenje koje može izazivati jonizaciju u sredini kroz koju prolazi, pa je prema tome minimalna energija koju jonizujuće zračenje mora imati reda veličine 10 eV. Međutim, pod pojmom “jonizujuće zračenje” se najčešće razmatraju subatomske čestice ili fotoni sa značajno većim energijama, reda veličine keV ili MeV. Jonizujuće zračenje nastaje usled različitih procesa, kao što su radioaktivni raspad, drugi procesi u jezgri i elektronskom omotaču atoma, ubrzavanje naelektrisanih čestica u elektromagnetnim poljima (akceleratori, generatori X-zračenja), nuklearne reakcije itd.

Jonizujuće zračenje može biti direktno jonizujuće i indirektno jonizujuće. Tako naelektrisane čestice, kao što su α -čestice (jezgra helijuma), β -čestice (elektroni i pozitroni), protoni, teški joni itd., izazivaju jonizaciju u najvećoj meri kroz direktnu elektrostatičku interakciju sa elektronskim oblakom atoma ili molekula. Pri tome jedna visokoenergetska naelektrisana čestica može izazvati veliki broj jonizacija. Sa druge strane, neutroni i fotoni najveći deo energije predaju u jednoj interakciji ili malom broju interakcija sa elektronima ili jezgrima, a zatim brze naelektrisane čestice direktno jonizuju sredinu. Kada su u pitanju fotoni sa energijama od značaja za ovu doktorsku temu (reda veličine 50 keV do 3 MeV), značajna su tri tipa interakcija: fotoefekat (foton predaje svu energiju elektronu čija je energija veze uporediva sa energijom fotona), Komptonov efekat (foton se neelastično rasejava na elektronu čija je energija veze mala u poređenju sa energijom fotona) i produkcija parova (foton sa energijom većom od 1,022 MeV u interakciji sa jezgrom proizvodi par elektron – pozitron) (Attix, 2004; Loveland et al, 2006).

Jonizujuće zračenje se može podeliti i prema dometu i specifičnoj jonizaciji, pri čemu su ove dve veličine u međusobnoj vezi. Naime, teške naelektrisane čestice izazivaju veliki broj jonizacija po jedinici pređenog puta (specifična jonizacija), pa brzo gube energiju i imaju mali domet, koji u vazduhu iznosi svega nekoliko centimetara. Naravno, domet i specifična jonizacija će zavisiti i od energije naelektrisane čestice.

Lake naelektrisane čestice, elektroni i pozitroni, imaju malu specifičnu jonizaciju i veliki domet, reda veličine metar u vazduhu. Kada je u pitanju posredno jonizujuće zračenje, specifična jonizacija je značajno manja zbog male verovatnoće interakcije, a domet više nije adekvatan koncept. Umesto dometa, definiše se debljina određenog materijala koja intenzitet zračenja smanjuje na jednu polovinu (debljina poluslabljenja) ili jednu desetinu. Tako je debljina poluslabljenja gama-zračenja u vazduhu nekoliko desetina ili čak stotina metara (Attix, 2004; Loveland et al, 2006).

2.2 Apsorbovana, ekvivalentna i efektivna doza

Dozimetrijske veličine omogućavaju da se izmeri efekat jonizujućeg zračenja na sredinu kroz koju zračenje prolazi. U međunarodnim standardima i stručnoj literaturi je definisano više dozimetrijskih veličina (kerma, ekspoziciona doza, lični, ambijentalni i direkcioni dozni ekvivalent itd.), ali će u ovom radu biti definisane tri veličine: apsorbovana doza, ekvivalentna doza i efektivna doza.

Apsorbovana doza predstavlja energiju predata jedinici mase i definisana je za sve vrste zračenja i sve materijale. Apsorbovana doza se računa prema formuli 2.1:

$$D = \frac{dE}{dm} \quad (2.1)$$

gde je D apsorbovana doza, a dE energija koju jonizujuće zračenje predaje masi dm . SI jedinice za apsorbovanu dozu su greji (Gy), odnosno J/kg. Jačina apsorbovane doze se računa deljenjem sa vremenom ozračivanja (Mattsson and Hoeschen, 2013).

Ekvivalentna doza je veličina koja se koristi u zaštiti od zračenja i uzima u obzir činjenicu da različite vrste i energije zračenja izazivaju različiti biološki efekat za istu apsorbovanu dozu. Računa se tako što se apsorbovana doza pomnoži težinskim faktorom za vrstu zračenja, w_r , koji predstavlja relativni biološki efekat u odnosu na fotone energije 200 keV. Vrednosti težinskog faktora se kreću od 1 za fotone i elektrone, pa do 20 za α -čestice. Ukupna ekvivalentna doza se dobija sumiranjem po svim vrstama i energijama zračenja. Ekvivalentna doza ima iste dimenzije kao apsorbovana doza, a SI jedinica je sivert (Sv) (Mattsson and Hoeschen, 2013).

Efektivna doza je veličina zasnovana na linearnom modelu bez praga, prema kome rizik od oboljenja uzrokovanih jonizujućim zračenjem zavisi linearno od primljene doze, čak i za male doze zračenja (za koje ne postoje adekvatne

epidemiološke studije), a ne postoji prag doze ispod kojeg rizik pada na nulu. Pored toga, pretpostavljena je aditivnost primljenih doza. Efektivna doza se računa kao suma doza za pojedinačne organe pomnoženih težinskim faktorima koji iznose od 0,12 za pluća, koštanu srž itd., do 0,01 za ekstremitete i kožu (Mattsson and Hoeschen, 2013).

2.3 Radioaktivnost

Radioaktivnost je proces u kome nestabilno atomsko jezgro prelazi u stabilno ili stabilnije jezgro, pri čemu se višak energije emituje u vidu čestičnog ili fotonskog zračenja. Zračenje je najčešće mnogo većih energija od onih koje su potrebne za jonizaciju atoma i molekula sredine. Jezgro koje se raspada se zove predak, a jezgro koje nastaje potomak. Zakon radioaktivnog raspada definiše brzinu nestajanja pretka prema jednačini 2.2:

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (2.2)$$

gde je N broj atoma pretka u trenutku t , N_0 broj atoma pretka u $t = 0$ i λ radioaktivna konstanta. Radioaktivna konstanta je povezana sa vremenom poluraspada ($t_{1/2}$) radionuklida preko relacije 2.3 (Attix, 2004; Loveland et al, 2006):

$$t_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (2.3)$$

2.3.1 Aktivnost

Aktivnost predstavlja broj radioaktivnih raspada u jedinici vremena, a računa se tako što se broj atoma radionuklida pomnoži radioaktivnom konstantom. Aktivnost takođe opada po istom zakonu i istom brzinom kao i broj radioaktivnih atoma. Jedinica aktivnosti u SI sistemu je bekerel, Bq i on iznosi jedan raspad po sekundi. Stara jedinica za radioaktivnost je kiri (Ci), a 1 Ci iznosi $3,7 \times 10^{10}$ Bq (Attix, 2004; Loveland et al, 2006).

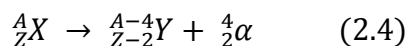
U ovoj doktorskoj tezi, često će se govoriti o aktivnosti radona po jediničnoj zapremini vazduha. Ova veličina se u literaturi i regulativi najčešće naziva koncentracijom (na primer, UNSCEAR, 2000; Službeni glasnik RS, 2009, 2012), a zbog jednostavnosti će tako biti činjeno i u ovoj tezi.

2.3.2 Radioaktivna ravnoteža

Proizvod radioaktivnog raspada takođe može biti radioaktivan. U zavisnosti od odnosa vremena poluraspada pretka i potomka, razlikuju se tri slučaja. Ako je vreme poluraspada pretka mnogo duže od vremena poluraspada potomka, uspostavlja se sekularna radioaktivna ravnoteža. U stanju ravnoteže, aktivnosti pretka i potomka su jednake i ostaju skoro konstantne u vremenskom periodu koji je višestruko duži od vremena poluraspada potomka. U drugom slučaju, vreme poluraspada pretka je malo duže nego vreme poluraspada potomka. Tada aktivnost potomka raste do maksimalne vrednosti kada se uspostavlja prolazna ravnoteža, u kojoj odnos broja atoma (i aktivnosti) pretka i potomka ostaje konstantan, a apsolutne vrednosti aktivnosti pretka i potomka opadaju. Na kraju, ako je vreme poluraspada pretka kraće od vremena poluraspada potomka, ravnoteža se ne uspostavlja (Loveland, 2006). Navedena razmatranja važe za zatvoreni sistem i ukoliko se koncentracija pretka ne nadoknađuje (na primer, radioaktivnim raspadom nekog drugog radioaktivnog izotopa).

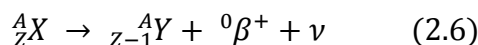
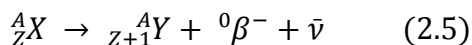
2.3.3 Tipovi radioaktivnog raspada

U zavisnosti od procesa koji se dešavaju u jezgru prilikom radioaktivnog raspada i tipa čestica koje se emituju, može se izdvojiti više tipova raspada. Alfa-raspad prati emisija alfa-čestice, odnosno jezgra helijuma, pri čemu se maseni broj radionuklida smanjuje za 4, a atomski za 2, što je predstavljeno jednačinom 2.4:



gde A označava maseni broj, a Z atomski (Loveland, 2006). U prirodi se svi alfa-emiteri nalaze među najtežim elementima, atomskih masa većih od 200.

Beta-raspad prate emisija elektrona i antineutrina (β^- -raspad, jednačina 2.5), odnosno emisija pozitrona i neutrina (β^+ -raspad, jednačina 2.6)



Pošto β^- -raspad prati povećanje broja protona na račun neutrona, on je karakterističan za izotope koji imaju višak neutrona, a nasuprot tome, β^+ -raspad je karakterističan za izotope sa viškom protona. Srodna beta-raspadu je i konverzija elektrona (ϵ -raspad), pri čemu elektron iz k-ljuske biva zahvaćen od strane jezgra uz emisiju neutrina (Loveland, 2006). U prirodi je mnogo češći β^- -raspad, a njemu podležu

elementi iz čitavog periodnog sistema, od tricijuma (atomski broj 1) do protaktinijuma (atomski broj 91).

U toku radioaktivnog raspada, uz druge čestice se najčešće emituje i jedan ili više visokoenergetskih fotona. Fotoni mogu nastajati usled relaksacije jezgra, pri čemu se radi o γ -fotonima, ili usled popunjavanja elektronskih nivoa koji su ostali upražnjeni kao posledica radioaktivnog raspada, pri čemu se radi o X-fotonima. "Čisti" alfa- i beta-emiteri su veoma retki, a primeri takvih emitera su ^{218}Po za alfa-raspad i ^3H za β^- -raspad. Poseban slučaj radioaktivnog raspada je emisija fotona bez emisije čestica, u kom slučaju se u toku raspada ne menjaju ni atomski ni maseni broj. Do gama-raspada dolazi kada se pobuđeno jezgro nalazi u metastabilnom stanju sa merljivim vremenom poluraspada (Loveland, 2006).

Pojedini radionuklidi se mogu raspadati na više različitih načina, pri čemu je svaki način raspada okarakterisan posebnom radioaktivnom konstantom. Jedan od primera je ^{40}K , koji podleže i β^- - i β^+ - i ϵ -raspadu (BIPM, 2010).

Spontana fisija predstavlja spontano cepanje jezgra na dva fragmenta približno jednakih masa uz emitovanje neutrona i gama-fotona. U prirodi, spontanoj fisiji podležu samo najteži radionuklidi (^{232}Th , ^{235}U i ^{238}U), pri čemu im to nije glavni mod raspada (BIPM, 2006, 2010).

2.4 Jonizujuće zračenje u prirodi

Jonizujuće zračenje je deo našeg prirodnog okruženja i tako je bilo od postanka Zemlje. Svi prirodni izvori zajedno doprinose prirodnom fonu zračenja, koji za najveći broj ljudi na Zemlji uzrokuje značajno veću dozu nego veštački izvori. Fon zračenja, kao i doprinos različitih izvora, varira u zavisnosti od nadmorske visine, doba dana, geografske širine, sastava i tipa zemljišta, vremenskih uslova... Međutim, u svakoj tački na Zemlji fon ima neku konačnu vrednost, tako da iako je moguće smanjiti izlaganje jonizujućem zračenju, nemoguće ga je u potpunosti izbeći.

Postoji veliki broj prirodnih izvora jonizujućeg zračenja, ali samo mali broj uzrokuje značajnu dozu. Može se napraviti sledeća podela prirodnih izvora, prema značaju za izlaganje ljudi:

- radon i njegovi potomci (unutrašnje izlaganje)

- drugi primordijalni radionuklidi i njihovi potomci (unutrašnje izlaganje i spoljašnje izlaganje)
- kosmičko zračenje (spoljašnje izlaganje)

Drugi prirodni izvori zračenja su od manjeg značaja sa stanovišta zaštite od zračenja (UNSCEAR, 2000).

2.4.1 Prirodni radioaktivni nizovi i radon

Da bi određeni radionuklid postojao u prirodi, on mora ili da se kontinuirano stvara ili da ima vreme poluraspada samerljivo sa starošću Zemlje. Najveći broj radionuklida u radioaktivnim nizovima ima veoma kratko vreme poluraspada u poređenju sa starošću Zemlje, ali u prirodi stalno nastaju raspadom “rodonačelnika” nizova, koji imaju vreme poluraspada reda veličine milijardu godina (UNSCEAR, 2000).

Svi prirodni radionuklidi sa masenim brojem većim od 206 se mogu svrstati u tri radioaktivna niza (izuzetak je ^{209}Bi , koji je alfa-emiter sa najdužim poznatim vremenom poluraspada). Rodonačelnik uranijumovog radioaktivnog niza je ^{238}U , a članovi niza imaju maseni broj $4n + 2$, gde je n ceo broj. Posle 14 uzastopnih raspada, konačan proizvod je stabilni izotop ^{206}Pb (slika 2.1). Torijumov radioaktivni niz počinje izotopom ^{232}Th , a maseni broj svih članova je $4n$. Posle 10 uzastopnih raspada, konačni proizvod je ^{210}Pb (slika 2.2). Konačno, radioaktivni niz izotopa sa masenim brojem $4n + 3$ počinje izotopom ^{235}U , a posle 11 uzastopnih raspada, dobija se stabilan izotop ^{207}Pb (slika 2.3) (BIPM 2004, 2006, 2008a, 2010, 2011, 2013).

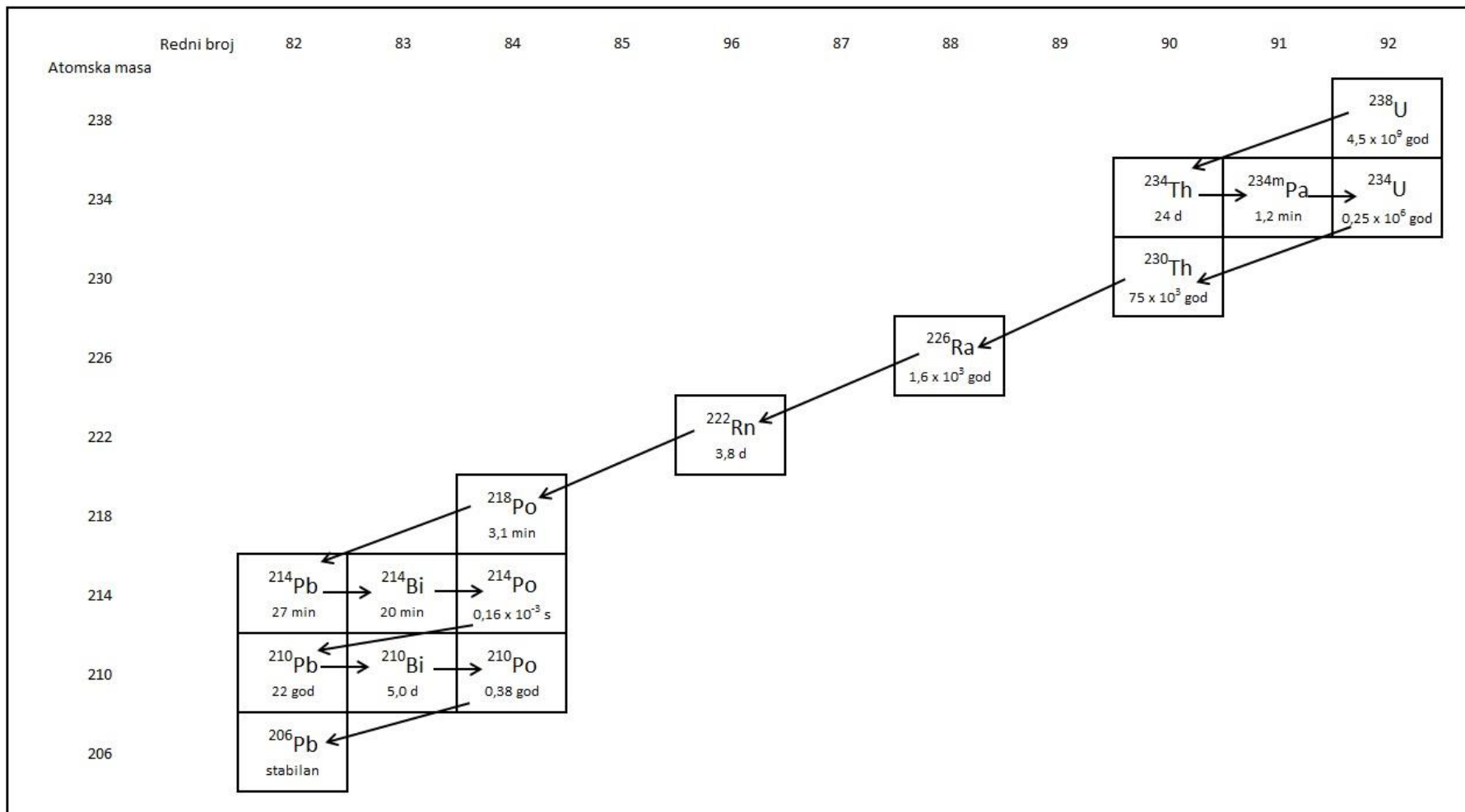
Ono što se može primetiti sa slika je da je vreme poluraspada rodonačelnika nizova za najmanje četiri reda veličine duže od bilo kog drugog izotopa u datom nizu, što omogućava da se uspostavi sekularna radioaktivna ravnoteža u celom nizu. Međutim, različiti fizičko-hemijski procesi mogu da poremete radioaktivnu ravnotežu, tako da u slučaju da se koncentracija pretka određuje na osnovu koncentracije potomaka treba sačekati dovoljno vremena da se obezbedi postojanje ravnoteže.

2.4.2 Izlaganje prirodnim izvorima zračenja

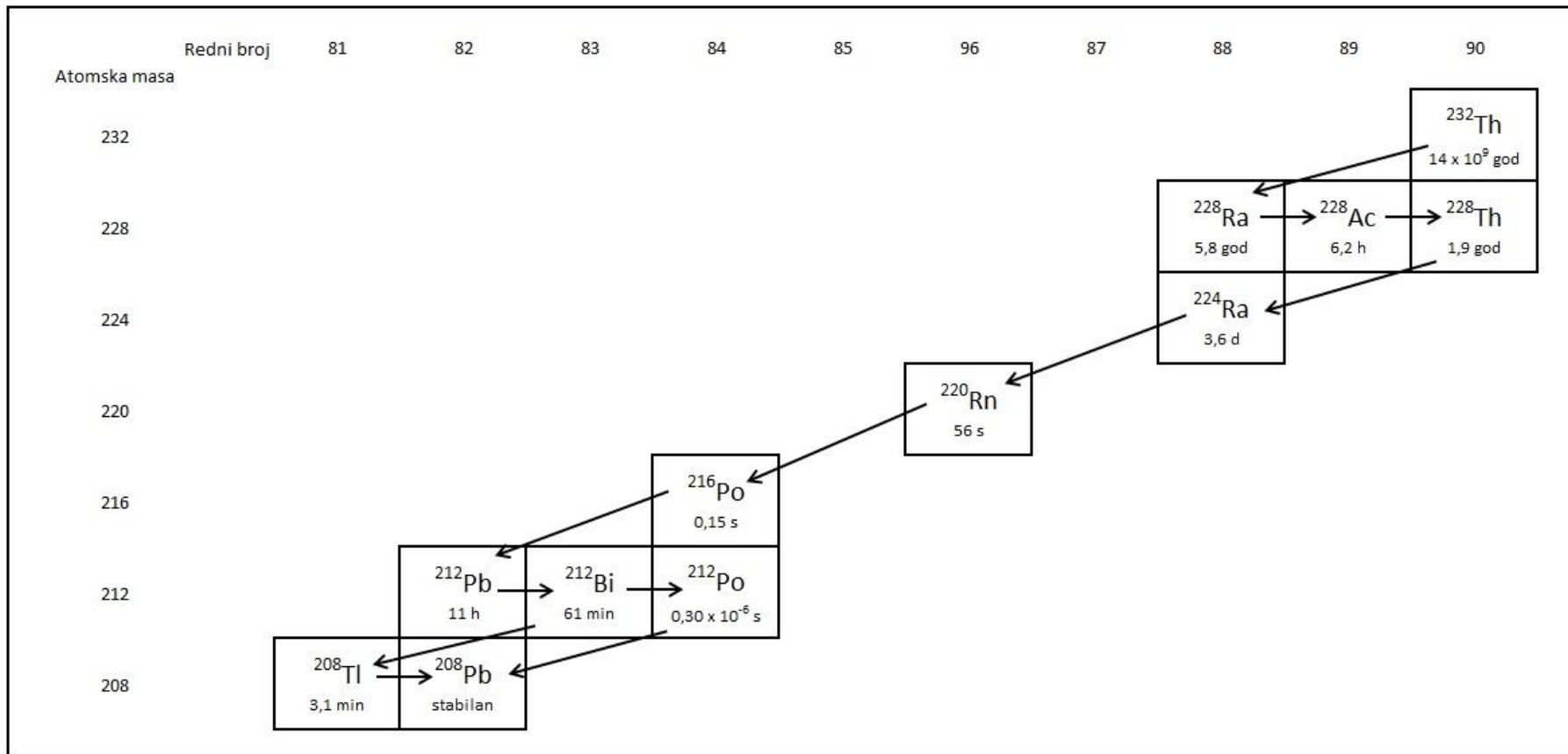
U ovom odeljku će biti korišćeni podaci iz Aneksa B izveštaja Naučnog komiteta ujedinjenih nacija za efekte atomskog zračenja (UNSCEAR) za 2008. godinu,

a doze će biti izražene kao godišnje efektivne doze za prosečnog stanovnika Zemlje (UNSCEAR, 2010).

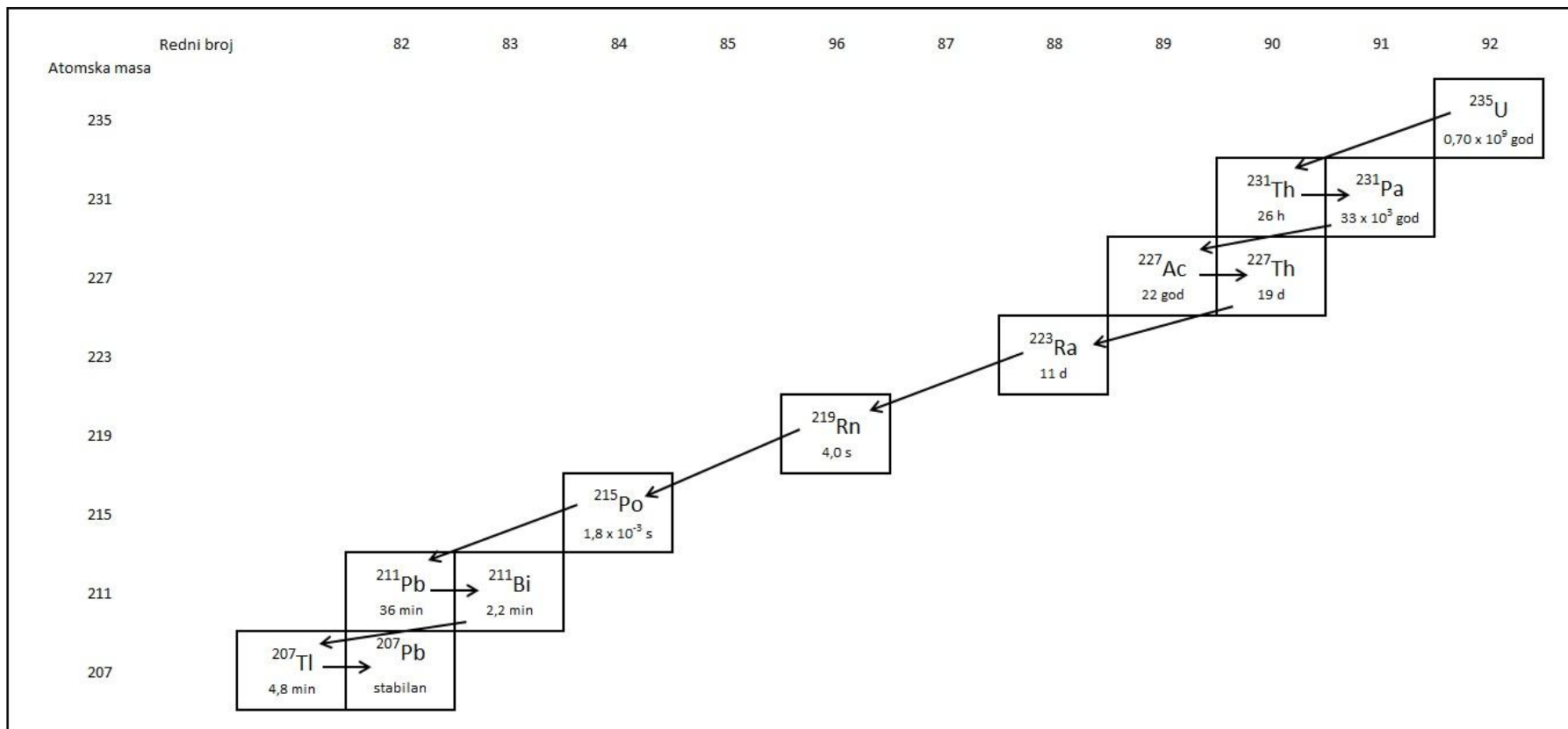
Radon je najznačajniji prirodni izvor jonizujućeg zračenja jer doza od radona i njegovih potomaka za prosečnog čoveka nadmašuje dozu od svih drugih izvora zajedno. Takođe, zbog toga što je radon pri normalnim uslovima gasovit i skoro čist α -emiter, zaštita od radona i način izlaganja radonu su različiti nego za druge prirodne izvore. Zbog toga se radon razmatra odvojeno od ostalih članova radioaktivnih nizova. Dva izotopa radona sa svojim potomcima daju značajan doprinos godišnjoj dozi za prosečnog čoveka: ^{222}Rn uzrokuje godišnju efektivnu dozu od 1,15 mSv, a ^{220}Rn 0,1 mSv (UNSCEAR, 2010).



Slika 2.1 Uranijumov radioaktivni niz (BIPM, 2006, 2008a, 2010, 2011)



Slika 2.2 Torijumov radioaktivni niz (BIPM, 2004, 2010, 2011, 2013)



Slika 2.3 Radioaktivni niz ^{235}U (BIPM, 2004, 2008a, 2010, 2011, 2013)

Pored radona, značajan je doprinos efektivnoj dozi drugih radioizotopa iz uranijumovog i torijumovog niza i izotopa ^{40}K . Mnogi od ovih izotopa, za razliku od radona, imaju značajnu fotonsku komponentu zračenja, zbog čega su značajni i kao spoljni i kao unutrašnji izvor zračenja. Ukupna doza od eksternog izlaganja iznosi 0,48 mSv godišnje. Kao unutrašnji izvori, radionuklidi iz radioaktivnih nizova doprinose dozom od 0,12 mSv godišnje. Kalijum-40 predstavlja 0,001 % atoma u prirodnom kalijumu, a koncentracija kalijuma u organizmu je pod homeostatičkom kontrolom i različita je za odrasle i za decu, pa je prosečna godišnja doza 0,165 mSv za odrasle i 0,185 mSv za decu (UNSCEAR, 2010).

Kosmičko zračenje, kao što samo ime kaže, je komponenta prirodnog fona zračenja koja potiče iz Kosmosa. Od velikog značaja za izlaganje ljudi su tri tipa kosmičkog zračenja: galaktičko (potiče iz dubokog svemira), solarno (potiče od Sunca) i zračenje iz Van Alenovih pojasa. Zemlja je od kosmičkog zračenja zaštićena magnetnim poljem, ali i vazduhom, pa je tako na nivou mora ukupna debljina zaštitnog sloja atmosfere oko 10000 kg/m^2 . Sa porastom nadmorske visine, ali i geografske širine, doza od kosmičkog zračenja raste. Prosečna efektivna godišnja doza za stanovništvo iznosi 0,38 mSv, dok je raspon doza od 0,3 mSv do 2 mSv (UNSCEAR, 2010).

Konačno, kada se u obzir uzmu svi doprinosi dozi od prirodnih izvora, prosečan čovek godišnje primi efektivnu dozu od oko 2,4 mSv, od čega skoro polovina otpada na izotope radona (UNSCEAR, 2010).

2.5 Biološki efekti jonizujućeg zračenja

Biološki efekti jonizujućeg zračenja kod čoveka nastaju kao posledica direktnog delovanja jonizujućeg zračenja, ali i indirektnog – kasnijim delovanjem radikala i drugih reaktivnih hemijskih vrsta nastalih u interakciji jonizujućeg zračenja i atoma i molekula sredine. Biološki efekti su izučavani prvenstveno na osnovu posledica atomskih bombi bačenih na Hirošimu i Nagasaki 1945. godine. Druge grupe obuhvaćene istraživanjima su pacijenti podvrgnuti medicinskim izlaganjima, radnici koji su radili sa radijumskim bojama, rudari u uranijumskim rudnicima itd. (Turner, 2007).

Biološki efekti se mogu podeliti na determinističke, koji imaju prag i čija ozbiljnost zavisi od primljene doze i stohastičke, koji nemaju prag i čija ozbiljnost ne zavisi od primljene doze. Među determinističkim efektima su akutni radijacioni sindrom i katarakta, a stohastičkim leukemija i kancer (Turner, 2007).

Postoji više modela koji povezuju incidencu kancera ili leukemije i primljenu efektivnu dozu. Pored već pomenutog linearnog modela bez praga, koristi se i linearno-kvadratni model sa različitim modifikacijama, modeli sa pragom itd. Prema postojećim modelima, za jednokratno izlaganje dozi od oko 0,1 Sv, povećanje rizika smrti od kancera je oko 5 % po sivertu, a smrti od leukemije oko 1 % (u zavisnosti od primenjenog modela, pola, godina itd.) (UNSCEAR, 2008).

3 Radon

3.1 Otkriće i osnovne osobine

Još u 16. veku, četiri veka pre otkrića radona, primećeni su njegovi zdravstveni efekti kod rudara u podzemnim rudnicima u Karpatima. Agrikola je tada pisao o bolesti koja izjeda pluća rudara, a zabeleženi su slučajevi žena koje su imale po 7 muževa koji su svi umrli od ove bolesti (Agricola, 1950).

Do otkrića radona je došlo brzo posle prvih otkrića u oblasti radioaktivnosti i jonizujućeg zračenja od strane Rendgena, Bekerela i Kirijevih. Najčešće se otkriće radona pripisuje Ernstu Dornu, zbog njegovog pionirskog rada o „emanaciji“ radijuma iz 1900. godine (McLaughlin, 2013), međutim, nesporno je da su velike doprinose dali i Ernest Raderford, koji je proučavao emanaciju torijuma godinu dana ranije, ali i Frederik Sodi i bračni par Kiri (Marshall and Marshall, 2003).

Do 1950. godine, izvršen je veći broj istraživanja u uranijumskim rudnicima i drugim prostorima sa visokom koncentracijom radona, što je omogućilo da se radon identifikuje kao glavni uzročnik kancera pluća kod rudara u podzemnim kopovima. Međutim, Međunarodna agencija za istraživanje kancera (IARC) je radon klasifikovala kao karcinogen tek 1988. godine. Poslednjih godina, sprovode se intenzivna istraživanja o uticaju niskih koncentracija radona na zdravlje ljudi, što zahteva i unapređenje postojećih mernih tehnika (Pantelić et al, 2015b; McLaughlin, 2013; European Council, 2014).

Radon je plemeniti gas šeste periode elemenata sa rednim brojem 86, koji se u prirodi nalazi u tragovima (reda veličine 10^{-20} atoma radona za svaki molekul u atmosferi). Ukupna masa radona u atmosferi se kreće oko 100 g i stalno se obnavlja raspadom radonovih predaka. Sva tri izotopa radona koja se nalaze u prirodi su članovi radioaktivnih nizova – ^{222}Rn je član uranijumovog niza (u daljem tekstu će naziv radon označavati ovaj izotop, ako nije posebno naglašeno), ^{220}Rn (toron) je član torijumovog niza i ^{219}Rn (aktinon) je član niza ^{235}U .

Radon se, zbog svog kratkog vremena poluraspada, u vazduhu, vodi i zemljištu uvek nalazi zajedno sa svojim potomcima (koji ne moraju biti u radioaktivnoj ravnoteži sa radonom). Biološki efekti radona, zapravo, u najvećoj meri potiču od kratkoživućih

radonovih potomaka. Kako se radon najčešće izučava u kontekstu bioloških efekata, u literaturi i regulativi se često pod pojmom radon podrazumeva radon sa svojim potomcima, a pod izlaganjem radonu - izlaganje radonovim potomcima (na primer: ICRP, 1994; European Council, 2014).

U ovoj glavi će više prostora biti posvećeno radonu u odnosu na toron, zbog značajno većeg doprinosa godišnjoj efektivnoj dozi, kao i zbog prosečnih koncentracija većih oko 30 puta (UNSCEAR, 2000, 2010).

3.2 Radioaktivni raspad radona, torona i njihovih potomaka

Radon i toron podležu alfa-raspadu, pri čemu nastaje odgovarajući izotop polonijuma, a prateće fotonske emisije su veoma slabe (oko 1 foton na 1000 raspada). Međutim, potomci radona i torona imaju značajne fotonske emisije. Radioaktivna ravnoteža između radona i njegovih potomaka se uspostavlja za tri sata, što omogućava posredno određivanje koncentracije radona gama-spektrometrijski. Toron, s druge strane, ima značajno kraće vreme poluraspada od svojih potomaka, pa ne dolazi do uspostavljanja ravnoteže u zatvorenom sistemu. Vreme poluraspada radona iznosi 3,8232(8) dana (BIPM, 2008a), a torona 55,8(3) sekundi (BIPM, 2004).

U tabeli 3.1 su navedeni značajni fotoni koje emituju potomci radona i torona, čija je energija veća od 45 keV. Korigovana verovatnoća emisije uzima u obzir činjenicu da pojedini izotopi u radioaktivnoj ravnoteži sa odgovarajućim izotopom torona nemaju istu aktivnost kao toron, zbog toga što njihov predak ima više od jednog načina raspada.

3.3 Radon i toron i njihovi potomci u atmosferi

Radon i toron nastaju raspadom odgovarajućih izotopa radijuma, koji su prisutni svuda na Zemlji. Uzmak jezgra radona je nekoliko desetina nanometara u većini čvrstih materijala, što mu omogućava da dospe u pore materijala i zatim difuzijom dođe do atmosfere. Procenat atoma radona koji se oslobodi u pore se naziva koeficijent emanacije i kreće se od 5 % do 70 % za većinu tipova stena i zemljišta. Vlažnost

zemljišta značajno utiče na koeficijent emanacije tako što povećava verovatnoću da jezgra radona ostanu u porama (UNSCEAR, 2000).

Tabela 3.1 Radon i toron i njihovi potomci: značajne gama-emisije
(BIPM 2008a, 2013)

Radioaktivni niz	Jezgro koje podleže raspadu i poreklo fotona	Energija fotona (kV)	Korigovana verovatnoća emisije (%)
^{222}Rn	^{210}Pb (γ)	46,5	4,3
^{222}Rn	^{214}Pb (X)	74,8	6,3
^{220}Rn	^{212}Pb (X)	74,8	10,7
^{222}Rn	^{214}Pb (X)	77,1	10,5
^{220}Rn	^{212}Pb (X)	77,1	17,9
^{220}Rn	^{212}Pb (X)	86,8 – 87,9	6,1
^{220}Rn	^{212}Pb (γ)	238,6	43,6
^{222}Rn	^{214}Pb (γ)	242,0	7,3
^{222}Rn	^{214}Pb (γ)	295,2	18,4
^{220}Rn	^{212}Pb (γ)	300,1	3,3
^{222}Rn	^{214}Pb (γ)	351,9	35,6
^{220}Rn	^{208}Tl (γ)	510,7	8,1
^{220}Rn	^{208}Tl (γ)	583,2	30,5
^{222}Rn	^{214}Bi (γ)	609,3	45,5
^{220}Rn	^{212}Bi (γ)	727,3	6,7
^{222}Rn	^{214}Bi (γ)	1238	5,8
^{222}Rn	^{214}Bi (γ)	1764	15,3
^{220}Rn	^{208}Tl (γ)	2615	35,8

Koncentracija radona na otvorenom prostoru pokazuje dnevne varijacije. Najveće koncentracije su noću i rano ujutru, kada često dolazi do temperaturne inverzije i radon ostaje zarobljen u prizemnim slojevima atmosfere. Danju zagrevanje Sunčevim zracima može izazvati turbulencije, što olakšava transport radona u više slojeve atmosfere. Oscilacije u koncentraciji mogu biti i za faktor 10. S druge strane, koncentracija radona pokazuje i sezonske oscilacije zbog padavina, vetrova i temperature (UNSCEAR, 2000).

Globalni prosek koncentracija na otvorenom je sličan za radon i toron i iznosi oko 10 Bq/m^3 . Koncentracije su najmanje iznad vodenih površina ili u njihovoj blizini (na ostrvima, u priobalju), a najveće u regionima bogatim uranijumom ili torijumom. Koncentracije u većini geografskih područija su između 1 Bq/m^3 i 100 Bq/m^3 . S obzirom na kratko vreme poluraspada, lokalne varijacije torijuma su mnogo izraženije, kao i vertikalni gradijent koncentracije. Prema pojedinim istraživanjima, koncentracija torona na 10 cm visine je za red veličine veća od koncentracije na 1 m (UNSCEAR, 2000).

Radon i toron u zatvoreni prostor dospevaju iz zemljišta, građevinskog materijala, vode, prirodnog gasa i spoljne atmosfere, a odnos ovih doprinosa je drugačiji za svaki objekat. Prema UNSCEAR, procenjena prosečna koncentracija radona u zatvorenom prostoru je 40 Bq/m^3 . Koncentracije torona su mnogo manje izučavane, a srednja vrednost je ispod 10 Bq/m^3 (UNSCEAR, 2000).

Dnevne varijacije koncentracije radona u zatvorenom prostoru uglavnom prate isti obrazac kao varijacije u otvorenom prostoru. U većini studija, koncentracije su najviše noću i rano ujutru, a najniže popodne, a odnos maksimalne i minimalne koncentracije radona se kreće između 2 i 10. Međutim, prirodna i veštačka ventilacija mogu da poremete dnevne varijacije, uzrokujući manje ili veće varijacije od tipičnih, sa mogućim pomeranjem perioda dana u kome je koncentracija maksimalna (UNSCEAR, 2000; George, 1984; Arafa et al, 2005; Mahat, 2007; Denman et al, 2007; Kolarž et al, 2009).

Pored dnevnih varijacija, koncentracija radona u zatvorenom podleže i sezonskim i godišnjim varijacijama. S obzirom na to da su merenja koncentracije radona koja traju godinu dana retka u praksi i literaturi, pogodno je rezultate za kraće vremenske periode na neki način pretvoriti u srednje godišnje koncentracije. Najčešće se to postiže množenjem kratkotrajnih srednjih koncentracija sezonskim korekcionim faktorima. Sezonski korekcionni faktori se određuju za lokacije za koje postoje podaci za celu godinu ili više godina, deljenjem srednjih godišnjih koncentracija srednjim koncentracijama za mesec ili godišnje doba ili drugim metodologijama (Gillmore et al, 2005, Kozak et al, 2011; Burke and Murphy, 2011).

Sezonski korekcionni faktori se razlikuju između područija sa različitom klimom i geologijom, ali će zavistiti i od načina ventilacije objekta, spratnosti itd. Zbog toga treba

izbegavati nekritičku primenu vrednosti faktora iz literature, već je poželjno odrediti ih za reprezentativne objekte za različite regione (Gillmore et al, 2005; Burke and Murphy, 2011). Tako, na primer, u tropskim područjima često uopšte ne postoje sezonske varijacije (Mahat, 2007). U područjima sa velikim varijacijama prosečnih dnevnih temperatura u toku godine, koncentracije radona obično rastu sa smanjenjem spoljne temperature (Kozak et al, 2011; Abd El-Zaher, 2011), mada u značajnom broju objekata postoji obrnut trend (Burke and Murphy, 2011; Arvela, 1995).

3.4 Koncentracija radona i torona i procena rizika

Da bi se koncentracija radona u vazduhu povezala sa rizikom od različitih oboljenja, definisan je čitav niz izvedenih veličina i jedinica, koje će ovde biti objašnjene.

Zdravstveni rizik od radona u najvećoj meri potiče od njegovih kratkoživućih potomaka, ^{218}Po , ^{214}Pb i ^{214}Bi . S obzirom na to da zbog različitih fizičko-hemijskih procesa u atmosferi radon skoro nikada nije u ravnoteži sa svojim potomcima, potrebno je znati i koncentracije potomaka da bi se procenio zdravstveni rizik. Zbog toga je definisana veličina koncentracija potencijalne alfa-energije (PAEC - potential alpha energy concentration), koja predstavlja ukupnu energiju alfa-čestica koje bi bile emitovane ako bi se svi potomci radona prisutni u jediničnoj zapremini vazduha raspali do ^{210}Pb . Ova veličina se izražava u SI jedinicama Jm^{-3} , a istorijski je korišćena i jedinica radni nivo (WL – working level), definisana za potrebe istraživanja u podzemnim rudnicima. Jedan WL predstavlja onu koncentraciju radonovih potomaka u litru vazduha koja će potpunim raspadom emitovati alfa-čestice sa ukupnom energijom $1,3 \times 10^5 \text{ MeV}$ ($2,08 \times 10^5 \text{ Jm}^{-3}$). Jedan WL odgovara koncentraciji radona u ravnoteži sa svojim potomcima od 100 pCi/l, to jest 3700 Bq/m^3 . Radni nivo-mesec (WLM – working level month) predstavlja izlaganje koncentraciji radona koja odgovara radnom nivou tokom jednog radnog meseca od 170 sati. Jedan WLM iznosi $3,5 \times 10^{-3} \text{ J h m}^{-3}$. Slično se određuju i vrednosti PAEC za toron. Da bi ravnoteža torona sa potomcima uopšte bila moguća, neophodno je da se njegova koncentracija stalno nadoknađuje raspadom ^{224}Rn iz okruženja (BEIR VI, 1999).

Faktor ravnoteže se računa tako što se podeli PAEC u uslovima u kojima se meri koncentracija radona sa vrednošću PAEC u uslovima ravnoteže. Ukoliko je faktor ravnoteže poznat, množenjem koncentracije radona ovim faktorom se dobija koncentracija radona ekvivalentna stanju radioaktivne ravnoteže sa potomcima (EEC - equivalent equilibrium concentration). Kao što se vidi iz prethodno navedene definicije PAEC, vrednosti koncentracije radona od 1 Bq m^{-3} EEC odgovara $5,6 \times 10^{-9} \text{ J m}^{-3}$, odnosno 0,27 mWL (UNSCEAR, 2000; BEIR VI, 1999).

Kada je u pitanju radon u otvorenom prostoru, izmerene su vrednosti faktora ravnoteže od 0,2 do 1, sa tipičnim vrednostima od 0,5 do 0,7. UNSCEAR preporučuje korišćenje vrednosti od 0,6 za proračun EEC, ukoliko faktor ravnoteže nije određivan. S druge strane, u zatvorenom prostoru se faktor ravnoteže kreće između 0,1 i 0,9, ali se u najvećem broju slučajeva ne razlikuje od vrednosti 0,4 za više od 30 %. Faktor ravnoteže takođe varira sa vremenom. S obzirom na to da se u proračunu EEC najčešće koriste procenjene vrednosti faktora ravnoteže, bitno je znati da ovako izračunata vrednost može biti pogrešna (UNSCEAR, 2000).

Faktor ravnoteže za toron pokazuje značajne varijacije zbog toga što je vreme poluraspada toronovog potomka ^{212}Pb 660 puta duže od samog torona i iznosi oko 11 sati. Tako dugo vreme poluraspada dozvoljava da radonovi potomci ventilacijom ili drugim procesima budu uklonjeni iz atmosfere pre nego što podlegnu radioaktivnom raspadu, čime se značajno narušava radioaktivna ravnoteža. Preporučena vrednost ravnotežnog faktora za toron od strane UNSCEAR iznosi 0,02, a slične vrednosti su izmerene i u novijim studijama (Chen et al, 2012). Međutim, varijacije faktora ravnoteže za toron su mnogo veće nego za radon pa su procene EEC na osnovu koncentracije torona utoliko manje pouzdane (UNSCEAR, 2000). Tako su, na primer, u skorijoj studiji izmerene vrednosti između 0,01 i 0,29 (Prasad et al, 2015).

Dozni konverzioni faktor (DCF - dose conversion factor) daje vezu između EEC i efektivne ili ekvivalentne doze. Ovaj faktor se često izražava u jedinicama $\frac{\text{nSv}}{\text{Bq h m}^{-3}}$, pa je EEC prethodno potrebno pomnožiti vremenom boravka (occupancy) u prostoru sa poznatom koncentracijom radona. Srednja vrednost doznog konverzionog faktora koncentracije radona u efektivnu dozu na osnovu različitih modela iznosi oko $15 \text{ nSv}/(\text{Bq h m}^{-3})$ (UNSCEAR, 2000).

Prema prethodnim razmatranjima, efektivna doza se na osnovu srednje koncentracije radona u vazduhu računa prema jednačini 3.1:

$$E = A_{Rn} F t_o DCF \quad (3.1)$$

gde je E efektivna doza, A_{Rn} koncentracija radona, F faktor ravnoteže, t_o vreme izlaganja i DCF dozni konverzioni faktor.

3.5 Merne tehnike

Iako su za zdravstvene efekte u najvećoj meri odgovorni kratkoživi potomci različitih izotopa radona prisutnih u vazduhu, većina mernih tehnika meri koncentraciju radona. Razlog tome je što je merenje koncentracije radona mnogo jednostavnije i jeftinije, a generalno se smatra kao dobra zamena poznavanju koncentracije radonovih potomaka. Uređaji koji mere koncentraciju radona obično imaju filter ili difuzionu barijeru koji sprečavaju ulazak radonovih potomaka u detektor (WHO, 2009).

Koncentracija radona podleže dnevnim i sezonskim varijacijama, pa su za potrebe procene rizika od izlaganja radonu najkorisnija dugotrajna merenja, u idealnom slučaju u trajanju od bar godinu dana. Dugotrajnim merenjima se smatraju i merenja od nekoliko meseci. Pored dugotrajnih, koriste se i kratkotrajna merenja u trajanju od nekoliko dana do nekoliko nedelja, koja se najčešće koriste za identifikaciju potencijalnih lokacija sa povišenom koncentracijom radona, na kojima se zatim koncentracija radona dugotrajno meri. Ovakva merenja se uglavnom sprovode u prostoriji u kojoj se očekuje najveća koncentracija radona i u najgorim uslovima (zimski period, zatvoreni prozori i vrata, smanjena ventilacija). Trenutna merenja traju nekoliko minuta ili sati, što je kratko u poređenju sa dnevnim fluktuacijama koncentracija radona. Konačno, kontinualna merenja se izvode aktivnim uređajima (Pantelić et al, 2015b; Crawford-Brown and Michel, 1987; WHO, 2009).

Za kontinualna ili trenutna merenja, najčešće se koriste aktivni uređaji – Lukasove ćelije (scintilacione ćelije), jonizacione komore ili detektori alfa-čestica u čvrstom stanju. Većina ovakvih uređaja dozvoljava da se merenja produže neograničeno, tako da se mogu koristiti i za dugotrajna merenja. Ovakvi uređaji uglavnom postižu mernu nesigurnost od oko 10 % i imaju visoku cenu nabavke i eksploatacije. Pasivne metode zasnovane na adsorpciji na aktivnom uglju su jeftine i

dozvoljavaju masovna merenja. Koriste se za kratkotrajna merenja, a merna nesigurnost se kreće od 10 % do 30 %. Elektreti se mogu koristiti za kratka ili duga merenja. U cenovnom rangi se nalaze u sredini, a po mernoj nesigurnosti se mogu meriti sa aktivnim detektorima. Konačno, najveći broj dugotrajnih merenja se izvodi pomoću trag detektora, koji su jeftini i imaju mernu nesigurnost između 10 % i 25 % (Pantelić et al, 2015b; Crawford-Brown and Michel, 1987; WHO, 2009; DurrIDGE, 2015)

3.6 Biološki efekti radona i njegovih potomaka

3.6.1 Kancer pluća

Najčešće izučavana bolest koja nastaje kao posledica izlaganja radonu i njegovim potomcima je kancer pluća. Radijaciona karcinogeneza je komplikovan višestepeni proces koji zavisi od genetskih i drugih faktora i još uvek nije potpuno objašnjena.

Rizik koji potiče od inhalacije radona je najdetaljnije izučavan na rudarima u uranijumskim rudnicima i istorijski su ovakva istraživanja najčešće korišćena za procenu rizika kod stanovništva. Ovakva izlaganja su specifična jer se dešavaju pri vrlo visokim koncentracijama radona, kakve su netipične za nadzemne stambene i radne prostore. Pored toga, rudari su izloženi i drugim karcinogenima, kao što su isparenja dizela ili arsenik, a istraživanja su pokazala da među rudarima ima i veliki broj pušača, što sve otežava procenu rizika od izlaganja radonu. Poseban problem je ekstrapolacija rizika rudara na generalno stanovništvo (BEIR VI, 1999). U 11 epidemioloških studija (8 rudnika uranijuma i tri druga rudnika), zabeleženo je povećanje smrtnosti od kancera pluća kod rudara između 0,2 % po WLM i 1 % po WLM, sa srednjom vrednošću od 0,44% po WLM (BEIR IV, 1999; WHO, 2009).

Da bi se rizik ekstrapolirao na generalno stanovništvo, BEIR VI komisija je za rizik od izlaganja radonu usvojila linearni model bez praga. Odabir modela se zasniva na tome što sa jedne strane postoje značajni dokazi da čak i jedna alfa-čestica može da izazove malignu transformaciju ćelije, a sa druge strane postoje dokazi da većina slučajeva kancera nastaje upravo od oštećenja samo jedne ćelije. Za male koncentracije radona koje su karakteristične za većinu stambenih i radnih objekata, verovatnoća da bilo koja ćelija bude pogođena više puta u toku svog života je veoma mala, što

opravdava korišćenje ovog modela. S druge strane, pri koncentracijama za koje postoji najveći broj epidemioloških studija, verovatnoća da jednu ćeliju pogodi više alfa-čestica je značajno veća, pa je za pojedine ispitivane koncentracije prosečna ćelija pogođena i preko 10 puta. Ovaj efekat se delimično kompenzuje množenjem rizika faktorom za jačinu doze (BEIR VI, 1999).

U dva modela korišćena od strane BEIR VI, kod računanja rizika od radona se ne uzimaju u obzir izlaganja nastala 5 godina pre momenta u kome se vrši procena, a za izlaganja nastala pre toga se određuju posebni težinski faktori. Rizik zavisi i od godina života i od jačine doze ili od vremena izlaganja, koji se mogu ekvivalentno koristiti, a rizik je obrnuto proporcionalan jačini doze. Pri tome se za generalno stanovništvo koristi vrednost faktora koja odgovara najmanjoj jačini doze ispitivanoj u epidemiološkim studijama rudara (BEIR VI, 1999).

Kada je u pitanju uticaj pušenja, pokazuje se da je kombinovani rizik usled izlaganja radonu i pušenja submultiplikativan, odnosno da je manji nego kada bi rizici bili pomnoženi, a veći nego kada bi bili sabrani. BEIR VI komisija je ispitivala i da li primljena doza za istu koncentraciju radona zavisi od godina starosti i pola, što je izraženo K faktorom. Pokazalo se da je K faktor vrlo blizak jedinici za žene, muškarce i decu preko 10 godina starosti, dok je malo veći od jedinice za novorođenčad (BEIR VI, 1999).

Darbi i saradnici su na osnovu 11 evropskih studija veze radona i kancera pluća kod generalnog stanovništva odredili da je srednja vrednost povećanja rizika 8,4 % na 100 Bq m⁻³ u stambenom prostoru. Međutim, ovi autori procenjuju da su uobičajene koncentracije na kojima stanovništvo boravi manje od izmerenih, pa tako povećanje rizika izraženo na 100 Bq m⁻³ uobičajene koncentracije iznosi 16 %. S obzirom na to da pušači generalno imaju mnogo veći rizik od oboljevanja od kancera pluća, povećanje od 16 % je mnogo dramatičnije za ovu populaciju. Na primer, smrtnost od kancera pluća do 75. godine za nepušače koji žive u kući sa koncentracijama radona od 0, 100 Bq m⁻³ i 800 Bq m⁻³ je 0,4 %, 0,5 % i 1 % redom, a za pušače 10 %, 12 % i 22 % (Darby et al, 2005; WHO, 2009). Kombinovani rezultati 11 severnoameričkih studija su pokazali nešto veće povećanje rizika – 11 % na 100 Bq m⁻³ (WHO, 2009). Posebno je značajan zaključak koji se može izvesti na osnovu svih pomenutih studija da pušenje i radon

deluju sinergijski i da značajan broj slučajeva raka ne bi nastao bez istovremenog izlaganja radonu i duvanskom dimu (WHO, 2009).

3.6.2 Druga oboljenja

Osim pluća, i druga tkiva i organi mogu primiti značajne doze usled udisanja radona ili kroz unošenje vode sa rastvorenim radonom. Delovi tela koji primaju značajniju dozu su koža, ostatak respiratornog sistema, koštana srž, digestivni sistem i bubrezi. Ipak, najveći broj studija nije uspeo da dokaže vezu između povećane koncentracije radona i oboljenja, osim kancera pluća. Tako je u studiji na češkim rudarima pokazana pozitivna korelacija između leukemije i povećane koncentracije radona, ali sa druge strane, istraživanja sprovedena na rudarima pobrojana u izveštaju BEIR VI komiteta nisu pokazala povećanje rizika od drugih kancera. Takođe nije dokazano povećanje rizika od srčanih oboljenja usled izlaganja radonu, uprkos većem broju izvršenih studija. Sve to navodi na zaključak da je rizik od kancera pluća daleko najznačajniji zdravstveni efekat izlaganja radonu (WHO, 2009).

3.7 Regulatorna

3.7.1 Istorijski pregled

Propisi koji se tiču radona postoje duže od 70 godina. U ovom odeljku će biti navedeni pojedini propisi koji su bili značajni u svoje vreme na svetskom ili evropskom nivou. Nivoi koncentracije radona su izraženi kao EEC ili kao koncentracija radona bez potomaka ("koncentracija radonskog gasa"), uglavnom uz pretpostavljen faktor ravnoteže.

Prva preporuka u vezi sa radonom je donešena u Sjedinjenim Američkim Državama (SAD) 1941. godine i odnosila se na profesionalno izložena lica. Maksimalna dozvoljena koncentracija je bila 370 Bq/m^3 EEC za radnu nedelju od 40 h. Prvi međunarodni dokument je donela međunarodna komisija za zaštitu od zračenja (ICRP) 1953. godine, u kome je odredila maksimalnu dozvoljenu koncentraciju od 3700 Bq/m^3 EEC za izlaganje od 168 h nedeljno, a 1956. je dodata i maksimalna dozvoljena koncentracija od 11100 Bq/m^3 za izlaganje od 40 h nedeljno (Akerblom, 1999).

ICRP je 1983. doneo preporuku koja se tiče stambenih objekata, u kojoj se kaže da je postavljanje univerzalno primenljivog interventnog nivoa nije korisno, ali da bi remedijacija, ukoliko nije previše složena, mogla da se sprovodi već na nivou od 200 Bq/m^3 EEC, što odgovara efektivnom doznom ekvivalentu od oko 20 mSv godišnje. Takođe se preporučuje državama da uvedu ispitni nivo, odnosno nivo koncentracije radona za koji je potrebno sprovoditi dalja ispitivanja (Akerblom, 1999).

U regulativi Evropske Unije, prva preporuka je doneta 1990. godine u kojoj su postavljeni referentni nivoi od 400 Bq/m^3 EEC za postojeće zgrade i 200 Bq/m^3 za nove zgrade, koji se odnose na prosečnu godišnju koncentraciju. Ukoliko koncentracija radona prelazi referentni nivo, razmatrala bi se remedijacija (Akerblom, 1999).

Godine 1994, objavljena je ICRP publikacija 65. U ovoj publikaciji je pisalo da je remedijacija skoro uvek opravdana ako godišnja efektivna doza od radona prelazi 10 mSv. U stambenim objektima, to odgovara prosečnoj godišnjoj koncentraciji od 600 Bq/m^3 (uz pretpostavljen faktor ravnoteže 0,4). Za jednostavnije intervencije, treba razmatrati i trostruko niže koncentracije radona. U radnom prostoru, preporučuje se da se za lica koja se ne smatraju profesionalno izloženim primene isti nivoi kao za stanovništvo, pri čemu je faktor zadržavanja u radnom prostoru manji, pa su odgovarajuće godišnje koncentracije od 500 Bq/m^3 do 1500 Bq/m^3 (ICRP, 1994; Akerblom, 1999).

3.7.2 Presek stanja u Evropi iz 1997. godine kada je u pitanju radonska regulativa

U istraživanju koje je sprovedeno od 1997. do 1998. godine, obuhvaćeno je 32 evropske zemlje. Pitanja su se ticala radonske regulative, a prema rezultatima istraživanja, veći broj evropskih zemalja van Evropske unije nego u Evropskoj uniji ima obavezujuće referentne nivoe (Akerblom, 1999).

Istraživanje je pokazalo da skoro trećina zemalja nema referentni nivo za radon za stambeni prostor, trećina ima referentni nivo, ali je u slučaju veće koncentracije data samo preporuka, dok je u osam zemalja akcija obavezna (u Evropskoj uniji je akcija obavezna samo u Švedskoj od 15 anketiranih zemalja). Najčešće korišćeni referentni nivo za stambene objekte je 400 Bq/m^3 , a minimalna i maksimalna vrednost su 150 Bq/m^3 i 1000 Bq/m^3 (Akerblom, 1999).

Kada je u pitanju radni prostor, 14 evropskih zemalja od 32 je definisalo referentni nivo, dok je preduzimanje akcije obavezno u slučaju prekoračivanja referentnog nivoa u 9 zemalja. Raspon referentnih nivoa je od 200 Bq/m³ do 3000 Bq/m³ (Akerblom, 1999).

Maksimalna koncentracija radona u pijaćoj vodi je ograničena u 8 od 32 anketirane evropske zemlje, pri čemu se maksimalna dozvoljena koncentracija kreće od 50 Bq/l do 500 Bq/l (Akerblom, 1999).

3.7.3 EURATOM direktiva iz 2013

Direktiva Evropskog saveta iz 2013 godine koja uspostavlja osnovne sigurnosne standarde u zaštiti od zračenja pominje reč radon 50 puta i toron 2 puta, a direktiva se odnosi na zemlje članice Evropske unije. U uvodnom tekstu je navedeno da prema novim istraživanjima produženo izlaganje koncentraciji radona od 100 Bq/m³ povećava rizik od karcinoma pluća, a da izlaganje visokim koncentracijama radona u kombinaciji sa pušenjem nosi značajno veći rizik od tih faktora pojedinačno (European council, 2014).

Referentni nivo srednje godišnje koncentracije radona za radne prostorije u svakoj državi članici ne sme biti viši od 300 Bq/m³, osim u slučaju specifičnih nacionalnih okolnosti. Ukoliko država članica propiše referentni nivo viši od 300 Bq/m³, o tome je neophodno obavestiti Evropsku komisiju. Takođe, ako postoji mogućnost da radnik u radnom prostoru primi godišnju efektivnu dozu veću od 6 mSv, takvo izlaganje se smatra planiranim izlaganjem, a suma doza od svih planiranih izlaganja, uključujući radon, ne sme da pređe graničnu dozu za odgovarajuću kategoriju lica (European council, 2014).

Referentni nivo za stambene objekte takođe ne sme biti viši od 300 Bq/m³, s tim što se u slučaju većih koncentracija radona stanovništvo savetuje da sprovede tehničke ili druge mere u cilju smanjenja koncentracije. Takođe se traži od država članica da omoguće dostupnost informacija o izlaganju radonu, zdravstvenom riziku i merama koje se sprovode za remedijaciju (European council, 2014).

Značajno u direktivi je i definisanje radonskog akcionog plana, koji između ostalog predviđa i identifikaciju područja sa povećanom koncentracijom radona. U takvim područjima bi se od pravnih subjekata zahtevalo da sprovedu posebne mere

(merenje koncentracije radona u svim prizemnim i podrumskim radnim prostorijama, obuke, preventivne mere itd.), što može imati ekonomske i političke posledice (European council, 2014).

3.7.4 Regulatorika u Srbiji

U Srbiji je zaštita od radona regulisana Zakonom o zaštiti od zračenja (Službeni glasnik RS, 2009, 2012) i Pravilnikom o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima (Službeni glasnik RS, 2011). Prema pravilniku, interventni nivo (koji predstavlja vrednost neke radijacione veličine iznad koje se moraju preduzeti mere za sanaciju vanrednog događaja i smanjenje nivoa izlaganja) za radon se posebno propisuje za radno mesto i stambene objekte. Na radnom mestu, interventni nivo je srednja godišnja koncentracija od 1000 Bq/m³ Rn²²² u vazduhu. U novoizgrađenim stambenim objektima, interventni nivo iznosi 200 Bq/m³, a u postojećim 400 Bq/m³ (Službeni glasnik RS, 2011).

Pravilnikom o utvrđivanju programa sistematskog ispitivanja radioaktivnosti u životnoj sredini je predviđeno sistematsko ispitivanje koncentracije radona u zatvorenom prostoru, i to u ne manje od 50 stambenih objekata, škola i obdaništa, u postojećim i novim objektima (Službeni glasnik RS, 2010).

4 Ispitivanje koncentracije radona pomoću ugljenih filtera

Naziv ugljeni filter se odnosi na aktivni ugalj zatvoren u metalno kućište, sa odgovarajućom zaštitom od mehaničkih oštećenja i mogućnošću hermetičkog zatvaranja. Pored pomenutog naziva, u literaturi se često sreće i naziv ugljeni kanister, a u daljem tekstu će oba naziva biti korišćena sa istim značenjem.

Metoda ispitivanja koncentracije radona pomoću ugljenih filtera je pasivna, jeftina, jednostavna i relativno brza metoda. Pasivnost se zasniva u činjenici da na mestu uzorkovanja radona, odnosno izlaganja kanistera, nije potrebno koristiti nikakav izvor energije, ni za kanistere ni za druge uređaje. Metoda je jeftina jer su ugljeni kanisteri jeftini i mogu se koristiti više puta, moguće ih je slati poštom korisnicima, a na mestu izlaganja se ne prate niti kontrolišu ambijentalni uslovi. Sve navedeno uzrokuje mali utrošak sredstava i radnih sati. Najskuplji deo opreme predstavlja gama-spektrometar koji je neophodno koristiti za merenje izloženih kanistera, ali je moguće koristiti relativno jeftine natrijum-jodidne (NaI) spektrometre i jednokanalne analizatore. Samo izlaganje kanistera je veoma jednostavno i obično kanistere izlažu laici, na osnovu uputstva dobijenog od strane laboratorije za ispitivanje, koje tipično ne prelazi obim jedne A4 strane. Merenje koncentracije radona i određivanje efikasnosti gama-spektrometra su takođe jednostavni, a tipično merenje traje pola sata, uz dodatnih pola sata potrebnih za određivanje fona. S druge strane, izrađivanje kalibracionih krivih za radonske kanistere predstavlja dugotrajan, složen i skup proces, koji najčešće obavljaju proizvođači umesto krajnjih korisnika – laboratorija za ispitivanje. Konačno, ova metoda je značajno sporija od takozvanih trenutnih metoda, ali takođe i značajno brža od većine pasivnih metoda (Pantelić et al, 2015b).

Osnovni deo ugljenog kanistera je aktivni ugalj koji se koristi zbog svog visokog afiniteta prema radonu. Adsorpciju radona na uglju je predložio Ernest Raderford još 1906. godine, što je Artur Iv primenio već 1907. godine, a ugalj je zatim merio u elektroskopu. Ubrzo potom su i drugi naučnici počeli da koriste slične metode (George, 2008). Ugljene kanistere slične konstrukcije poput savremenih kanistera je prvi koristio Ričard Kauntes sedamdesetih godina dvadesetog veka. Kauntes je kanistere napravio od filtera za vojne gas maske, a koristio ih je za merenje fluksa radona iz zemljišta (Countess, 1976). Metoda ulazi u široku upotrebu posle radova Džordža, Pričarda i

Koena osamdesetih godina (Cohen and Cohen, 1983; George, 1984; Cohen and Nason, 1986; Prichard and Mariën, 1985) i objavljivanja metode EPA 520 (Gray and Windham, 1987), po kojoj i danas radi veliki broj laboratorija. Samo u Srbiji postoje tri laboratorije koje su akreditovane za merenja koncentracije radona po EPA 520 metodi (Pantelić et al, 2013, 2015b).

Pored pomenute metode EPA 520, postoje i druge metode merenja koncentracije radona pomoću ugljenih kanistera, pri čemu je izmenjena konstrukcija ugljenog kanistera ili način merenja količine adsorbovanog radona.

4.1 Metoda EPA 520

Iako su određeni rezultati koji su predstavljeni u ovoj tezi dobijeni korišćenjem drugih metoda, najveći broj rezultata je dobijen upravo metodom EPA 520 i njoj će biti posvećeno najviše prostora. Ova metoda je zasnovana na dva dokumenta, koji će u daljem tekstu biti nazivani EPA metoda (Gray and Windham, 1987) i dodatak EPA metode (EPA, 1989). U EPA metodi je detaljno objašnjen princip kalibracije ugljenih kanistera, konstrukcija kanistera, princip merenja koncentracije radona, opisan je gama-spektrometrijski sistem i dati su rezultati kalibracije kanistera u statičnoj atmosferi. U međuvremenu, do objavljivanja dodatka EPA metode, ustanovljeno je da su rezultati merenja dobijeni pomoću kalibracije u statičnoj atmosferi veći nego konvencionalno tačna srednja vrednost koncentracije radona. Zbog toga je izvršena nova kalibracija u radonskoj komori u kojoj su simulirana kretanja vazduha tipična za zatvoreni prostor. U dodatku metode, objavljene su ove kalibracione krive. Prema tome, kada se u daljem tekstu govori da se radi prema dodatku EPA metode, smatraće se da se meri prema proceduri opisanoj u EPA metodi (Gray and Windham, 1987), a da se koriste krive iz dodatka (EPA, 1989). Pomoću metode EPA 520 nije moguće izmeriti niti proceniti EEC ili koncentraciju radonovih potomaka, već samo koncentraciju radona.

Ova metoda se zasniva na sledećem principu: vazduh iz okruženja pasivno difunduje kroz ugljeni filter, pri čemu dolazi do adsorpcije radona na aktivnom uglju. Količina adsorbovanog radona će imati složenu zavisnost od koncentracije radona u vazduhu i drugih parametara, među kojima su najvažniji vlažnost vazduha i vreme izlaganja kanistera. Tri sata po zatvaranju kanistera, radon će postići radioaktivnu

ravnotežu sa svojim potomcima koji imaju intenzivnu gama-emisiju, posle čega se kanister meri na gama-spektrometru. Ukoliko se izbegnu interferencije u spektru, moguće je koristiti i jednokanalni analizator, pri čemu se diskriminanta podešava tako da obuhvata najintenzivnije gama-linije radonovih potomaka. Broj odbroja u spektru je srazmeran sa adsorbovanom aktivnošću radona u ugljenom filteru, koja se opet može dovesti u vezu sa koncentracijom radona u vazduhu (Gray and Windham, 1987; Pantelić et al, 2015b).

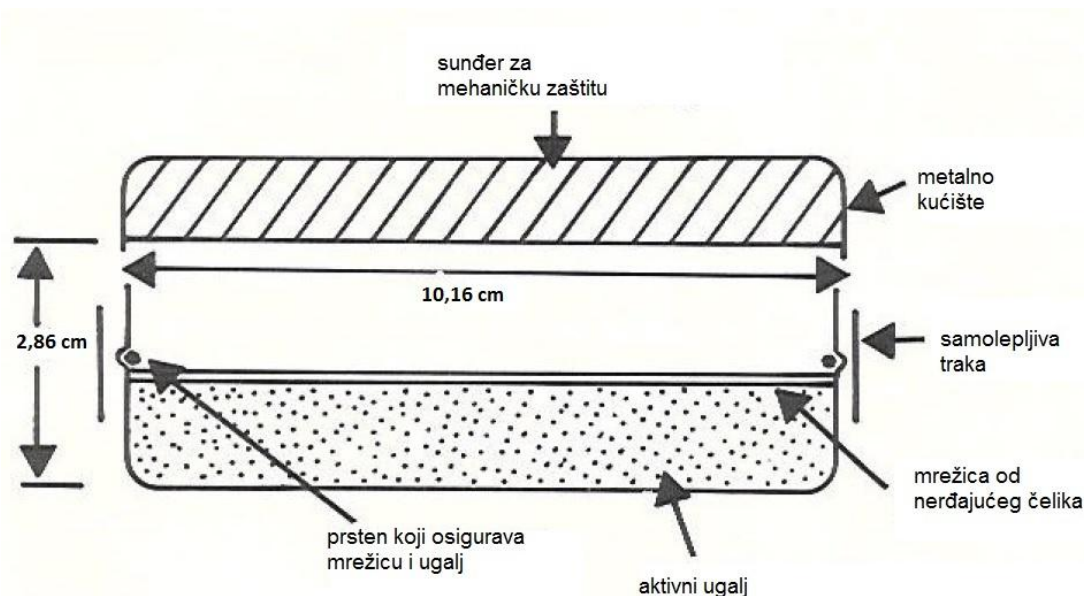
Na aktivnom uglju se pored radona adsorbuje i toron i drugi izotopi radona (ukoliko su prisutni u vazduhu), ali se ipak smatra da je metoda selektivna za radon. Kao što je prikazano u glavi 3, prosečna koncentracija torona u vazduhu je višestruko manja nego koncentracija radona, a EEC manji za još jedan red veličine. Zbog toga je u najvećem broju slučajeva opravdano zanemariti uticaj drugih izotopa radona i njihovih potomaka.

4.1.1 Konstrukcija ugljenog kanistera

Ugljeni kanisteri koji se koriste u EPA 520 metodi su otvoreni (open faced na engleskom), što će biti naglašeno samo kada je potrebno napraviti razliku između ovih kanistera i kanistera sa difuzionom barijerom. U primeni ove metode je moguće koristiti različite konstrukcije kanistera, ali primena kalibracionih krivih iz EPA metode i dodatka je uslovljena korišćenjem identičnih kanistera sa istim tipom uglja. U nastavku odeljka će biti opisani baš takvi kanisteri, kakvi se koriste i u INN Vinča.

Kanister je napravljen od aluminijuma i prikazan je na slici 4.1. Zapremina dela kanistera u kome se nalazi aktivni ugalj iznosi 232 cm^3 , a oblika je valjka prečnika 10,16 cm i visine 2,86 cm. Ukupne dimenzije kanistera su nešto veće – 10,4 cm prečnik i 3,4 cm visina. U kanisteru se nalazi $70 \text{ g} \pm 1 \text{ g}$ aktivnog uglja proizvođača Calgon Corporation i tipa PCB (6 x 16 meš) ili ekvivalentnog uglja, dok je ukupna masa kanistera oko 160 g. Ukupna aktivnost uglja ne sme prelaziti 3,7 Bq/g, ne računajući ^{40}K koji ne izaziva interferencije u gama-spektrometrijskim merenjima. Ugalj je prekriven metalnom mrežicom sa površinom otvora između 30 % i 50 %, da bi se sprečilo prosipanje, a omogućila difuzija vazduha. Mrežica je obezbeđena metalnim prstenom. Poklopac kanistera je takođe napravljen od aluminijuma i postavljen je

sunderom, zbog mehaničke zaštite. Konačno, kada je kanister zatvoren, spoj poklopca i kanistera je oblepljen samolepljivom trakom dugačkom 33 cm.



Slika 4.1 Skica otvorenog ugljenog kanistera (ilustracija preuzeta iz reference Gray and Windham, 1987)

4.1.2 Princip EPA metode i jednačina za određivanje koncentracije radona

Princip na kome je uspostavljena EPA metoda se može predstaviti jednačinom 4.1, a dobro poznavanje svih veličina sa desne strane jednačine je kritično za primenu metode.

$$A_{Rn} = \frac{N}{T_s T_e C_f D_f E_f} \quad (4.1)$$

Veličina sa leve strane, A_{Rn} , predstavlja koncentraciju radona u vazduhu i izražava se u Bq/m^3 , N je neto odbroj u spektru ugljenog kanistera, T_s je vreme sakupljanja gama-spektra, T_e je vreme izlaganja kanistera, C_f je kalibracioni faktor kanistera, D_f je korekcija na vreme poluraspada adsorbovanog radona i E_f efikasnost gama-spektrometra. U jednačini 4.1 ne figurišu promena mase kanistera i vlažnost vazduha, već su ovi parametri uzeti u obzir posredstvom kalibracionog faktora kanistera.

Da bi se odredilo N , prvo je neophodno odrediti spektralni region od interesa (ROI) za metodu EPA 520. Na slici 2.1 su prikazani radonovi potomci, od kojih su

^{218}Po i ^{214}Po alfa-emiteri i imaju izrazito slabe fotonske emisije, ^{210}Pb ima dugo vreme poluraspada (22,3 godine) i intenzivnu gama-emisiju na 46,5 keV i, konačno, ^{214}Pb i ^{214}Bi imaju zgodno vreme poluraspada za primenu EPA metode (ispod pola sata) i intenzivnu gama-emisiju. Jasno je da su oba izotopa polonijuma nepodobna za ovu metodu. Vreme poluraspada ^{210}Pb je predugo, pa ne može doći do uspostavljanja radioaktivne ravnoteže sa radonom. Zbog toga se za određivanje koncentracije radona koriste gama-linije preostala dva izotopa, odnosno linije ^{214}Pb na 295 i 352 keV i ^{214}Bi na 609 keV. ROI je moguće definisati na više načina. Ipak, najjednostavniji i najčešće korišćeni način je određivanje jednog kontinualnog ROI koji obuhvata sve tri linije, a takođe je moguće i korišćenje jednokanalnog analizatora, što smanjuje troškove.

Kada je određen ROI, potrebno je snimiti spektar izloženog ugljenog kanistera, pri čemu se ukupan odbroj u ROI označava sa G . Zatim je potrebno snimiti spektar fonskog kanistera, pri čemu se ukupan odbroj u ROI označava sa B . Fonski kanister je identičan drugim ugljenim kanisterima, sa tom razlikom što se nikada ne izlaže atmosferi. Prema tome, odbroj u spektru fonskog kanistera potiče od prirodnih radionuklida koji se nalaze u uglju uvećanom za prirodni fon koji potiče od kosmičkog zračenja, zračenja iz okoline spektrometarskog sistema i samog spektrometra. Neto odbroj, N , predstavlja razliku G i B (Gray and Windham, 1987).

Vreme sakupljanja gama-spektra, T_s , zadaje operater, a ono je tipično 30 minuta. U principu, vremena sakupljanja fonskog spektra, spektra ugljenih kanistera i spektara koji se koriste za određivanje efikasnosti detektora ne moraju da budu ista. Međutim, iz praktičnih razloga, obično je vreme sakupljanja uvek isto.

Vreme izlaganja kanistera, T_e , izražava se u minutima i računa se kao razlika između vremena otvaranja i vremena zatvaranja kanistera. Ako se koriste EPA kalibracione krive, najpraktičnije je odabrati vreme izlaganja od 2880 minuta (48 sati), a dozvoljeno je da bude u intervalu od 1440 minuta do 8640 minuta. Merna nesigurnost određivanja kalibracionog faktora raste sa udaljavanjem vremena izlaganja od 2880 minuta, pogotovo ukoliko je vreme izlaganja izvan preporučenog opsega (duže od 6 dana) (Gray and Windham, 1987).

Kalibracioni faktor, C_f , predstavlja karakteristiku ugljenog kanistera i prvenstveno zavisi od tipa uglja i konstrukcije kanistera. Kalibracioni faktor takođe zavisi i od vlažnosti vazduha, vremena izlaganja, temperature itd., ali se prema EPA 520

metodi uzimaju u obzir samo vlažnost vazduha i vreme izlaganja (Gray and Windham, 1987; Ronca-Battista and Gray, 1988).

Problematika određivanja kalibracionog faktora je drugačija za laboratoriju za ispitivanje i za laboratoriju koja obavlja kalibraciju u radonskoj komori (o čemu će biti više reči u odeljku 4.1.1). Laboratorija za ispitivanje koristi gotove kalibracione krive sa kojih očitava vrednosti kalibracionog faktora za 48 sati, $C_{f,48}$, faktora podešavanja za 48 sati, $A_{f,48}$, kao i faktora podešavanja za vreme izlaganja kanistera, $A_{f,t}$. Obično postoje tri A_f krive za tri različite vlažnosti vazduha, pa je neophodno odabrati odgovarajuću krivu. Moguće je koristiti i kalibracione jednačine, umesto krivih,. Konačno, kalibracioni faktor se određuje pomoću jednačine 4.2 (Gray and Windham, 1987):

$$C_f = C_{f,48} \frac{A_{f,T}}{A_{f,48}} \quad (4.2)$$

Po zatvaranju kanistera dolazi do radioaktivnog raspada ^{222}Rn sa vremenom poluraspada od 3,8 dana. Pošto je radon u radioaktivnoj ravnoteži sa svojim potomcima 3 sata po zatvaranju kanistera, i aktivnost potomaka opada sa istim vremenom poluraspada, što dalje utiče na odbroj u spektru kanistera. Korekcija na vreme poluraspada radona se obavlja pomoću faktora D_f koji se računa prema jednačini 4.3 (Gray and Windham, 1987):

$$D_f = e^{\frac{\ln(2)T_r}{t_{1/2,Rn}}} \quad (4.3)$$

U jednačini 4.3, T_r je vreme raspada radona i predstavlja vreme od sredine izlaganja kanistera do početka merenja. Vreme raspada se računa prema jednačini 4.4, gde je T_{pi} vreme početka izlaganja, T_{ki} vreme kraja izlaganja i T_{pm} vreme početka merenja.

$$T_r = \frac{(T_{ki} - T_{pi})}{2} + T_{pm} - T_{ki} = T_{pm} - \frac{(T_{ki} + T_{pi})}{2} \quad (4.4)$$

Da bi se odredilo E_f , potrebno je koristiti standarde koji su napravljeni u istoj geometriji i matriksu kao radonski kanisteri, ali sadrže poznatu koncentraciju ^{226}Ra . Radijum je veoma slab gama-emiter, pa ne izaziva interferencije u spektru. Njegovo vreme poluraspada je 1600 godina, pa praktično standardni kanister nema rok trajanja. Standardni kanister mora biti zapečaćen da nastali radon ne bi difundovao u okolinu, a radioaktivna ravnoteža između radijuma i radona se uspostavlja za 30 dana. Neto odbroj u spektru standardnog kanistera, N_s , se određuje na isti način kao i za obične kanistere.

Vreme sakupljanja spektra je takođe 30 minuta i identično označeno. Aktivnost radijuma u kanisteru je označena sa A_s . Konačno, efikasnost se određuje prema jednačini 4.5

$$E_f = \frac{G_s - B_s}{t_s * A_s} = \frac{N_s}{t_s * A_s} \quad (4.5)$$

4.1.3 Kalibracija ugljenih filtera i korišćenje EPA kalibracionih krivih

Kalibracija ugljenih filtera u EPA metodi (Gray and Windham, 1987; EPA, 1989) je slična kalibraciji koju je opisao Džordž (George, 1984). Kanisteri se izlažu u radonskoj komori u kojoj se kontinualno prati vlažnost vazduha, temperatura i koncentracija radona. Izlaganje se vrši pri različitim vlažnostima vazduha (u EPA metodi 20 %, 50 % i 80 %). U EPA metodi su kanisteri izlagani samo na temperaturi od 21 °C, dok je Džordž izlagao kanistere na različitim temperaturama i nije zabeležio značajne razlike kalibracionih faktora. Koncentracija radona je konstantna tokom kalibracije.

Za određene uslove vlažnosti i koncentracije radona, izlagan je veći broj kanistera i zatim je na svakih 24 sata 5 kanistera zatvarano i mereno. Proces je ponavljan za različite vlažnosti vazduha i kalibracioni faktori su određeni za svaku vlažnost vazduha i svako vreme izlaganja (Gray and Windham, 1987).

Na osnovu kalibracionih faktora za 48 sati i promene mase izlaganih kanistera (Δm) tokom kalibracije, određena je kriva kalibracionog faktora – C_f kriva, to jest kriva zavisnosti C_f od Δm . Za svako merenje u laboratoriji za ispitivanje, $C_{f,48}$ se određuje sa ove krive na osnovu izmerene promene mase kanistera (Gray and Windham, 1987).

Krive faktora podešavanja – A_f krive, su određene na osnovu vrednosti kalibracionih faktora za vremena izlaganja različita od 48 sati. Vrednosti A_f su odabrane tako da $A_{f,48}$ bude jednako odgovarajućem $C_{f,48}$, a da vrednosti $A_{f,t}$ budu takve da se njihovom zamenom u jednačinu 4.2 dobijaju odgovarajuće vrednosti kalibracionog faktora za dato vreme izlaganja (Gray and Windham, 1987).

U EPA metodi postoje tri A_f krive, za vlažnosti vazduha od 20 %, 50 % i 80 %. Koja će se kriva koristiti za ispitivanje koncentracije radona, zavisice od promene mase kanistera, i to se koristi kriva za 20 % ako je promena mase manja od 1 g, za 50 % ako je promena mase između 1 g i 4 g i za 80 %, ako je promena mase veća od 4 g.

Kriterijum za odabir krive je jasniji ako se posmatraju promene mase kanistera za različite vlažnosti vazduha i različita vremena izlaganja koje su objavili Blu i Džarzemba, a koji odgovaraju EPA kanisterima (Blue and Jarzemba, 1992). Tako promena mase kanistera za vlažnost od 20 % uvek ima malu negativnu vrednost, za vlažnost od 50 % se kreće u opsegu od 0,7 g do 1,5 g, a za 80 % prelazi 4 g već za vreme izlaganja od 24 h. Konačno, kada je odabrana kriva, $A_{f,48}$ je očitana vrednost A_f za 48 sati, a $A_{f,t}$ očitana vrednost za vreme izlaganja kanistera (Gray and Windham, 1987).

Kanisteri su kalibrisani i u statičnoj atmosferi (Gray and Windham, 1987), kao i u komori u kojoj je simulirano kretanje vazduha tipično za zatvoreni prostor (EPA, 1989).

4.1.4 Granica detekcije

U metodi EPA 520 je definisana granica detekcije (*MDA*), odnosno minimalna koncentracija radona koju je moguće detektovati. Granica detekcije prvenstveno zavisi od fona gama-spektrometra i vremena proteklog od zatvaranja kanistera, a zatim i od drugih faktora prisutnih u jednačini 4.1. Način računanja granice detekcije je prikazan jednačinom 4.6, gde oznake imaju isto značenje kao u prethodnom tekstu (Gray and Windham, 1987).

$$MDA = \frac{3\sqrt{B}}{T_s T_i C_f D_f E_f} \quad (4.6)$$

Ako je rezultat merenja koncentracije radona ispod *MDA*, tada se kao rezultat merenja daje *MDA*.

4.1.5 Postavljanje ugljenih kanistera i uputstvo za korisnike

Pri postavljanju kanistera, potrebno je obezbediti da uslovi budu što sličniji uslovima kalibracije kanistera. Takođe je poželjno kanister postaviti u delu prostorije ili objekta gde se očekuje najveća koncentracija radona, da bi se odredio najgori scenario, a iz istog razloga je poželjno smanjiti otvaranje prozora i vrata tokom izlaganja. S obzirom na to da kanistere najčešće postavljaju laici, neophodno je uz svaki kanister dostaviti uputstvo za postavljanje.

Kanister se postavlja u vazduhu koji ljudi udišu, pa je neophodno da bude udaljen najmanje 60 cm od poda i zidova (u uputstvu izrađenom u INN Vinča je preporučena metar) i da ne bude zatvoren u ormar ili slične objekte. Za rutinska merenja, kanister se postavlja u podrumsku prostoriju ili u prizemlje, jer se u tim prostorijama očekuju najviše koncentracije radona. Kanister ne sme da bude na mestu na kome je često promaja, blizu otvorenog prozora, izvora toplote ili klima uređaja. Važno je da se spreči kapanje vode ili druge tečnosti u kanister.

Preporučeno je da kanister bude izložen tačno 48 sati, pri čemu korisnik mora da zapiše vreme otvaranja i zatvaranja kanistera. Pored toga, neophodno je sačuvati sve delove samolepljive trake ukoliko dođe do njenog kidanja, jer se promena mase koristi za korekciju na vlažnost vazduha.

4.2 Druge metode zasnovane na ugljenim filterima

S obzirom na nedostatke metode EPA 520 (diskutovano u glavi 12), ova metoda se ne smatra pravom integralnom metodom (Pantelić et al 2015b; George, 1984). Zbog toga pojedini autori smatraju da je najveća korist ove metode za kampanje kada je potrebno izvršiti veoma veliki broj merenja radi identifikacije lokacija sa povišenom koncentracijom radona, posle čega se vrše dodatna merenja drugim metodama (De Luca and Mancini, 1991). Međutim, kao što je pokazano u glavama 9 i 11, čestom zamenom ugljenih kanistera, dobijaju se srednje vrednosti koje ne pokazuju značajne razlike u odnosu na trag detektore.

Tokom godina, predloženo je više modifikacija metode u cilju produženja vremena integracije, smanjenja uticaja vlažnosti vazduha i temperature, kao i smanjenja povratne difuzije radona. Jedna takva modifikacija je korišćenje kanistera sa difuzionom barijerom. Ovakvo rešenje su predložili Koen i Nejson još pre nego što je objavljena EPA metoda (Cohen and Nason, 1986), a u ispitivanju optimalne konstrukcije kanistera je korišćen i desikant, zbog smanjenja uticaja vodene pare. Drugo rešenje su predložili Džordž i Veber (George and Weber, 1990), a u njihovoj konstrukciji su korišćene najlonske difuzione barijere. Ovakvi kanisteri omogućavaju manju zavisnost kalibracionog faktora od promena koncentracije radona i vlažnosti vazduha, ali je njihova osetljivost manja, a granica detekcije veća nego kod kanistera korišćenih u EPA

520 metodi. EPA je 1990. godine objavila proceduru merenja koncentracije radona pomoću kanistera sa difuzionom barijerom (EPA, 1990).

Druga modifikacija se odnosi na zamenu gama-spektrometrije nekom drugom metodom. Pričard i Marijen su modifikovali metod tako što je ugalj iz ugljenih kanistera meren na tečnim scintilacionim detektorima (Prichard and Mariën, 1985), što omogućava korišćenje manjih masa uglja, ali sprečava ponovno korišćenje kanistera. Ovakvi kanisteri su se pokazali posebno dobrim u uslovima visoke vlažnosti vazduha (Iimoto et al, 2005)

Van Dejnsse i saradnici su koristili aktivni ugalj u kombinaciji sa trag detektorima da bi dobili lični radonski dozimetar koji bi imao povećanu osetljivost zbog korišćenja aktivnog uglja i bio integralni detektor zbog korišćenja trag detektora (Van Deynse et al, 1999). Slično rešenje su koristili i Šutej i saradnici (Šutej et al, 1991).

4.3 Primena ugljenih filtera u praksi i literaturi

Ugljeni kanisteri su veoma često korišćeni za merenje koncentracije radona (WHO, 2009), bilo da je reč o merenjima sa otvorenim ugljenim kanisterima, kanisterima sa difuzionom barijerom (George, 2000) ili o merenjima na tečnom scintilatoru (Iimoto et al, 2005).

Otvoreni ugljeni kanisteri su prvi put korišćeni za merenje fluksa radona iz zemljišta (Countess, 1976), a modifikovana tehnika se i dalje koristi u tu svrhu (Alharbi and Akber, 2014; Tsapalov et al, 2016). Od osamdesetih godina se ugljeni kanisteri masovno koriste za merenje koncentracije radona u kućama i radnim prostorijama, kako u državnim, tako i u privatnim kampanjama. Pored otvorenih kanistera, veliki broj laboratorija koristi i kanistere sa difuzionom barijerom. Dugogodišnja praksa u Sjedinjenim Američkim Državama je pokazala da obe metode daju rezultate koji se razlikuju za nekoliko procenata od aktivnih merila, čak i u uslovima visoke vlažnosti (za otvorene kanistere do 70 %) i desetostrukih promena koncentracije radona (George, 2000).

Merenja u školama i stambenim objektima pomoću ugljenih kanistera za različite potrebe (zakonska metrologija, izrada radonskih mapa, određivanje sezonskih korekcionih faktora, određivanje rizičnih lokacija) su sprovedena i u Slovačkoj,

Mađarskoj i Poljskoj (Mullerova et al, 2016), Srbiji (Pantelić et al, 2015b; Forkapic et al, 2016), Engleskoj (Denman et al, 2016; Denman et al, 2007), Kataru (Arafa and El-Karadawi, 1997), Egiptu (Arafa et al, 2002), Sjedinjenim Američkim Državama (Kitto, 2014), Italiji (De Luca and Mancini, 1991), Španiji (Tondeur et al, 2011) i drugim državama.

Nekoliko autora je poredilo EPA metodu sa drugim mernim tehnikama. Tako su Kortina i saradnici poredili rezultate dobijene metodom EPA 520 i trag detektorima i zaključili da postoji visok stepen korelacije. Pored toga, zaključili su da vreme izlaganja ugljenog kanistera treba da bude umnožak 24 h, zbog dnevnih varijacija koncentracije radona (Cortina et al, 2008). Gervino i saradnici su merili koncentraciju radona pomoću ugljenih kanistera u okolini aktivnog vulkana i zaključili da visoka koncentracija vodene pare, ali i ugljen dioksida, izaziva značajno potcenjivanje koncentracije radona (30 % - 40 %) u odnosu na elektretsku jonsku komoru (Gervino et al, 2004).

Neman i saradnici (Neman et al, 2005) su poredili ugljene kanistere i trag detektore. Određeni broj rezultata pojedinačnih merenja ugljenim kanisterima se značajno razlikovao od rezultata dobijenih korišćenjem trag detektora, dok je slaganje srednjih vrednosti bilo značajno bolje. Objašnjenje tog nalaza je u činjenici da je koncentracija radona podložna dnevnim i drugim kratkovremenskim varijacijama, a vreme merenja ugljenim kanisterima je relativno kratko. Zbog toga su autori istraživanja preporučili da se u studijama sa ugljenim kanisterima vrše ponovljena merenja.

Arafa i saradnici (Arafa et al, 2005) su poredili otvorene ugljene kanistere prečnika 10 cm, prečnika 7 cm, kao i kanistere sa difuzionom barijerom sa aktivnim monitorom AB-5. Kanisteri sa difuzionom barijerom su pokazali manju zavisnost od temperature i promene koncentracije radona. Otvoreni kanisteri su potcenjivali koncentraciju radona za 20 % u uslovima visoke vlažnosti vazduha (oko 70 %) i trostruke promene koncentracije radona u odnosu na aktivni monitor, dok su kanisteri sa difuzionom barijerom u istim uslovima potcenili koncentraciju radona za samo 4 %. Međutim, u uslovima srednje vlažnosti vazduha (50 %), otvoreni kanisteri su pokazali iste rezultate kao i kanisteri sa difuzionom barijerom, odnosno potcenili su koncentraciju radona za samo 5 %. Istraživanje je takođe pokazalo da kretanje vazduha može promeniti vrednosti kalibracionog faktora otvorenih kanistera i do 15 %. Konačno, kalibracijom otvorenih kanistera prečnika 10 cm u istim uslovima kao pri

EPA kalibraciji, dobijene su vrednosti kalibracionih faktora koje se odlično slažu sa EPA kalibracionim faktorima iz metode i dodatka.

Arafa je sa saradnicima vršila merenja u Kataru, pri čemu su srednje koncentracije radona bile u opsegu od 11 Bq/m^3 do 23 Bq/m^3 (Arafa and El-Karadawi, 1997). Zbog tako niskih koncentracija, koje su često ispod granice detekcije metode EPA 520, merenja su vršena po optimizovanoj metodologiji – korišćena su dva scintilaciona detektora, a optimalno vreme izlaganja je bilo 4 dana (Arafa et al, 1994).

Više grupa autora je razvijalo matematičke modele adsorpcije radona na aktivnom uglju. Tako su Nikezić, Urošević i saradnici analitički rešili difuzione jednačine za uslove konstantne koncentracije radona i izvršili poređenje sa simulacijom zasnovanom na metodi konačnih elemenata (Nikezić and Urošević, 1998). Na osnovu izrađenog modela, izvršeno je ispitivanje zavisnosti vremena potrebnog da se postigne saturacija koncentracije radona u aktivnom uglju od debljine uglja. Vreme do dostizanja saturacije su nazvali vreme aktivne adsorpcije, a vreme izlaganja kanistera ne treba da bude duže od ovog vremena (Urošević et al, 1999). Nagarajan je napravio difuziono-adsorpcioni model koji je u stanju da predvidi adsorbovanu koncentraciju radona u ugljenom kanisteru u uslovima konstantne i promenljive koncentracije radona. Model je poređen sa eksperimentalnim podacima i utvrđeno je dobro slaganje (Nagarajan, 1990). Blu i Džarzemba su rešili adsorpcione jednačine uzevši u obzir i adsorpciju vodene pare na aktivnom uglju i zatim primenili dobijene jednačine na podatke objavljene u dodatku EPA metode. Takođe su predložili drugi način računanja korekcije na poluraspad radona i kalibracionog faktora (Blue and Jarzemba, 1992).

5 Merna nesigurnost i statistički testovi – teorijske postavke

5.1 Opšte o mernoj nesigurnosti

U ovom radu, merna nesigurnost je određivana u skladu sa relevantnim preporukama međunarodnih organizacija, kao što su Međunarodna organizacija za standardizaciju – ISO, Međunarodna elektrotehnička komisija - IEC (ISO/IEC, 2008; ISO/IEC 2009), Međunarodni biro za tegove i mere – BIPM (BIPM, 2008b), Međunarodna agencija za atomsku energiju (IAEA, 2008). Navedena dokumenta i princip izražavanja merne nesigurnosti koji je u njima opisan potiču iz inicijative međunarodne komisije za tegove i mere (CIPM) iz 1977. godine da se postigne međunarodni konsenzus u ovoj oblasti. Već do 1979. godine je BIPM kontaktirao veliki broj nacionalnih metroloških instituta (NMI) i dobio 21 odgovor. U narednim godinama je u saradnji BIPM, NMI i međunarodnih organizacija donet niz preporuka, a zatim i međunarodnih standarda koji regulišu ovu oblast. Konačno, dokumenta navedena u ovom pasusu predstavljaju aktuelne preporuke i standarde vezane za izražavanje merne nesigurnosti.

Sam koncept merne nesigurnosti je relativno nov i razlikuje se od pojma greške merenja. Naime, greška merenja se definiše kao razlika između izmerene vrednosti i tačne vrednosti. Pošto je tačnu vrednost nemoguće znati, direktno sledi da je i greška merenja uvek nepoznata. S druge strane, merna nesigurnost predstavlja nesigurnost u rezultat merenja ili, drugačije posmatrano, verovatnoću da se rezultat merenja nalazi u intervalu definisanom procenjenom vrednošću i mernom nesigurnošću.

Merna nesigurnost potiče od nedovoljno dobrog poznavanja rezultata merenja i u svakom realnom merenju mora biti veća od nule. Mernu nesigurnost mogu prouzrokovati nepotpuna ili neadekvatna definicija merene veličine, rezolucija mernog uređaja, slučajne varijacije merene veličine, neadekvatne metode merenja ili primene aproksimacija, nedovoljno poznavanje korišćenih konstanti ili drugih parametara dobijenih iz spoljnih izvora itd. (BIPM, 2008b). U principu, kod svakog merenja postoji beskonačno doprinosa mernoj nesigurnosti. Međutim, samo mali broj doprinosa je dovoljno veliki da poveća ukupnu mernu nesigurnost, pa je jedan od ciljeva svakog merenja da se identifikuju svi značajni doprinosi mernoj nesigurnosti. Neki od ovih

doprinosu se određuju matematički rigorozno, dok su drugi stvar procene osobe koja vrši merenje. Zbog toga će procenjena merna nesigurnost u izvesnoj meri zavisiti od metrologa ili ispitivača koji obavlja merenje.

Merna nesigurnost će u ovoj tezi biti označavana sa u_i , gde je i oznaka veličine na koju se odnosi merna nesigurnost. U pojedinim slučajevima je pogodnije raditi sa relativnim mernim nesigurnostima, pa će ona biti označena sa $u_{r,i}$ (malim slovima će biti označena standardna merna nesigurnost, a velikim proširena, što će biti detaljnije objašnjeno u nastavku ove glave).

5.2 Merna nesigurnost tipa A i tipa B

S obzirom na to na koji način je merna nesigurnost određena, moguće je izvršiti podelu na mernu nesigurnost tipa A, koja je određena statističkim metodama i na mernu nesigurnost tipa B, koja je određena drugim metodama.

Merna nesigurnost tipa A je vezana za određivanje vrednosti neke veličine ponovljenim merenjima. Tada se ponovljena merenja statistički obrađuju tako što se izračunaju standardna devijacija i srednja vrednost. Ako je izmereno n vrednosti x_k , srednja vrednost, \bar{x} , se računa prema jednačini 5.1, a standardna devijacija σ_x prema jednačini 5.2 (BIPM, 2008b):

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n x_k \quad (5.1)$$

$$\sigma_x = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{k=1}^n (x_k - \bar{x})^2} \quad (5.2)$$

Standardna devijacija je pogodna za opisivanje disperzije izmerenih vrednosti oko srednje vrednosti, odnosno ponovljivosti merenja. Međutim, u kontekstu ove diskusije, od većeg značaja je standardna merna nesigurnost srednje vrednosti, $u_{\bar{x}}$, jer će najčešće upravo srednja vrednost biti korišćena u daljim proračunima. Ona će zavisiti od broja izmerenih vrednosti, n i biće manja od standardne devijacije (jednačina 5.3).

$$u_{\bar{x}} = \frac{\sigma}{\sqrt{n}} \quad (5.3)$$

Merna nesigurnost srednje vrednosti je zapravo procena disperzije koju bi imale srednje vrednosti, ako bi bilo izvršeno više serija po n merenja.

Merna nesigurnost tipa B se određuje na dva načina. Ukoliko se koriste tablične vrednosti, podaci iz kalibracionih sertifikata, podaci dobijeni od strane proizvođača – odnosno spoljni podaci, koristi se merna nesigurnost navedena u spoljnom izvoru. Ako merna nesigurnost nije navedena, u nekim slučajevima se može zanemariti (ako je procenjeno da merna nesigurnost vezana za vrednost dobijenu iz spoljnog izvora ne povećava značajno ukupnu mernu nesigurnost) ili se može proceniti na osnovu broja cifara kojima je iskazana vrednost veličine.

U svim ostalim slučajevima, merna nesigurnost se procenjuje na osnovu poznavanja metode, merne opreme i uslova merenja. Važno je navesti da je uvek u pitanju samo procena, odnosno da merna nesigurnost nikada nije egzaktno poznata, a valjanost procene će zavisiti od stepena poznavanja svih parametara koji utiču na merenje. Primer ovako određene merne nesigurnosti je rezolucija uređaja sa analognim pokazivanjem, pri čemu osoba koja obavlja merenje procenjuje koja je najmanja promena vrednosti koju je moguće pouzdano očitati (BIPM, 2008b).

5.3 Nivo pouzdanosti i raspodela verovatnoće

Nivo pouzdanosti, p , označava verovatnoću da se tačna vrednost merene veličine nalazi u intervalu $x_i \pm u_i$, gde je x_i rezultat merenja, a u_i pridružena merna nesigurnost. Množenjem standardne merne nesigurnosti faktorom pokrivanja, k , dobija se proširena merna nesigurnost, U (jednačina 5.4), za koju je vezan veći nivo pouzdanosti (BIPM, 2008b).

$$U_i = ku_i \quad (5.4)$$

Po definiciji, $k = 1$ za standardnu mernu nesigurnost. Za slučaj $k > 1$, interval oko x_i se proširuje i samim tim se povećava i verovatnoća da se u tom intervalu nađe tačna vrednost.

Veza između k i p će zavisiti od pretpostavljene raspodele verovatnoće – odnosno pretpostavljene funkcije koja opisuje verovatnoću da rezultat merenja ima određenu vrednost. U ovom radu, biće korišćene normalna raspodela, Poasonova raspodela i pravougaona raspodela.

Ako je vrednost neke veličine određena ponovljenim merenjima, najčešće je adekvatno pretpostaviti normalnu raspodelu verovatnoće. Kada su u pitanju veličine čije su vrednosti određene iz sertifikata i drugih spoljnih izvora, u pojedinim slučajevima je u samim izvorima navedeno da je pretpostavljena normalna raspodela verovatnoće. Za slučaj normalne raspodele, vrednosti $k = 2$ približno odgovara nivo pouzdanosti od 95 %, a taj faktor pokrivanja će biti najčešće korišćen u daljem tekstu. Za $k = 1$, nivo pouzdanosti je približno 68 % (BIPM, 2008b).

Odbroj u gama-spektrima podleže Poasonovoj raspodeli. Ako je odbroj označen sa N , onda se standardna merna nesigurnost, u_N , računa prema jednačini 5.5:

$$u_N = \sqrt{N} \quad (5.5)$$

U slučaju Poasonove raspodele važi isti odnos između k i p kao i za normalnu raspodelu, t.j. za $k = 2$, $p = 95 \%$ (Wardrop, 2011).

Pravougaona raspodela verovatnoće se koristi u slučajevima kada postoji uverenje da se vrednost veličine nalazi u određenom intervalu, između a^- i a^+ , ali nije moguće napraviti procenu o verovatnoći da veličina ima određenu vrednost u okviru datog intervala. Za praktičnu primenu, moguće je pretpostaviti da se tačna vrednost sa verovatnoćom od 100 % nalazi u intervalu između a^- i a^+ , a odgovarajući faktor pokrivanja iznosi $\sqrt{3}$. U tom slučaju se za najbolju procenu tačne vrednosti, x_i , uzima sredina intervala, a standardna merna nesigurnost se određuje na osnovu jednačine 5.6 (BIPM, 2008b):

$$u_{xi} = \sqrt{\frac{(a^+ - a^-)^2}{12}} = \frac{a}{\sqrt{3}} \quad (5.6)$$

gde je $2a = a^+ - a^-$, odnosno a je poluširina intervala u kome se nalazi tačna vrednost (BIPM, 2008b).

5.4 *Kombinovana merna nesigurnost*

U praksi je jako čest slučaj da se vrednost merene veličine, y , ne određuje direktno, već je ona u određenoj funkcionalnoj zavisnosti sa m drugih veličina x_i , od kojih svaka ima svoju mernu nesigurnost. U opštem slučaju, y je izraženo jednačinom 5.7:

$$y = f(x_1, x_2, x_3 \dots x_m) \quad (5.7)$$

Čak i kada se y direktno meri, može postojati više doprinosa mernoj nesigurnosti: doprinos od ponovljivosti, doprinos od rezolucije, doprinos od kalibracionog faktora... U svim slučajevima kada postoji više doprinosa mernoj nesigurnosti, neophodno je izračunati kombinovanu mernu nesigurnost, u skladu sa zakonom o propagaciji merne nesigurnosti. U najjednostavnijem slučaju, kada su sve veličine x_i nekorelisane, kombinovana merna nesigurnost - u_c , određuje se u skladu sa jednačinom 5.8 (BIPM, 2008b):

$$u_c^2 = \sum_1^m \left(\frac{\partial y}{\partial x_i} \right)^2 u_i^2 = \sum_1^m c_i^2 u_i^2 \quad (5.8)$$

gde je c_i koeficijent osetljivosti. Dve model funkcije su više puta korišćene u ovom radu, pa će na ovom mestu biti pokazano kako se za njih računa kombinovana merna nesigurnost.

Jednačinom 5.9 je prikazana jednostavna model funkcija koja predstavlja polinom sa više promenljivih, pri čemu svaki član sume zavisi samo od jedne promenljive.

$$y = \sum_1^m a_i x_i^{n_i} \quad (5.9)$$

U ovoj jednačini su a_i i n_i konstante a x_i promenljive. Jednačina 5.10 prikazuje način računanja kombinovane merne nesigurnosti za ovaj slučaj (BIPM, 2008b).

$$u_y = \sqrt{\sum_1^m (a_i n_i x_i^{n_i-1})^2 u_i^2} = \sqrt{\sum_1^m c_i^2 u_i^2} \quad (5.10)$$

Konstante mogu biti i pozitivne i negativne, odnosno, jednačina 5.10 važi i za oduzimanje. Za poseban slučaj kada su a_i i n_i jedinice, i c_i je jedinica.

Druga model funkcija je prikazana jednačinom 5.11, a odgovarajuća merna nesigurnost jednačinom 5.12:

$$y = a \prod_1^m x_i^{p_i} \quad (5.11)$$

$$\frac{u_y}{y} = \sqrt{\sum_1^m p_i^2 \frac{u_i^2}{x_i^2}} \quad (5.12)$$

gde su p_i pozitivni ili negativni brojevi (odnosno, jednačina 5.12 važi i za deljenje), a x_i promenljive. Jednačina 5.12 je analogna jednačini 5.10, osim što su apsolutne merne nesigurnosti zamenjene relativnim. Zbog toga će u ovom radu p_i biti nazivani koeficijentima osetljivosti i označavani sa c_i po analogiji, iako p_i ne predstavlja parcijalni izvod model funkcije po promenljivoj x_i . Sličan pristup je primenjen u referenci (IAEA, 2008). U slučaju da ista veličina ima više komponenata merne nesigurnosti, kao što su ponovljivost, kalibracioni koeficijent (ili korekcija), rezolucija, ove merne nesigurnosti se tretiraju kao u jednačini 5.12, pri čemu je u nekim slučajevima prethodno potrebno transformisati model funkciju tako da se dobije proizvod umesto zbira (IAEA, 2008).

Postavlja se pitanje kojoj raspodeli podleže konačan rezultat y , kome odgovara izračunata kombinovana merna nesigurnost. To pitanje može biti veoma složeno, pogotovo ako uticajne veličine podležu različitim raspodelama (normalna, pravougaona, Poasonova) i potrebno je razmatrati konvoluciju raspodela. Zbog složenosti problema, u ovom radu će biti pretpostavljeno da svaka veličina izračunata na osnovu vrednosti drugih veličina koje podležu različitim raspodelama podleže normalnoj raspodeli. U slučaju da sve uticajne veličine podležu istoj raspodeli, biće pretpostavljeno da i vrednost izračunate veličine podleže toj raspodeli.

5.5 Korelacija mernih nesigurnosti i kovarijansa

Kada postoji značajna korelacija između mernih nesigurnosti različitih veličina x_i , jednačina 5.8 više nije adekvatna. Do korelacije može doći iz više različitih razloga: korišćenje istog instrumenta za određivanje vrednosti više uticajnih veličina, kalibracija više instrumenata prema istom standardu, korelisane promene slučajnih vrednosti više veličina (na primer, ako se istovremeno mere parovi vrednosti dve veličine, a obe veličine zavise od slučajnih fluktuacija temperature) itd. U tom slučaju se koristi jednačina 5.13, koja je opštiji oblik jednačine 5.8 (BIPM, 2008b):

$$\begin{aligned}
 u_c^2 &= \sum_{i=1}^m \left(\frac{\partial y}{\partial x_i} \right)^2 u_i^2 + 2 \sum_{i=1}^{m-1} \sum_{j=i+1}^m \frac{\partial y}{\partial x_i} \frac{\partial y}{\partial x_j} u(x_i, x_j) = \\
 &= \sum_1^m c_i^2 u_i^2 + 2 \sum_{i=1}^{m-1} \sum_{j=i+1}^m c_i c_j u(x_i, x_j) \quad (5.13)
 \end{aligned}$$

gde je $u(x_i, x_j)$ kovarijansa promenljivih x_i i x_j .

Postoje dva načina procene kovarijanse: tip A i tip B. Tip A podrazumeva istovremeno merenje dve promenljive i primenu jednačine 5.14:

$$u(x_i, x_j) = \frac{1}{n(n-1)} \sum_{k=1}^n (x_{i,k} - \bar{x}_i)(x_{j,k} - \bar{x}_j) \quad (5.14)$$

Tip B procene kovarijanse se primenjuje na sledeći način: ako je $x_1 = f(q_1 \dots q_l)$ i $x_2 = g(q_1 \dots q_l)$, tada je njihova kovarijansa data jednačinom 5.15:

$$u(x_i, x_j) = \sum_{i=1}^l \frac{\partial x_i}{\partial q_i} \frac{\partial x_j}{\partial q_i} u_{q_i}^2 \quad (5.15)$$

Za i -ti član sume iz jednačine 5.15 važi da je jednak nuli ako barem jedna od para veličina x_1 i x_2 ne zavisi od q_i , odnosno da je različit od nule ako obe zavise od q_i . Ovaj tip procene kovarijanse je moguć samo ako postoji dovoljno dobar model funkcija f i g , koje će uzeti u obzir sve veličine q_i od kojih zavise i x_1 i x_2 (BIPM, 2008b).

U pojedinim slučajevima kada nije moguće izvršiti ponovljena merenja niti su poznate funkcije f i g , kovarijansu je moguće proceniti na osnovu poznavanja metode merenja i merenih veličina. Međutim, procenu je lakše izvršiti ako se razmatra korelacioni faktor (jednačina 5.16), koji predstavlja stepen korelacije između x_1 i x_2 (BIPM, 2008b).

$$r(x_i, x_j) = \frac{u(x_i, x_j)}{u_{x_i} u_{x_j}} \quad (5.16)$$

5.6 Budžet merne nesigurnosti i prikazivanje merne nesigurnosti

Kombinovanu mernu nesigurnost i pojedinačne doprinose kombinovanoj mernoj nesigurnosti je moguće izraziti na više načina, a često je korišćen tabelarni prikaz koji se naziva budžet merne nesigurnosti. U tabeli svaki red predstavlja jedan doprinos mernoj nesigurnosti, a u poslednjem redu se nalazi kombinovana merna nesigurnost. Broj i značenje kolona se menjaju u zavisnosti od potreba, a često se u kolonama nalaze ime i opis veličine koja doprinosi mernoj nesigurnosti, vrednost veličine, merne jedinice, proširena (relativna) merna nesigurnost, tip raspodele, faktor pokrivanja, standardna (relativna) merna nesigurnost, koeficijent osetljivosti i kvadrat proizvoda koeficijenta osetljivosti i standardne (relativne) merne nesigurnosti.

Uobičajeno je da se merna nesigurnost prikazuje sa jednom ili dve značajne cifre. U slučaju da se merna nesigurnost koristi za dalje računanje, u nekim slučajevima se zadržava i više cifara. Vrednost veličine se uvek izražava sa istom preciznošću kao i merna nesigurnost (BIPM, 2008b). Kada je u pitanju zaokruživanje merne nesigurnosti, prema uputstvu Međunarodne organizacije akreditacionih tela (ILAC), zaokruživanje se vrši po uobičajenim pravilima zaokruživanja (ako je prva cifra koja se odbacuje manja od 5, poslednja cifra koja se zadržava ostaje nepromenjena; ako je prva cifra koja se odbacuje veća od 5, ili je jednaka 5, a ostale cifre koje je slede nisu sve jednake nuli, onda se poslednja cifra koja se zadržava uvećava za 1; ako je prva cifra koja se odbacuje jednaka 5, a sve cifre koje slede su jednake nuli, onda se prva cifra koja se zadržava ne menja ako je parna, odnosno uvećava za jedan ako je neparna) (ILAC, 2013). Međutim, pojedine laboratorije koriste praksu zaokruživanja na gore, da bi bilo osigurano da merna nesigurnost zaista odgovara navedenom nivou pouzdanosti. U BIPM vodiču za izražavanje merne nesigurnosti je ovakav način zaokruživanja dozvoljen, mada nije preporučen (BIPM, 2008b).

Merna nesigurnost se u tekstu može prikazati na više načina. U ovom radu su korišćeni oblici $x = 1,000 \pm 0,021$ i analogni oblik $x = 1,000(21)$. Pored toga, na nekim mestima je navođeno da rezultat $1,000$ ima mernu nesigurnost $0,021$ ili mernu nesigurnost $2,1$ %. Svaki put kada se izrazi merna nesigurnost, neophodno je navesti i koeficijent pokrivanja, ili analogno nivo pouzdanosti i pretpostavljenu raspodelu verovatnoće (BIPM, 2008b).

5.7 Poređenje dva rezultata merenja – z-test

U ovom radu će se na više mesta porediti dve vrednosti (najčešće koncentracije radona) sa poznatim mernim nesigurnostima, pri čemu je pretpostavljena normalna raspodela. Za poređenje će biti korišćen z-test.

Neka x ima standardnu mernu nesigurnost u_x i y mernu nesigurnost u_y . Nulta hipoteza je da su vrednosti x i y iste i analogna je hipotezi da je njihova razlika jednaka nuli. Merna nesigurnost razlike se računa po formuli 5.17 (Barlow, 1989):

$$u_{x-y}^2 = u_x^2 + u_y^2 \quad (5.17)$$

a vrednost z-testa se računa po formuli 5.18 (Barlow, 1989):

$$z = \frac{x - y}{u_{x-y}} = \frac{x - y}{\sqrt{u_x^2 + u_y^2}} \quad (5.18)$$

Ako je $|z| \leq 1,96$, što odgovara intervalu pouzdanosti od 5 %, ne može se odbaciti nulta hipoteza (Barlow, 1989). Taj kriterijum će biti korišćen.

5.8 Fitovanje funkcija – t-test i R^2 vrednost

Rezultate fitovanja eksperimentalnih podataka pomoću različitih funkcija je potrebno oceniti na neki način. U ovom radu su za to korišćeni t-test i R^2 vrednost.

Vrednost t-testa je računata za parametre funkcija dobijenih fitovanjem, tako što je standardna merna nesigurnost parametara deljena njihovom vrednošću, a primenjivan je nivo pouzdanosti od 5 % (Rawlings et al, 1998). S obzirom na to da je broj stepeni slobode uvek bio veći od 13, korišćen je kriterijum $t > 2,2$. U slučaju da kriterijum nije ispunjen, model funkcije koja je fitovana je odbačen.

R^2 vrednost predstavlja procenat varijacija zavisne promenljive koji fitovana funkcija objašnjava i ima vrednosti između nula i jedan (Rawlings et al, 1998). U slučaju dve prihvatljive model funkcije, birana je funkcija sa većom vrednošću R^2 .

6 Eksperimentalne metode i oprema korišćeni u izradi teze

Laboratorija za zaštitu od zračenja Instituta za nuklearne nauke “Vinča” je imenovani institut za metrologiju jonizujućeg zračenja i članica Evropskog udruženja nacionalnih metroloških instituta (EURAMET) i Mreže sekundarnih standardnih dozimetrijskih laboratorija (SSDL network) Međunarodne agencije za atomsku energiju i Svetske zdravstvene organizacije (IAEA – International Atomic Energy Agency i WHO – World Health Organization) (Ciraj-Bjelac et al, 2015). Laboratorija poseduje nacionalne etalone za metrologiju doza jonizujućeg zračenja i akreditovana je kao laboratorija za etaloniranje i laboratorija za ispitivanje u skladu sa standardom ISO/IEC 17025 (ISO/IEC, 2005). Između ostalog, laboratorija je akreditovana i za merenje koncentracije radona ugljenim filterima u skladu sa EPA 520 metodom (Gray and Windham, 1987).

6.1 Primena EPA metode

U tabeli 6.1 se nalazi spisak opreme koja je korišćena u toku merenja koncentracije radona po metodi EPA 520 u INN Vinča. Sva oprema se redovno etalonira ili overava, odnosno ima važeće sertifikate i obuhvaćena je procedurama za osiguranje kvaliteta.

Za određivanje koncentracije radona je korišćeno 100 ugljenih kanistera, koji su označeni brojevima od 000 do 099 (slika 6.1). Kanister 000 je korišćen samo za određivanje fona. Kanisteri imaju identične specifikacije kao EPA kanisteri, a proizvođač uz kanistere dostavlja EPA metodu i dodatak (Gray and Windham, 1987; EPA, 1989), pa su korišćene te kalibracione krive.

Za potrebe merenja obuhvaćenih akreditacijom, korišćene su krive iz EPA metode, a za potrebe istraživanja, krive iz dodatka. Preko 90 % merenja je izvršeno na NaI spektrometru (slika 6.2), oko 10 % na HPGe spektrometru 3, a mali broj merenja na preostala dva spektrometra (slika 6.3), uglavnom za potrebe istraživanja ili osiguranja kvaliteta. Uz spektrometre je korišćen proizvođački softver, Canberra Genie 2000.

Tabela 6.1 Merna i druga oprema korišćena za izvođenje metode EPA 520

Tip merila ili druge opreme	Proizvođač	Model/tip
Ugljeni kanister	F&J	Otvoreni kanisteri od 4 inča
Radijumski standard	Isotope Production Laboratory	375-62
Sušnica	Instrumentaria	ST-05
Vaga	Mettler	Toledo PJ3000
Vaga	Mettler	Toledo SM6600x
NaI spektrometar	Canberra	2x2 inča
HP-Ge spektrometar 1	Canberra	GC 2018-7500
HP-Ge spektrometar 2	Canberra	7229N-7500-1818
HP-Ge spektrometar 3	Canberra	GC 5019



Slika 6.1 Ugljeni kanisteri



Slika 6.2 NaI spektrometar



Slika 6.3 HPGe spektrometri

Kanisteri su pre izlaganja sušeni u sušnici na temperaturi od 105 °C. Pre i posle izlaganja, merena je masa kanistera.

6.2 *Merenja temperature i vlažnosti vazduha*

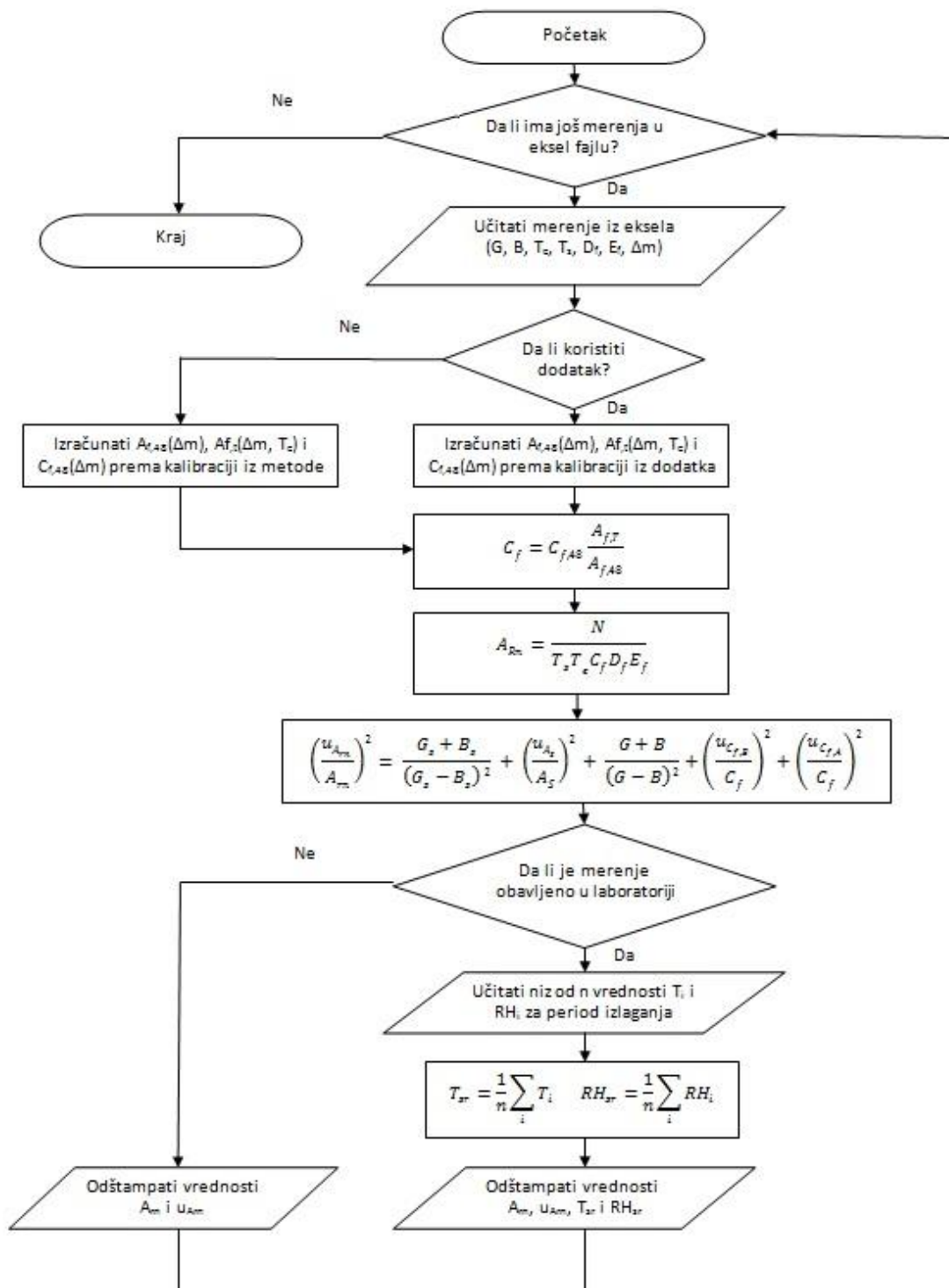
U toku pojedinih izlaganja u prostorijama INN Vinča, praćeni su ambijentalni parametri – temperatura i vlažnost vazduha. U tu svrhu je korišćen digitalni termohigrograf Electronic Design VTL.

6.3 *Softverski paket izrađen za potrebe ovog doktorata*

Zbog potrebe da se obradi veliki broj rezultata merenja, da se izvrši veliki broj složenih proračuna merne nesigurnosti, kao i da se isprobaju različiti modeli proračuna koncentracije radona i merne nesigurnosti, izrađena je posebna Windows aplikacija u programskom jeziku C#.

Navedena aplikacija ima mogućnost da ućita podatke iz izveštaja o merenju koncentracije radona iz eksel tabele korišćene u INN Vinča, zatim podatke o temperaturi i pritisku koje automatski generiše VTL i konaćno nizove rezultata koncentracije radona sa mernim nesigurnostima, zarad raćunanja merne nesigurnosti srednje vrednosti uzevši u obzir korelacije (objašnjeno u odeljku 8.5). Raćunanje koncentracija radona se obavlja na osnovu polinomijalnih krivih iz EPA metode ili dodatka (glava 7), po izboru korisnika. Program takođe raćuna srednje vrednosti i standardne devijacije korigovanih vrednosti temperature i pritiska za interval izlaganja kanistera (primenljivo samo za kanistere izlagane u INN Vinča). Rezultate svih proraćuna je moguće izvesti u eksel fajl, a izgled eksel fajla i vrsta podataka koji se izvoze se mogu menjati izmenama koda programa.

Na slici 6.4 je prikazan uprošćeni algoritam na osnovu koga je razvijan kod. Potrebno je napomenuti da je C# objektno orijentisan programski jezik i da kod nije linearno strukturiran.



Slika 6.4 Uprošćeni algoritam aplikacije razvijene za potrebe doktorske teze

7 Analiza podataka iz EPA metode i dodatka i određivanje kalibracionog faktora

Kao što je već pomenuto, kanisteri koji se koriste u INN Vinča koriste isti tip i granulaciju uglja i iste su konstrukcije kao kanisteri korišćeni u EPA metodi i dodatku EPA metode, što omogućava korišćenje kalibracionih krivih koje se nalaze u ovim dokumentima. Kalibracija u EPA metodi odgovara uslovima statične atmosfere, dok kalibracija u dodatku odgovara uslovima pokretne atmosfere (Gray and Windham, 1987; EPA, 1989).

U navedenim dokumentima, kalibracioni faktori i faktori podešavanja (c_f , a_f) su dati tabelarno i grafički. Iako je moguće očitati c_f i a_f sa grafika, vrlo je praktično odrediti funkcionalnu zavisnost c_f od promene mase (Δm), odnosno a_f od vremena izlaganja kanistera (T_i). Poznavanje navedenih funkcija je posebno važno kada je potrebno obraditi veliki broj merenja uz korišćenje računara, jer dozvoljava skoro potpunu automatizaciju procesa.

U ovoj glavi će biti objašnjeno kako se određuju kalibracioni faktori i faktori podešavanja za konkretna merenja na osnovu tabelarnih podataka i grafika objavljenih u EPA metodi i dodatku metode. Krive koje su rekonstruisane na osnovu grafika će biti u nastavku teze nazivane originalnim krivim. Krive koje su fitovane na osnovu tabelarnih podataka će biti nazivane polinomijalnim funkcijama (iz EPA metode ili dodatka EPA metode) kada se govori zbirno o C_f i A_f funkcijama, ili linearnim i kvadratnim funkcijama kada se pominju pojedinačno.

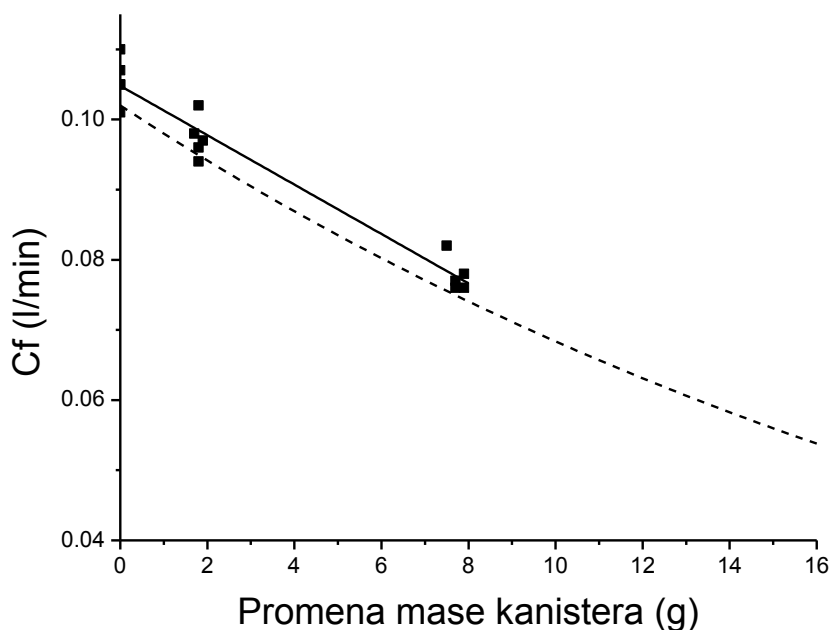
7.1 *Određivanje c_f krive i odgovarajuće funkcije na osnovu podataka iz EPA metode*

Kalibracioni faktori su određeni za različite vlažnosti vazduha za vreme izlaganja od 48 sati u statičnoj atmosferi ($c_{f,48}$) i njihove vrednosti su navedene u EPA metodi (Gray and Windham, 1987). Na osnovu ovih podataka se konstruiše c_f kriva ili se određuje kalibraciona jednačina, iz kojih se dobija $c_{f,48}$. Na osnovu malog broja eksperimentalnih tačaka dostupnih iz EPA metode, nije moguće pouzdano odrediti

kakva funkcija najbolje opisuje zavisnost c_f od Δm . Na slici 7.1 je isprekidanom linijom predstavljena funkcionalna zavisnost data jednačinom 7.1, koja je rekonstruisana na osnovu krive koja se nalazi u EPA metodi:

$$C_f = 0,102 e^{-0,04\Delta m} \quad (7.1)$$

Kriva je rekonstruisana tako što je sa nje očitani veliki broj podataka, a zatim su isprobane različite funkcije i određena funkcija koja najbolje opisuje očitane podatke.



Slika 7.1 Zavisnost kalibracionog faktora od promene mase kanistera; tačke predstavljaju eksperimentalne vrednosti, isprekidanom linijom je prikazana logaritamska funkcija (određena na osnovu krive iz EPA metode), punom linijom je prikazana linearna funkcija

Na slici 7.1 su tačkama predstavljeni eksperimentalni podaci dostupni u EPA metodi, pa se može primetiti da originalna kriva daje manje vrednosti c_f od eksperimentalno određenih vrednosti. Pored toga, vrlo je teško odrediti mernu nesigurnost ovakvog fitovanja, jer u nju ulazi nesigurnost fitovanja koju je izvršila EPA, zatim greška očitavanja vrednosti sa grafika i, konačno, greška drugog fitovanja na osnovu očitanih vrednosti.

Zbog svega navedenog, pokušano je direktno fitovanje eksperimentalnih podataka polinomijalnim funkcijama. Prvo je pokušano fitovanje kvadratnom funkcijom, ali je primenom t-testa pokazano da parametar uz kvadratni član nije

značajno različit od nule ($t = 0,88$). Eksperimentalni podaci su zatim fitovani linearnom funkcijom:

$$C_f = 0,1048(11) - 0,00352(23)\Delta m \quad (7.2)$$

Primena t-testa pokazuje da su oba parametra značajno različita od nule, a R^2 vrednost je 0,95, pa je za fitovanje odabrana linearna funkcija.

Kada su u pitanju rezultati koncentracije radona prikazani u ovom radu, korišćene su i funkcije 7.1 i 7.2, a za svaki rezultat će biti naglašeno na koji način je izračunat.

7.2 Određivanje a_f krivih i odgovarajućih funkcija na osnovu podataka iz EPA metode

Faktori podešavanja za različito vreme izlaganja kanistera i različitu vlažnost vazduha su takođe prikazani tabelarno u EPA metodi (Gray and Windham, 1987). Na slici 7.2 su eksperimentalno određene vrednosti prikazane tačkama.

Kao i kada je u pitanju kalibracioni faktor, nije moguće nedvosmisleno odrediti funkciju koja najbolje opisuje eksperimentalne podatke. Dva modela funkcija su predstavljena jednačinama 7.3 i 7.4.

$$A_f = a + b \ln(T_e) \quad (7.3)$$

$$A_f = a + b T_e + c T_e^2 \quad (7.4)$$

Funkcija 7.4 najbolje odgovara grafiku koji se nalazi u EPA metodi, a njeni parametri su određeni očitavanjem vrednosti sa grafika i fitovanjem, zbog čega na ovom mestu nije prikazana merna nesigurnost. Parametri funkcije 7.3 su dati u tabeli 7.1.

Tabela 7.1 Parametri funkcije 7.3 (EPA metoda)

Relativna vlažnost vazduha (%)	a	b
20	0,3879	-0,0358
50	0,4349	-0,043
80	0,4755	-0,0507

Kada je u pitanju funkcija 7.4, odlično slaganje sa eksperimentalnim podacima se postiže ukoliko se ispitivani interval vremena izlaganja podeli na dva dela i zatim fituju dve odvojene funkcije. Ovako određeni parametri funkcije su prikazani u tabeli 7.2, zajedno sa mernim nesigurnostima.

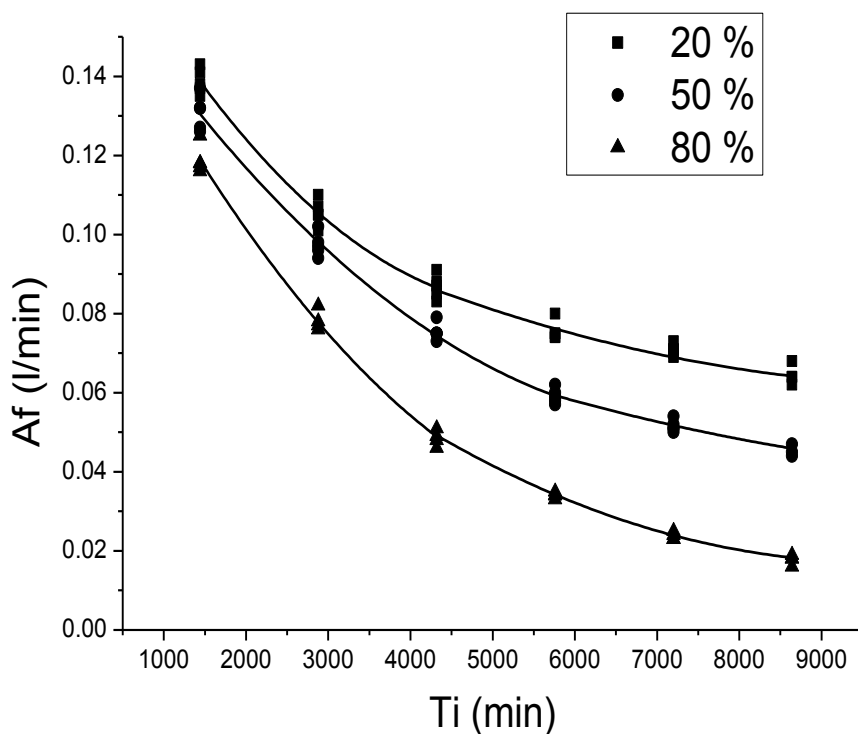
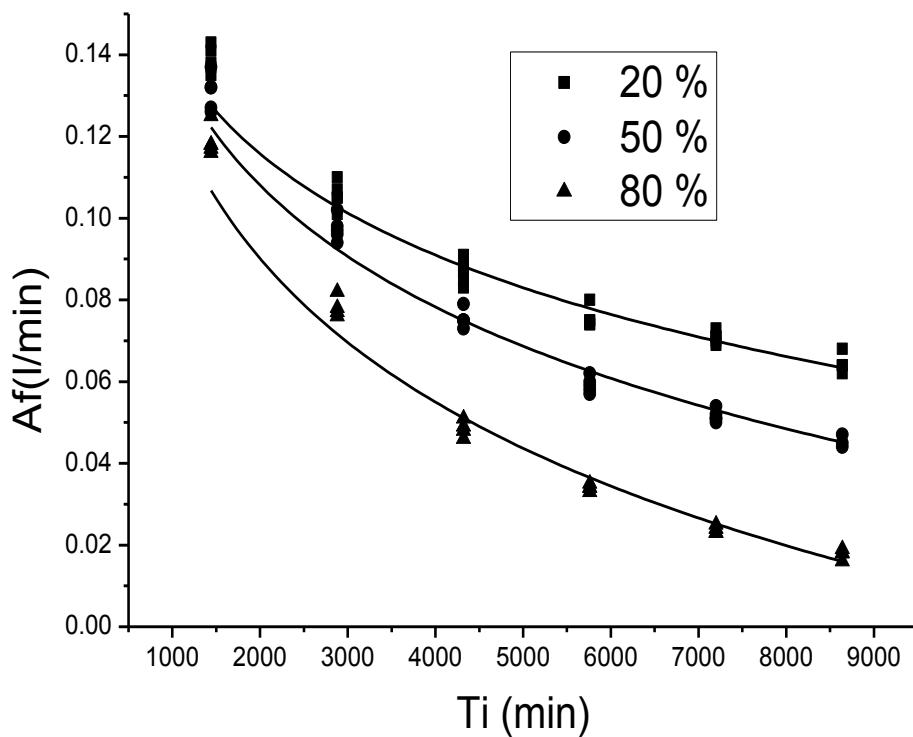
Tabela 7.2 Parametri funkcije 7.4 (EPA metoda), merna nesigurnost je iskazana kao standardna merna nesigurnost ($k = 1$)

Relativna vlažnost vazduha (%)	Interval važenja funkcije (min)	a	b $\times 10^{-5}$	c $\times 10^{-10}$	R ²
20	1440 - 4320	0,1864 ± 0,0062	-3,81 ± 0,49	34,7 ± 8,4	0,98
20	4320 - 8640	0,130 ± 0,012	-1,28 ± 0,37	6,0 ± 2,9	0,91
50	1440 - 5760	0,1714 ± 0,0038	-3,14 ± 0,24	20,7 ± 3,3	0,99
50	5760 - 8640	0,107 ± 0,023	-1,07 ± 0,65	4,2 ± 4,5	0,92
80	1440 - 4320	0,1720 ± 0,0054	-4,12 ± 0,43	29,4 ± 7,4	0,99
80	4320 - 8640	0,1223 ± 0,0060	-2,18 ± 0,20	11,3 ± 1,5	0,99

Primena t-testa pokazuje da su parametri funkcije značajno različiti od nule, osim parametra c u četvrtom redu tabele ($c = 4,2 \pm 4,5$). Zbog jednostavnije primene računarskog programa i izrade budžeta merne nesigurnosti, kvadratna funkcija je primenjena i za ovaj slučaj.

Na slici 7.2 su uporedo prikazane krive dobijene korišćenjem oba modela funkcije. Za vremena izlaganja duža od 3 dana, obe funkcije zadovoljavajuće objašnjavaju eksperimentalne podatke. Kada su u pitanju izlaganja kraća od 3 dana, koja su od velikog značaja za EPA metodu, deo po deo kvadratna funkcija pokazuje značajno bolje slaganje sa eksperimentalnim rezultatima.

Kao i kada su u pitanju C_f krive, rezultati koncentracije radona prikazani u daljem tekstu su izračunati i primenom originalnih krivih (funkcija 7.3) i primenom kvadratnih (tj. polinomijalnih) funkcija (funkcija 7.4), što će biti naglašeno.



*Slika 7.2 Fitovanje eksperimentalnih podataka: zavisnost A_f od T_i (EPA metoda).
a) originalne krive; b) kvadratne funkcije*

7.3 Određivanje c_f krive na osnovu podataka iz dodatka EPA metode

Kalibracioni faktori za vreme izlaganja od 48 sati, koji su određeni za različite vlažnosti vazduha u aktivnoj atmosferi, tabelarno su prikazani u dodatku EPA metode (EPA, 1989).

Grafik objavljen u dodatku EPA metode je rekonstruisan, kao što je objašnjeno u odeljku 7.1, a odgovara mu jednačina 7.5:

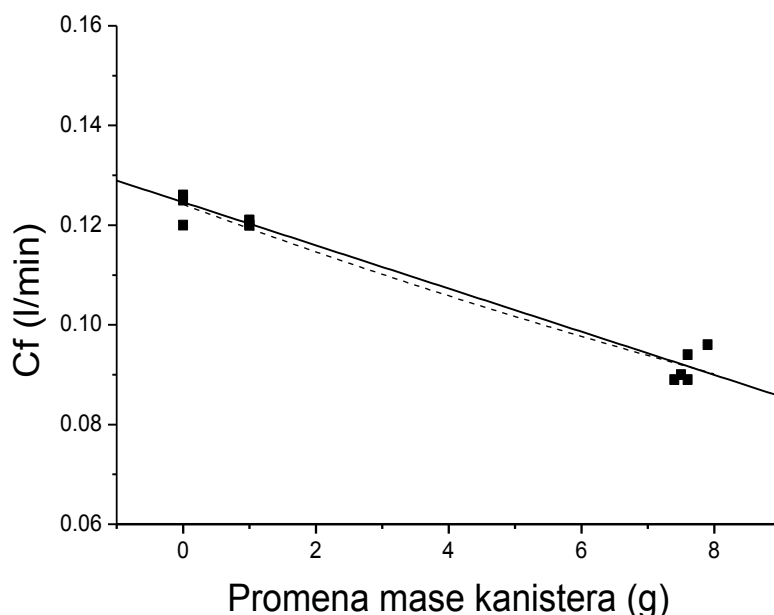
$$C_f = 0,1242 e^{-0.04\Delta m} \quad (7.5)$$

Eksperimentalni podaci iz dodatka su takođe fitovani kvadratnom jednačinom, a parametar uz kvadratni član ponovo nije značajno različit od nule. Podaci su zbog toga fitovani linearnom funkcijom:

$$C_f = 0,12461(89) - 0,00433(20)\Delta m \quad (7.6)$$

pri čemu je dobijena vrednost R^2 od 0,97.

Konačno, na slici 7.3 su grafički prikazane obe funkcije, zajedno sa eksperimentalnim podacima. Za razliku od EPA metode i kalibracije u statičnoj atmosferi, u ovom slučaju obe funkcije daju veoma slične rezultate. Ipak, korišćenje linearne funkcije daje bolju predstavu o mernoj nesigurnosti.



Slika 7.3 Zavisnost kalibracionog faktora od promene mase kanistera; tačke predstavljaju eksperimentalne vrednosti, isprekidanom linijom je prikazana logaritamska funkcija, a punom linearna funkcija

7.4 Određivanje a_f krivih na osnovu podataka iz dodatka EPA metode

Faktori podešavanja za različito vreme izlaganja kanistera i različitu vlažnost vazduha su dostupni u dodatku EPA metode (EPA, 1989), a grafički prikaz je dat na slici 7.4.

Originalne krive su rekonstruisane očitavanjem tačaka i fitovanjem različitih funkcija. Ove funkcije mogu biti predstavljene jednačinama 7.7 (vlažnost 20 %), 7.8 (50 %) i 7.9 (80 %):

$$C_f = 0,1772 e^{-0,00012T_e} \quad (7.7)$$

$$C_f = 0,1853 e^{-0,00013T_e} \quad (7.8)$$

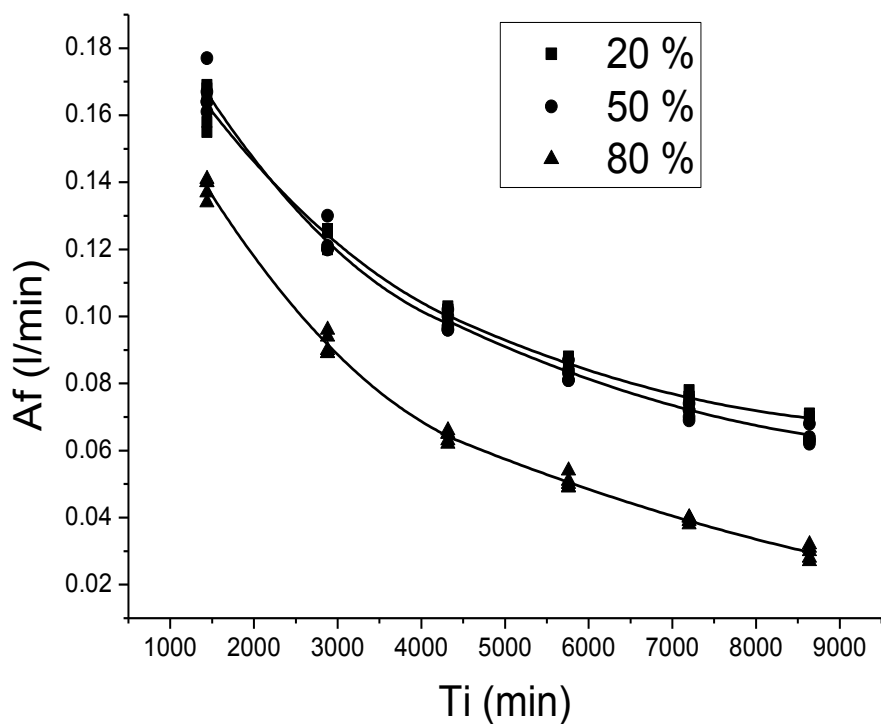
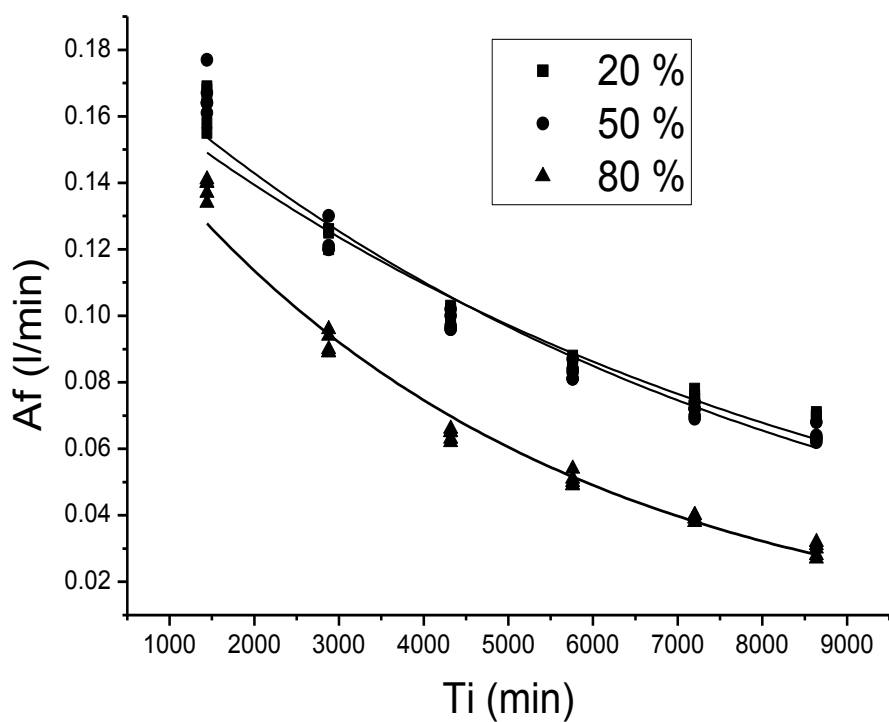
$$C_f = 0,1729 e^{-0,00021T_e} \quad (7.9)$$

Eksperimentalno određeni podaci iz dodatka EPA metode su fitovani pomoću funkcije 7.4, na isti način kao u odeljku 7.2. Parametri funkcije su dati u tabeli 7.3, zajedno sa mernim nesigurnostima.

Tabela 7.3 Parametri funkcije 7.4 (dodatak EPA metode), merna nesigurnost je iskazana kao standardna merna nesigurnost ($k = 1$)

Relativna vlažnost vazduha (%)	Interval važenja funkcije (min)	a	b x 10 ⁻⁵	c x 10 ⁻¹⁰	R ²
20	1440 - 4320	0,2162 ± 0,0082	-4,20 ± 0,64	35 ± 11	0,98
20	4320 - 8640	0,1677 ± 0,0076	-1,99 ± 0,25	9,9 ± 1,9	0,98
50	1440 - 4320	0,2308 ± 0,0090	-5,15 ± 0,71	48 ± 13	0,97
50	4320 - 8640	0,167 ± 0,010	-1,98 ± 0,33	9,2 ± 2,5	0,97
80	1440 - 4320	0,2046 ± 0,0052	-5,27 ± 0,41	46,8 ± 0,71	0,99
80	4320 - 8640	0,1177 ± 0,0074	-1,46 ± 0,24	5,1 ± 1,9	0,98

Na slici 7.4 je prikazano slaganje originalnih krivih i kvadratnih funkcija sa eksperimentalnim podacima. Kao i u slučaju EPA metode, eksperimentalni podaci iz dodatka se mnogo bolje slažu sa kvadratnim funkcijama, pogotovo u slučaju kraćih vremena izlaganja.



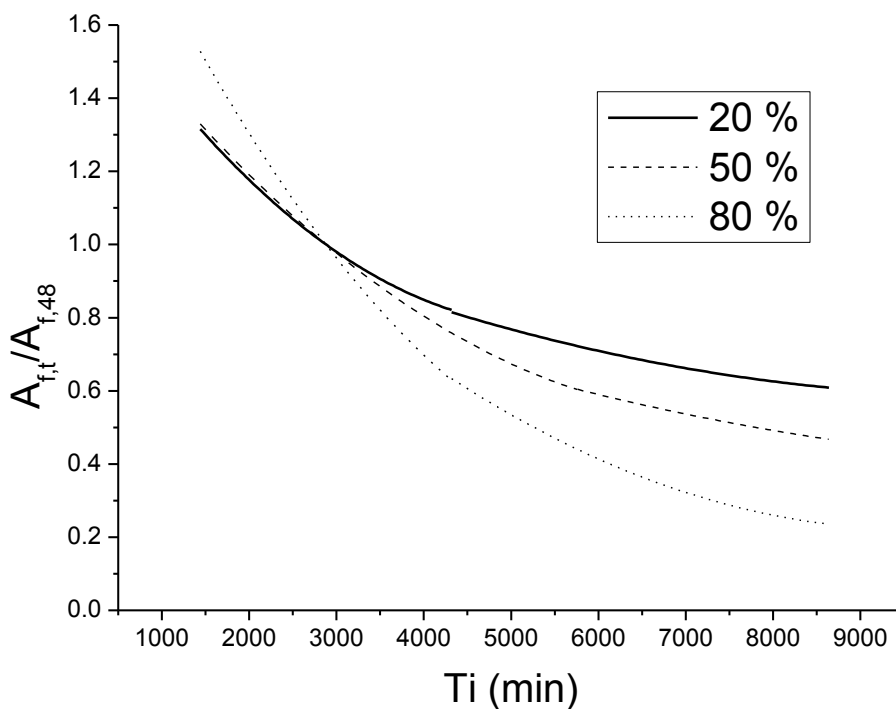
Slika 7.4 Fitovanje eksperimentalnih podataka: zavisnost A_f od T_i (dodatak EPA metode). a) originalne krive; b) kvadratne funkcije

7.5 Normirane A_f krive

Veoma važno pitanje vezano za primenu kalibracionih krivih je šta se dešava ako se odabere pogrešna A_f kriva, bilo zbog grešaka u merenju mase ili zbog aproksimacija korišćenog modela. Problem je posebno značajan kada je promena mase bliska graničnim vrednostima od 1 g i 4 g. Drugo pitanje je šta se dešava ako je vlažnost vazduha zaista između vrednosti koje odgovaraju trima krivama.

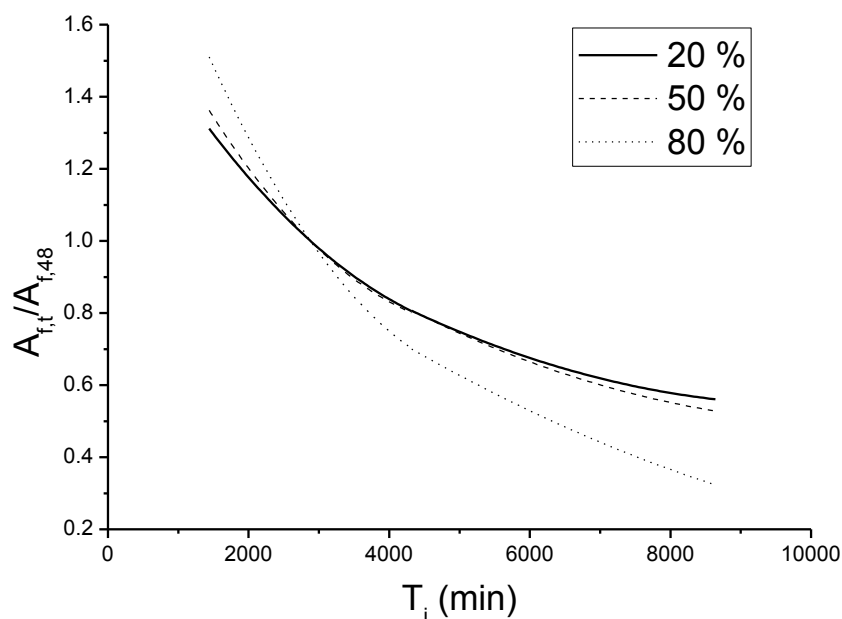
Posmatrajući slike 7.2 i 7.4, stiče se pogrešan utisak da postoje mnogo izraženije razlike faktora podešavanja za različite vlažnosti vazduha nego što je zapravo slučaj. Do toga dolazi zato što je potrebno posmatrati odnos $A_{f,t}$ i $A_{f,48}$, a ne prosto $A_{f,48}$. Tako po definiciji za 48 h navedeni odnos iznosi 1 za sve tri A_f krive i iz EPA metode, kao i iz dodatka. Na ovom mestu će biti prikazane normirane A_f krive, a uticaj pogrešnog odabira krive na rezultat i mernu nesigurnost će biti razmatran u glavi 12.

Na slici 7.5 su prikazane normirane kvadratne funkcije koje odgovaraju kalibraciji iz EPA metode. Na osnovu slike je jasno da je uticaj odabira A_f krive najmanji za vremena izlaganja koja se kreću oko 2 dana, a da je najveći za duga vremena izlaganja, oko 6 dana.



Slika 7.5 Normirane A_f krive koje odgovaraju podacima iz EPA metode

Na slici 7.6 su prikazane normirane kvadratne funkcije koje odgovaraju kalibraciji iz dodatka EPA metode. Pored sličnosti sa krivama iz EPA metode, potrebno je istaći jednu veoma bitnu razliku: normirane krive za vlažnost vazduha od 20 % i 50 % se skoro poklapaju u celom ispitivanom intervalu vremena izlaganja, pa je shodno tome uticaj vlažnosti vazduha veoma mali za niske i srednje vlažnosti. Sličan zaključak se može izvesti i na osnovu promena mase kanistera za različite vlažnosti vazduha (EPA, 1989).



Slika 7.6 Normirane A_f krive koje odgovaraju podacima iz dodatka EPA metode

7.6 Razlike između kalibracionih krivih iz EPA metode i dodatka i komentar o njihovom korišćenju

Razlike u primeni različitih modela funkcija iz EPA metode ili dodatka nisu očigledne iz prethodnih odeljaka, jer je potrebno uzeti u obzir sve tri izračunate vrednosti, $C_{f,48}$, $A_{f,48}$ i $A_{f,t}$. Sada će biti ukratko izložene razlike. U tabeli 7.4 su prikazani kalibracioni faktori određeni na osnovu podataka iz EPA metode (oznaka “m” uz C_f) i dodatka (d), koji su dobijeni korišćenjem originalnih krivih (oznaka “o”), polinomijalnih krivih (p), ali i direktnim očitavanjem vrednosti sa grafika objavljenim u EPA metodi i dodatku (g).

Tabela 7.4 Kalibracioni faktori određeni na 6 različitih načina, za različite uslove izlaganja

Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	Odgovarajuća Af kriva	C_f (m,p) l/min	C_f (m,o) l/min	C_f (m,g) l/min	C_f (d,p) l/min	C_f (d,o) l/min	C_f (d,g) l/min
1440	0	20%	0,1379	0,1266	0,1205	0,1634	0,1476	0,1476
2880	0	20%	0,1048	0,1020	0,1030	0,1246	0,1242	0,1240
4320	0	20%	0,0854	0,0876	0,0894	0,1005	0,1045	0,1063
5760	0	20%	0,0757	0,0774	0,0777	0,0862	0,0879	0,0886
7200	0	20%	0,0685	0,0694	0,0670	0,0759	0,0740	0,0758
8640	0	20%	0,0638	0,0630	0,0573	0,0699	0,0622	0,0630
1440	2,5	50%	0,1276	0,1221	0,1153	0,1550	0,1355	0,1381
2880	2,5	50%	0,0960	0,0923	0,0930	0,1138	0,1124	0,1130
4320	2,5	50%	0,0728	0,0749	0,0756	0,0918	0,0932	0,0951
5760	2,5	50%	0,0580	0,0625	0,0620	0,0777	0,0773	0,0780
7200	2,5	50%	0,0506	0,0529	0,0504	0,0671	0,0641	0,0646
8640	2,5	50%	0,0449	0,0451	0,0407	0,0601	0,0531	0,0538
1440	8	80%	0,1171	0,1104	0,0983	0,1359	0,1220	0,1226
2880	8	80%	0,0766	0,0741	0,0740	0,0900	0,0902	0,0900
4320	8	80%	0,0485	0,0528	0,0506	0,0630	0,0667	0,0670
5760	8	80%	0,0374	0,0377	0,0341	0,0496	0,0493	0,0498
7200	8	80%	0,0236	0,0260	0,0234	0,0383	0,0364	0,0364
8640	8	80%	0,0180	0,0165	0,0156	0,0291	0,0269	0,0268

Prvo je potrebno napomenuti da su polinomijalne funkcije “tačnije” od originalnih funkcija i očitavanja sa grafika, jer pokazuju mnogo bolje slaganje sa eksperimentalnim podacima. Analiza koja sledi samo pokazuje kolike se razlike unose u rezultat ako se koriste druge krive.

Poređenje kalibracionih faktora dobijenih direktnim očitavanjem sa grafika i korišćenjem originalnih krivih govori koliko su dobro originalne krive rekonstruisane. Kada je u pitanju dodatak EPA metode, vrednosti kalibracionih faktora su maltene identične. Međutim, posmatranjem kalibracionih faktora za EPA metodu, očigledno je da postoje značajne razlike (i preko 10 %), a razlog tome je što nije bilo moguće identifikovati funkciju koja bi pokazala bolje slaganje. Ipak, razlika za izlaganja od 48 sati je manja od 1 %.

Kada je u pitanju poređenje originalnih krivih i polinomijalnih funkcija, pokazuje se da su razlike u izračunatim kalibracionim faktorima od -9 % do +9 % za krive iz EPA metode i od -5 % do +15 % za krive iz dodatka. Za vreme izlaganja od 48 sati ove razlike ne prelaze 5 %, odnosno 1,3 %.

Konačno, potrebno je uporediti EPA metodu sa dodatkom, za šta su korišćene polinomijalne funkcije, jer se najbolje slažu sa eksperimentalnim podacima. Vrednosti kalibracionih faktora su veće (a koncentracije radona manje) za dodatak nego za EPA metodu od 8 % do 40 %, pri čemu su razlike najmanje za nisku vlažnost vazduha, a najveće za visoku. Ako se posmatraju samo izlaganja od 48 sati, onda su razlike oko 15 %.

Ono što je očigledno je da kakvo god poređenje kalibracionih faktora da se izvrši, razlike su najmanje za vreme izlaganja za 48 sati, što je preporuka za korišćenje upravo tog vremena izlaganja. Pogotovo je bitno napomenuti da uticaji vlage i kretanja vazduha, koje je nemoguće kontrolisati u realnim merenjima, drastično rastu sa produžavanjem vremena izlaganja preko 3 dana.

7.7 Komentar o korišćenju kalibracionih krivih

Razlike između kalibracionih funkcija dobijenih na osnovu EPA metode i dodatka pokazuju koliko veliki može da bude uticaj kretanja vazduha na izmerenu koncentraciju radona. S obzirom na to da nije potpuno jasno koji uslovi u radonskoj

komori najbolje odgovaraju realnim uslovima merenja, kao ni da li je moguće odabrati takve uslove kalibracije koji bi odgovarali svim realnim uslovima merenja, odabir kalibracionih funkcija je veoma težak zadatak. Međulaboratorijska poređenja su dobar način da se uporede rezultati dobijeni korišćenjem različitih kalibracionih faktora sa rezultatima dobijenim drugim metodama. Međutim, ostaje otvoreno pitanje da li kretanje vazduha utiče i na druge metode i da li je taj efekat uzet u obzir.

Kada su u pitanju rezultati prikazani u ovom radu, originalne krive su korišćene uglavnom u starijim proračunima, zbog relativne jednostavnosti. Polinomijalne funkcije su primenjivane u novijim proračunima uz korišćenje specijalno izrađenog softvera. Očitavanje sa grafika nije korišćeno, zbog velike mogućnosti greške u očitavanju i dugog vremena potrebnog za taj način računanja.

Tokom uspostavljanja i akreditovanja metode, korišćene su originalne krive iz EPA metode, pa je i za merenja iz obima akreditacije korišćena EPA metoda (Gray and Windham, 1987). Tokom višegodišnjeg učešća u međulaboratorijskim poređenjima i eksperimentalnog rada, primećeno je da rezultati određeni na osnovu dodatka (EPA, 1989) pokazuju bolje slaganje sa referentnim vrednostima, kao i sa vrednostima određenim drugim metodama, što je prikazano u glavi 11. Takođe su za dodatak poznate promene mase za vremena izlaganja različita od 48 sati, što omogućava poređenje sa promenom mase zabeleženom u INN Vinča (glava 10). Zbog toga su za veliku mernu kampanju u INN Vinča za potrebe ove teze korišćene polinomijalne funkcije iz dodatka.

8 Određivanje spektralnog regiona od interesa i jednostavan model merne nesigurnosti

Kada su objavljene EPA metoda i njen dodatak, koncept merne nesigurnosti još uvek nije bio opšte prihvaćen, već je bila primenjivana stara teorija grešaka. Zbog toga EPA metoda ne daje opis procedure određivanja merne nesigurnosti. Međutim, i kada je u pitanju određivanje greške merenja, u obzir je uzet samo odbroj u gama-spektru izlaganih kanistera (Gray and Windham, 1987), što u najvećem broju slučajeva nije adekvatno. Takođe, veliki broj rezultata merenja ovom metodom koji je dostupan u radovima, naveden je bez merne nesigurnosti (Pantelić et al, 2014). Kao što je već diskutovano, identifikacija doprinosa mernoj nesigurnosti je zadatak ispitivača. To važi čak i u slučaju da je u standardu opisan proračun merne nesigurnosti, jer se u primeni metode mogu javiti drugi doprinosi koji nisu uzeti u obzir. S jedne strane, postoji težnja da se identifikuje što više doprinosa, kako bi se poboljšalo poznavanje merne nesigurnosti i samog rezultata merenja. S druge strane, ukoliko budžet merne nesigurnosti postane previše složen, povećava se vreme potrebno za realizaciju metode, cena metode, ali i vreme obuke osoblja koje sprovodi metodu. Takođe se povećava verovatnoća greške u proračunu. Zbog toga je važno identifikovati sve značajne doprinose, da merna nesigurnost ne bi bila potcenjena, ali je jednako važno zanemariti male doprinose koji ne utiču na ukupnu mernu nesigurnost.

Koncentracija radona se računa prema jednačini 8.1 (ponovljena jednačina 4.1 zbog preglednosti), gde oznake imaju isto značenje kao u glavi 4:

$$A_{Rn} = \frac{N}{T_s T_e C_f D_f E_f} \quad (8.1)$$

Najočigledniji način određivanja merne nesigurnosti je tako što se direktno primeni jednačina 5.8 i zatim odredi svaki sabirak dobijene sume pojedinačno. Pošto je u primeni EPA metode u INN Vinča unapred poznato da su pojedini doprinosi mernoj nesigurnosti oko 5 % ($k = 1$), doprinosi za koje se zaključi da su manji od 0,1 % neće biti razmatrani pri pravljenu budžeta merne nesigurnosti (Pantelić et al, 2015b).

U odeljcima koji slede će biti opisan model budžeta merne nesigurnosti koji je korišćen u referencama (Pantelić et al, 2014; Pantelić et al, 2015b), a istovremeno će na

osnovu izvedenih formula biti izračunata merna nesigurnost za realan primer merenja. U glavi 12 će biti diskutovana ograničenja ovog modela, a dodatna pažnja će biti posvećena mernoj nesigurnosti kalibracionog faktora. Vreme sakupljanja gama-spektra i vreme izlaganja kanistera neće biti detaljno razmatrani, zbog mernih nesigurnosti ispod 0,1 %, $k = 1$ (0,02 % i manje od 0,05 %, redom).

8.1 Merna nesigurnost određivanja efikasnosti detektora

U merenjima u INN Vinča, efikasnost detektora je određivana tako što je neto odbroj po minutu u spektru standardnog kanistera deljen aktivnošću kanistera. Pošto standardni kanister ima istu geometriju kao i kanisteri korišćeni za merenja, istu masu i isti matriks, korekcije na ove parametre nisu rađene. Pretpostavljeno je da male razlike između kanistera koje svakako moraju postojati zanemarljivo doprinose mernoj nesigurnosti u poređenju sa drugim uticajnim veličinama. Neto odbroj u spektru standarda, N_s , određen je tako što je od odbroja u spektru standarda (G_s) oduzet odbroj u spektru fonskog kanistera (B_s). Vreme merenja je isto pri određivanju efikasnosti kao i pri drugim merenjima, pa ima istu oznaku. Aktivnost standarda je označena sa A_s , pa se efikasnost određuje prema jednačini 8.2:

$$E_f = \frac{G_s - B_s}{T_s * A_s} = \frac{N_s}{T_s * A_s} \quad (8.2)$$

Merna nesigurnost efikasnosti se računa prema jednačini 8.3.

$$\left(\frac{u_{E_f}}{E_f}\right)^2 = \left(\frac{u_{N_s}}{N_s}\right)^2 + \left(\frac{u_{T_s}}{T_s}\right)^2 + \left(\frac{u_{A_s}}{A_s}\right)^2 \quad (8.3)$$

pa je merna nesigurnost neto odbroja, u slučaju određivanja efikasnosti, kao i u drugim slučajevima, najzgodnije izraziti kao relativnu mernu nesigurnost. Pošto G_s i B_s podležu Poasonovoj raspodeli, njihova standardna merna nesigurnost je jednaka korenu odbroja, pa važi jednačina 8.4:

$$\left(\frac{u_{N_s}}{N_s}\right)^2 = \frac{u_{G_s}^2 + u_{B_s}^2}{(G_s - B_s)^2} = \frac{\sqrt{G_s}^{-2} + \sqrt{B_s}^{-2}}{(G_s - B_s)^2} = \frac{G_s + B_s}{(G_s - B_s)^2} \quad (8.4)$$

Tipične vrednosti G_s su za NaI detektor bile 84000 odbroja, a B_s oko 2000, pa je relativna merna nesigurnost neto odbroja pri određivanju efikasnosti standarda bila oko 0,35 % (kod korišćenja HPGe spektrometara se merna nesigurnost N_s kretala od 0,3 %

do 0,5 %). Korišćeni standard je prema sertifikatu imao aktivnost 698 ± 70 Bq ($k = 2$), pa je relativna standardna merna nesigurnost 5 %. Konačno, vreme merenja je 1800 sekundi, a merna nesigurnost određivanja vremena 1 s ($k = 1,73$, pravougaona raspodela), pa je $u_{t_s}/t_s \approx 0,03\%$. Doprinos mernoj nesigurnosti t_s će zbog toga biti zanemaren.

8.2 Merna nesigurnost korekcije na vreme poluraspada radona

Da bi se odredila merna nesigurnost faktora D_f , pogodno je jednačinu 4.3 izraziti kao u jednačini 8.5:

$$D_f = e^{-\lambda T_r} \quad (8.5)$$

gde je $\lambda = \ln(2)/t_{1/2,Rn}$, odnosno konstanta radioaktivnog raspada radona. Merna nesigurnost λ je manja od 0,02 %, s obzirom na korišćene vrednosti za vreme poluraspada radona od 3,8232(8) dana, $k = 1$ (BIPM, 2008a). Ovaj doprinos je zanemarljiv, pa neće dalje biti razmatran.

Merna nesigurnost D_f se tada može predstaviti jednačinom 8.6, odnosno relativna merna nesigurnost jednačinom 8.7.

$$u_{D_f}^2 = \left(\frac{\partial(e^{-\lambda T_r})}{\partial T_r} \right)^2 u_{T_r}^2 = (-\lambda e^{-\lambda T_r} u_{T_r})^2 \quad (8.6)$$

$$\frac{u_{D_f}}{D_f} = \lambda u_{T_r} \quad (8.7)$$

Ako je standardna merna nesigurnost vremena raspada 0,7 minuta (početak izlaganja, kraj izlaganja i početak gama-spektrometrijskog merenja su određeni sa mernom nesigurnošću 1 minut ($k = 1,73$), merne nesigurnosti su nekorelisane, a kombinovana merna nesigurnost se dobija primenom jednačine 5.8 na jednačinu 4.4), za relativnu mernu nesigurnost D_f se dobija vrednost od oko 0,01 %, koja ne zavisi od vremena raspada. Ovaj doprinos mernoj nesigurnosti će u daljoj diskusiji biti zanemaren.

8.3 Merna nesigurnost kalibracionog faktora

Kao što je u proračunu koncentracije radona najveći problem određivanje kalibracionog faktora, tako je i određivanje odgovarajuće merne nesigurnosti najveći problem u pravljenju budžeta merne nesigurnosti.

U EPA metodi i njenom dodatku nije napravljena nikakva procena merne nesigurnosti ili greške određivanja kalibracionog faktora (niti $C_{f,48}$, $A_{f,48}$, $A_{f,t}$). Takođe nije poznata merna nesigurnost referentne koncentracije radona, određivanja vlažnosti vazduha i efikasnosti detektora. Može se pretpostaviti da su merna nesigurnost vremena izlaganja i vremena merenja zanemarljive, a navedena je greška merenja mase od 0,1 g. Prema tome, ne postoje nikakvi podaci o mernoj nesigurnosti tipa B, dok je mernu nesigurnost tipa A moguće odrediti statističkom obradom dostupnih podataka.

Kada je u pitanju merna nesigurnost tipa B, njena procena je napravljena tako što je razmatran način na koji se obavlja kalibracija u radonskoj komori. Merna nesigurnost koncentracije radona je procenjena na osnovu dostupnih podataka o primarnim standardima. Pre 1995. godine, korišćeni su relativni standardi bazirani na ^{226}Ra , čija je koncentracija bila poznata sa relativnom standardnom mernom nesigurnošću od 0,6 % do 1 %. Kada je u pitanju koncentracija radona, najbolja postignuta merna nesigurnost pomoću ovakvih standarda je bila 0,7 % (De Felice, 2007). S obzirom na to da je EPA udaljena za jedan nivo od primarne laboratorije, merna nesigurnost koncentracije radona je procenjena na 1 % ($k = 1$). Aktivnost standarda koji je korišćen za određivanje efikasnosti detektora je takođe određena na osnovu aktivnosti radijumskog standarda, pa je procenjena ista merna nesigurnost. U EPA metodi je navedeno da kanisteri sadrže 70 ± 1 g aktivnog uglja, bez navođenja intervala pouzdanosti (Gray i Windham), što iznosi 0,83 % ako se pretpostavi pravougaona raspodela i $k = 1,73$. Isto važi i za komercijalno dostupne kanistere. Uzevši u obzir tu činjenicu, kao i činjenicu da je prema specifikacijama komercijalnih kanistera korišćen isti tip i granulacija uglja kao i za EPA kanistere, merna nesigurnost koja potiče od razlika izrade kanistera je grubo procenjena na 1 % ($k = 1$). Konačno, kalibracioni faktor zavisi po složenoj zavisnosti od relativne vlažnosti vazduha, a vlažnost je procenjena na osnovu promene mase kanistera. Tri doprinosa mernoj nesigurnosti tipa B koja se mogu identifikovati su merna nesigurnost kalibracije vage i vlagomera i merna nesigurnost koja potiče od primenjenog fizičkog modela zavisnosti

vlažnosti vazduha od promene mase. Ovaj doprinos je takođe procenjen na 1 % ($k = 1$). Konačno, primenom jednačine 5.12, s obzirom na to da postoje 4 doprinosa mernoj nesigurnosti tipa B od kojih je svaki procenjen na 1 %, za ukupnu mernu nesigurnost tipa B se dobija 2 % ($k = 1$). Ovaj doprinos mernoj nesigurnosti je uziman u obzir i kada su primenjivane originalne EPA krive, kao i kada su primenjivane linearne i kvadratne funkcije i obeležen je sa $u_{C_f,B}$.

Nasuprot mernoj nesigurnosti tipa B, merna nesigurnost tipa A je računata primenom statističkih formula i to samo u slučaju kada su korišćene polinomijalne funkcije, što je detaljno izloženo u glavi 12. Ovaj doprinos je označen sa $u_{C_f,A}$ i smatrano je da je jednak nuli u slučaju korišćenja originalnih EPA krivih.

8.4 Budžet merne nesigurnosti

Kada se uzmu u obzir samo značajni doprinosi mernoj nesigurnosti pobrojani u ovoj glavi, može se konstruisati budžet merne nesigurnosti koji je modelovan jednačinom 8.8 (Pantelić et al, 2014, 2015b).

$$\left(\frac{u_{ARn}}{A_{Rn}}\right)^2 = \frac{G_s + B_s}{(G_s - B_s)^2} + \left(\frac{u_{A_s}}{A_s}\right)^2 + \frac{G + B}{(G - B)^2} + \left(\frac{u_{C_f,B}}{C_f}\right)^2 + \left(\frac{u_{C_f,A}}{C_f}\right)^2 \quad (8.8)$$

Veličine G i B su odbroj u spektru izlaganog kanistera i fona i nisu posebno razmatrane, već su primenjeni zaključci iz diskusije o određivanju efikasnosti detektora (odeljak 8.1). Pri tome, B_s i B mogu biti identični samo u veoma retkim slučajevima kada se merenje obavlja isti dan kao i određivanje efikasnosti detektora i u tom slučaju su njihove merne nesigurnosti potpuno korelisane. Međutim, taj slučaj neće biti razmatran.

Primer budžeta merne nesigurnosti izrađenog na osnovu jednačine 8.8 uz korišćenje originalnih EPA krivih je dat u tabeli 8.1. Koeficijenti osetljivosti nisu navedeni jer su svi jednaki jedinici.

Potrebno je naglasiti da je u tabeli 8.1 merna nesigurnost izražena sa faktorom pokrivanja 1. Međutim, rezultati koncentracije radona će u ovom radu biti izražavani sa faktorom pokrivanja 2 koji odgovara verovatnoći od 95 %, zbog pretpostavljene normalne raspodele.

Tabela 8.1 Bužet merne nesigurnosti određivanja koncentracije radona pomoću NaI spektrometra

Redni broj	Izvor merne nesigurnosti	Vrednost veličine	Tip merne nesigurnosti, raspodela	Relativna standardna m.n, $u_{r,i}$	$u_{r,i}^2$
1.	Neto odbroj u spektru standarda	82000	A, Poasonova	0,35 %	$1,2 \times 10^{-5}$
2.	Aktivnost standarda	698 Bq	B, normalna	5,0 %	0,0025
3.	Neto odbroj u spektru kanistera	2000	A, Poasonova	3,9 %	0,0015
4.	Kalibracioni faktor, tip B	0,090 l/min	B, pravougaona	2,0 %	0,0004
5.	Kalibracioni faktor, tip A	0,090 l/min	A, normalna	0	0
	Kombinovana merna nesigurnost		B, normalna	6,7 %	0,0044

Od pobrojanih doprinosa mernoj nesigurnosti, doprinosi 1, 2 i 4 se vrlo malo menjaju tokom dugog vremenskog perioda koji se meri godinama (osim u slučaju nabavke nove opreme, standarda, kanistera itd.), a doprinos 5 će biti detaljnije razmotren u glavi 12. Jedini doprinos koji se može značajno menjati je doprinos 3, odnosno merna nesigurnost neto odbroja u spektru kanistera. U navedenom primeru, odbroj u spektru kanistera je 4000, a odbroj u spektru fona 2000, što odgovara koncentraciji radona od oko 80 Bq/m^3 (u uslovima srednje vlažnosti vazduha, pri čemu je vreme izlaganja 3 dana, a merenje se obavlja 1 dan po zatvaranju kanistera). Kada su u pitanju visoke koncentracije radona od oko 800 Bq/m^3 , neto odbroj se u navedenim uslovima merenja kreće oko 20000, a standardna relativna merna nesigurnost oko 0,8 %. Tada ovaj doprinos mernoj nesigurnosti postaje jako mali, a kombinovana merna nesigurnost pada na oko 5,5 % ($k = 1$). Konačno, u slučaju male koncentracije radona koja je blizu granice detekcije metode, relativna merna nesigurnost značajno raste. Tako koncentraciji od oko 20 Bq/m^3 odgovara neto odbroj 500 sa mernom nesigurnošću od 14 % ($k = 1$), pa tada merna nesigurnost u_N postaje najznačajniji doprinos ukupnoj mernoj nesigurnosti.

8.5 Merna nesigurnost srednjih vrednosti koncentracije radona

S obzirom na to da se EPA metoda koristi za merenje koncentracije radona u kratkim intervalima, za određivanje srednje mesečne, sezonske ili godišnje koncentracije je neophodno izračunati srednju vrednost više merenja. Isto se dešava i kada se EPA metoda poredi sa drugim metodama koje zahtevaju duža izlaganja (na primer mesec dana, godinu dana). U takvim slučajevima je potrebno odrediti i mernu nesigurnost srednje vrednosti, uzevši u obzir kovarijanse pojedinačnih koncentracija radona.

Srednja vrednost koncentracije radona se računa po jednačini 8.9:

$$\overline{A_{Rn}} = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m A_{Rn,i} = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m \frac{N_i}{T_{s,i} T_{e,i} C_{f,i} D_{f,i} E_{f,i}} \quad (8.9)$$

gde je m broj nezavisno određenih koncentracija radona, a index i se odnosi na i -to merenje.

Merna nesigurnost srednje vrednosti se dobija primenom jednačine 5.13:

$$u_{\overline{A_{Rn}}}^2 = \frac{1}{m^2} \sum_{i=1}^m u_{A_{Rn,i}}^2 + 2 \sum_{i=1}^{m-1} \sum_{j=i+1}^m \frac{\partial \overline{A_{Rn}}}{\partial A_{Rn,i}} \frac{\partial \overline{A_{Rn}}}{\partial A_{Rn,j}} u(A_{Rn,i}, A_{Rn,j}) \quad (8.10)$$

Svi izvodi $\overline{A_{Rn}}$ po $A_{Rn,i}$ su jednaki m^{-1} , što značajno uprošćava jednačinu 8.10. Da bi se odredila kovarijansa, potrebno je detaljnije razmotriti jednačinu 8.9. S obzirom na to da su merne nesigurnosti $T_{s,i}$, $T_{e,i}$ i $D_{f,i}$ zanemarene kod računanja pojedinačnih u_{A_i} , one mogu biti zanemarene i kod računanja kovarijansi. Kada je u pitanju neto odbroj kod različitih merenja, on je nezavisno određen i ne postoji korelacija između različitih N_i . Kada je u pitanju $E_{f,i}$, najveći deo merne nesigurnosti potiče od merne nesigurnosti aktivnosti standarda. Čak i kada se gama-spektrometrijska merenja izvode na različitim detektorima, njihova efikasnost je određena pomoću istog standarda. Prema tome, merna nesigurnost standarda će na isti način uticati na svako $E_{f,i}$, a samim tim i na svako $A_{Rn,i}$. Konačno, C_f se računa po složenoj funkciji pa u_{C_f} i samo predstavlja kombinovanu mernu nesigurnost, koja ima doprinose tipa A i tipa B. Sve veličine koje doprinose mernoj nesigurnosti C_f , a same imaju mernu nesigurnost tipa B, su potpuno korelisane za različite $A_{Rn,i}$. Na ovom mestu će biti pretpostavljeno da veličine koje doprinose

mernoj nesigurnosti C_f , a same imaju mernu nesigurnost tipa A, nisu korelisane za različite $A_{Rn,i}$. To je samo delimično tačno, što se može videti na osnovu razmatranja iz glave 12, ali egzaktno računanje sume ovih kovarijansi predstavlja veoma složen problem i prevazilazi obim ovog rada. Pored toga, iako nije zanemarljiv, ovaj doprinos je značajno manji od drugih doprinosa mernoj nesigurnosti srednje vrednosti koncentracije radona, na prvom mestu doprinosa efikasnosti detektora.

Egzaktno određivanje kovarijanse pretpostavlja traženje izvoda $A_{Rn,i}$ i $A_{Rn,j}$ po svim veličinama od kojih zavise $C_{f,i}$ i $E_{f,i}$, odnosno nalaženje sume definisane jednačinom 5.15. Tada svaki sabirak koji se dobija diferenciranjem po veličini čija je vrednost nezavisno određena za $A_{Rn,i}$ i $A_{Rn,j}$ postaje jednak nuli, dok preostaju doprinosi veličina koje su na isti način određene. Rešavanjem jednačine se primećuje da kovarijansa predstavlja zbir kvadrata relativnih mernih nesigurnosti, što omogućava da se jednačina 8.10 jednostavnije napiše:

$$m^2 u_{A_{Rn}}^2 = \sum_{i=1}^m u_{A_{Rn,i}}^2 + 2 \sum_{i=1}^{m-1} \sum_{j=i+1}^m \left(\frac{\partial A_{Rn,i}}{\partial C_{f,i}} \frac{\partial A_{Rn,j}}{\partial C_{f,j}} u_{C_{f,i},B} u_{C_{f,j},B} + \frac{\partial A_{Rn,i}}{\partial E_{f,i}} \frac{\partial A_{Rn,j}}{\partial E_{f,j}} u_{E_{f,i},B} u_{E_{f,j},B} \right) \quad (8.11)$$

$$m^2 u_{A_{Rn}}^2 = \sum_{i=1}^m u_{A_{Rn,i}}^2 + 2 \sum_{i=1}^{m-1} \sum_{j=i+1}^m \left(\frac{-N_i}{T_{s,i} T_{e,i} C_{f,i} D_{f,i} E_{f,i} C_{f,i}} \frac{1}{C_{f,i}} u_{C_{f,i},B} \frac{-N_j}{T_{s,j} T_{e,j} C_{f,j} D_{f,j} E_{f,j} C_{f,j}} \frac{1}{C_{f,j}} u_{C_{f,j},B} + \frac{-N_i}{T_{s,i} T_{e,i} C_{f,i} D_{f,i} E_{f,i} E_{f,i}} \frac{1}{E_{f,i}} u_{E_{f,i},B} \frac{-N_j}{T_{s,j} T_{e,j} C_{f,j} D_{f,j} E_{f,j} E_{f,j}} \frac{1}{E_{f,j}} u_{E_{f,j},B} \right) \quad (8.12)$$

$$m^2 u_{A_{Rn}}^2 = \sum_{i=1}^m u_{A_{Rn,i}}^2 + 2 \sum_{i=1}^{m-1} \sum_{j=i+1}^m \left(A_{Rn,i} \frac{u_{C_{f,j},B}}{C_{f,i}} A_{Rn,j} \frac{u_{C_{f,j},B}}{C_{f,j}} + A_{Rn,i} \frac{u_{E_{f,j},B}}{E_{f,i}} A_{Rn,j} \frac{u_{E_{f,j},B}}{E_{f,j}} \right) \quad (8.13)$$

gde je suma parcijalnih izvoda $A_{Rn,i}$ po svim veličinama od kojih zavisi $C_{f,i}$ simbolički napisana kao:

$$\frac{\partial A_{Rn,i}}{\partial C_{f,i}} \quad (8.14)$$

a analogno tome i suma parcijalnih izvoda $A_{Rn,i}$ po svim veličinama od kojih zavisi $E_{f,i}$.

U jednačinama 8.11 do 8.13, sa $u_{C_f,B}$ i $u_{E_f,B}$ su predstavljeni samo doprinosi mernoj nesigurnosti tipa B, odnosno doprinosi onih veličina koje su na isti način određene za svako merenje koncentracije radona. Odnosi ovih mernih nesigurnosti i odgovarajućih $C_{f,i}$, odnosno $E_{f,i}$, su isti za svako merenje, dok god se koristi jedan komplet radioaktivnih standarda. Ukoliko bi se standardi promenili u toku kampanje, razmatranje više ne bi važno. Konkretno, kada su u pitanju rezultati merenja prikazani u ovom radu, za C_f ovaj odnos iznosi 2 % i jednak je procenjenoj relativnoj mernoj nesigurnosti tipa B kalibracionog faktora. Za E_f , ovaj odnos je jednak relativnoj mernoj nesigurnosti sa kojom je određena aktivnost standarda i iznosi 5 %. Daljim uprošćavanjem jednačine 8.13, dobija se:

$$m^2 u_{\overline{A_{Rn}}}^2 = \sum_{i=1}^m u_{A_{Rn,i}}^2 + 2 \sum_{i=1}^{m-1} \sum_{j=i+1}^m A_{Rn,i} A_{Rn,j} (0,02^2 + 0,05^2) \quad (8.15)$$

$$u_{\overline{A_{Rn}}}^2 = \frac{1}{m^2} \left(\sum_{i=1}^m u_{A_{Rn,i}}^2 + 0,0058 \sum_{i=1}^{m-1} \sum_{j=i+1}^m A_{Rn,i} A_{Rn,j} \right) \quad (8.16)$$

Merna nesigurnost srednjih vrednosti je u ovom radu računata korišćenjem jednačine 8.16.

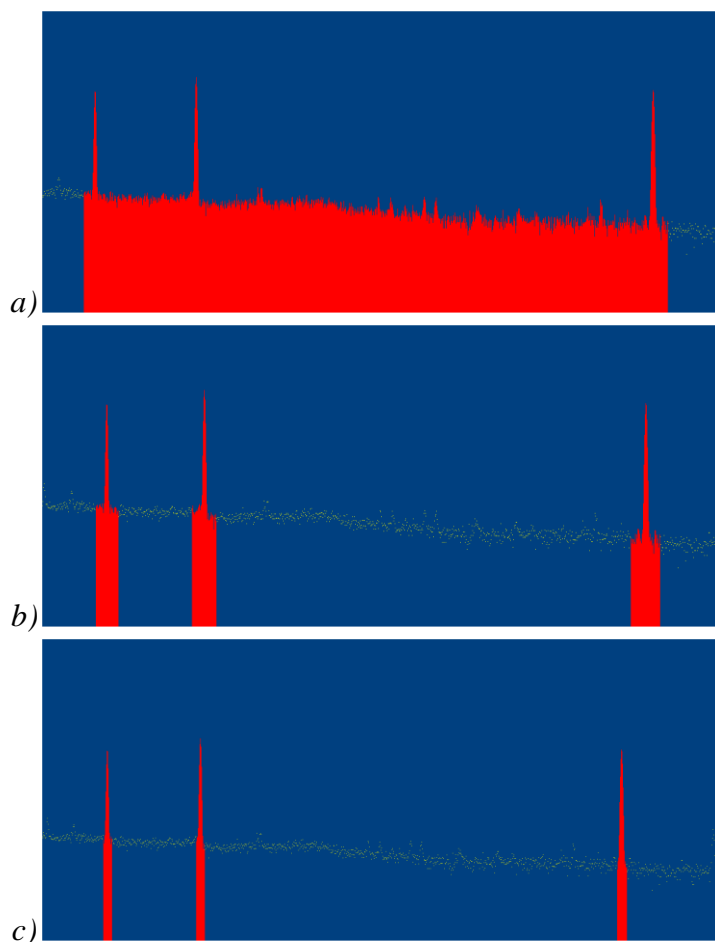
8.6 Određivanje spektralnog regiona od interesa

Prethodna diskusija je bila zasnovana na korišćenju jednog kontinualnog ROI. Međutim, ROI je moguće postaviti i drugačije, pri čemu se ne dovodi u pitanje ispravnost primene metode. Tri veoma bitna uslova koja je potrebno ispuniti su da ROI obuhvati gama-linije sa visokim prinosom koje se koriste za posredno određivanje koncentracije radona (295 keV, 352 keV, 609 keV), zatim da linije koje bi mogle da izazovu interferencije ne budu obuhvaćene (diskutovano u glavi 12) i konačno da ROI bude isti pri merenju izlaganog kanistera, pri merenju fona i pri određivanju efikasnosti gama-spektrometra. Moguće je koncentraciju radona određivati i na osnovu samo jedne od ove tri linije, ali bi tada merna nesigurnost bila veća, kao i granica detekcije metode. Naravno, ako se promeni ROI koji se koristi za merenje izlaganog kanistera, neophodno je i fon meriti sa istim ROI i odrediti efikasnost spektrometra na isti način.

8.6.1 Tri načina uspostavljanja ROI koji obuhvata značajne gama-linije ^{214}Pb i ^{214}Bi

Razmatrani su spektri skupljeni pomoću tri gama-spektrometra: Ortec HPGe, Canberra HPGe i Ortec NaI. Ortec spektrometri su korišćeni sa softverom GammaVision 32, a Canberra sa Genie 2K.

Na slici 8.1 je dat uporedan prikaz tri načina određivanja ROI. Prvi način predstavlja obeležavanje regiona koji bi obuhvatio sve tri značajne gama-linije (slika 8.1 a). Drugi način predstavlja određivanje tri ROI od strane ispitivača (slika 8.1 b), a treći automatsko određivanje ROI pomoću softvera GammaVision 32, odnosno Genie 2k (slika 8.1 c) (Pantelić et al, 2014).



Slika 8.1 Određivanje ROI: a) kontinualni ROI koji obuhvata sve tri linije; b) ROI podeljen na tri dela koje je odredio ispitivač; c) ROI podeljen na tri dela koje je odredio softver GammaVision 32 (preuzeto iz Pantelić et al, 2014)

S obzirom na široke maksimume koji se dobijaju korišćenjem NaI spektrometra i nemogućnosti softvera da prepozna takve maksimume, automatsko određivanje ROI nije primenjeno za NaI spektrometar (Pantelić et al, 2014)..

U razmatranju koji ROI je optimalan za korišćenje, primenjena su tri kriterijuma. Prvo, razmatrana je kombinovana merna nesigurnost u zavisnosti od izbora ROI. Drugo, razmatrano je vreme potrebno za merenje i proračun u zavisnosti od izbora ROI. Treće, razmatran je uticaj nestabilnosti gama-spektrometrijskog sistema na rezultate.

U tabeli 8.2 su prikazani rezultati po 10 merenja koncentracija radona u beogradskim školama i stanovima, izvršenih na tri gama-spektrometra. Spektri su obrađivani po sve tri metode (označene kao metoda a, b i c), osim u slučaju NaI detektora gde nije primenjena samo metoda c. Kalibracioni faktor je određivan na osnovu originalnih krivih iz EPA metode (Pantelić et al, 2014).

Potrebno je napomenuti da je za ovo poređenje odabrano po 10 spektara sa svakog spektrometra, pri čemu su odgovarajući rezultati koncentracije radona birani tako da se pokrije što veći opseg. Međutim, na različitim spektrometrima su snimani različiti kanisteri (Pantelić et al, 2014).

Poređenjem rezultata dobijenih korišćenjem različitih ROI, može se zaključiti da razlike nisu statistički značajne (apsolutna vrednost vrednost z-testa je manja od 1,96 za svaki par vrednosti). Kada je u pitanju merna nesigurnost, ona je najveća ukoliko se koristi jedan kontinualni ROI, što je posledica manjeg odnosa G i B nego kod drugih metoda. Razlika je najveća kod koncentracija radona koje su blizu granice detekcije metode, a potpuno nestaje već za trostruko veće koncentracije. Sa stanovišta jednostavnosti, u slučaju jednog kontinualnog ROI je potrebno izvršiti tri puta manje očitavanja odbroja i jednostavniji je proračun merne nesigurnosti. Konačno, nestabilnosti gama-spektrometrijskog sistema (odnosno mala pomeranja energetske kalibracije) će mnogo manje uticati na širi ROI. Tako je za slučaj kada se koriste tri ROI mnogo češće potrebno rekalibrisati sistem (Pantelić et al, 2014).

Zbog malih razlika u iznosu merne nesigurnosti i drugih prednosti koje nosi korišćenje jednog ROI, a i zbog preporuke u EPA metodi (Gray and Windham, 1987), rezultati merenja prikazani u ovom radu su dobijeni korišćenjem jednog ROI, odnosno metode a na slici 8.1.

Tabela 8.2 Merna nesigurnost određivanja koncentracije radona u zavisnosti od podešavanja ROI na Ortec HPGe detektoru (OGe), Canberra HPGe detektoru (CGe) i NaI detektoru za po 10 radonskih kanistera (rezultati objavljeni u Pantelić et al, 2014) – prvi deo

Det.	Metoda A		Metoda B		Metoda C	
	A_{Rn} (Bq/m ³)	U_r (k = 2) (%)	A_{Rn} (Bq/m ³)	U_r (k = 2) (%)	A_{Rn} (Bq/m ³)	U_r (k = 2) (%)
OGe	19	26	23	21	21	21
	25	24	26	20	25	19
	58	17	53	17	55	16
	61	15	60	15	61	15
	129	14	124	14	122	14
	210	12	204	13	204	13
	598	12	599	12	601	12
	850	12	855	12	856	12
	1197	12	1219	12	1205	12
	1655	12	1670	12	1676	12
CGe	21	24	21	20	22	17
	24	20	24	19	24	17
	51	14	51	15	51	14
	99	13	99	16	97	15
	144	14	153	14	150	14
	170	13	169	13	168	13
	366	12	367	12	368	12
	445	12	446	12	448	12
	519	12	526	12	524	12
	792	12	802	12	799	12

Tabela 8.2 Merna nesigurnost određivanja koncentracije radona u zavisnosti od podešavanja ROI na Ortec HPGe detektoru (OGe), Canberra HPGe detektoru (CGe) i NaI detektoru za po 10 radonskih kanistera (rezultati objavljeni u Pantelić et al, 2014) – drugi deo

Det.	Metoda A		Metoda B		Metoda C	
	A_{Rn} (Bq/m ³)	U_r (k = 2) (%)	A_{Rn} (Bq/m ³)	U_r (k = 2) (%)	A_{Rn} (Bq/m ³)	U_r (k = 2) (%)
NaI	21	24	23	22	/	/
	36	18	39	18	/	/
	56	16	60	15	/	/
	129	13	135	13	/	/
	183	12	183	12	/	/
	243	12	253	12	/	/
	327	12	333	12	/	/
	415	12	419	12	/	/
	623	12	633	12	/	/
	966	12	979	12	/	/

9 Merna kampanja u laboratoriji INN Vinča

Između februara 2015. godine i aprila 2016. godine, sprovedena je merna kampanja u laboratorijskim prostorijama u INN Vinča, pri čemu su radonski kanisteri tokom gotovo cele kampanje menjani dvaput nedeljno (izuzetak je period tokom novogodišnjih praznika). Prema saznanjima autora, ovo je prvi put da je ovakva merna kampanja sprovedena sa ugljenim kanisterima. Pored ugljenih kanistera, tokom većeg dela kampanje su bili postavljeni i trag detektori, o čemu će biti detaljnije diskutovano u glavi 11.

Kampanja je omogućila da se sprovede nekoliko istraživanja. Prvo, poređene su srednje vrednosti koncentracije radona izmerene ugljenim kanisterima sa srednjim vrednostima izmerenim trag detektorima. Drugo, ispitane su mesečne i sezonske varijacije koncentracije radona. Treće, ispitivana je zavisnost promene mase kanistera od vlažnosti vazduha i poređena sa podacima iz EPA metode (glava 10). Četvrto, u okviru studije slučaja je izračunata efektivna doza za zaposlene.

9.1 Preliminarna merenja i odabir pozicija za postavljanje kanistera

Skica objekta u kome je ispitivana koncentracija radona je prikazana na slici 9.1. Objekat je prizeman i bez podruma. Kalibracione sobe i magacin nemaju prozore, ali kalibracione sobe imaju veštačku ventilaciju. Prema radnim procedurama, vrata ovih prostorija su uvek zatvorena kada se u njima ne radi, a uvek otvorena kada se u njima radi. Tako su kalibracionim sobama u prosečnom radnom danu vrata otvorena nekoliko sati, dok su vrata magacina otvorena nekoliko sati mesečno, pa se u ovoj prostoriji očekuje najveća koncentracija radona. Sve ostale prostorije imaju prozore, a centralna laboratorija/radionica pored toga ima i veštačku ventilaciju. Kalibracione sobe imaju betonske zidove, a ostatak zgrade je zidan ciglom. Podovi su izrađeni od betona i na njima se nalazi topli pod.



Slika 9.1 Skica objekta u kome su sprovedena ispitivanja koncentracije radona

Na slici 9.1 su prikazane i pozicije na kojima su postavljeni kanisteri u okviru preliminarnog ispitivanja koncentracije radona, radi odabira lokacija za dugoročno ispitivanje. Kanisteri su bili postavljeni 54 sata, između 23.2.2015. i 25.2.2015. i obeleženi su sa K1 do K8 (skraćeno od kanister 1 do kanister 8). Na slici 9.1 su zaokružene oznake kanistera čije su pozicije odabrane za dugoročno ispitivanje.

Preliminarni rezultati su pokazali da je koncentracija radona u tri kalibracione sobe između 130 Bq/m^3 (K2) i 161 Bq/m^3 (K3). Za dugoročno ispitivanje je odabrana kalibraciona prostorija u kojoj se obavlja najveći broj kalibracija i u kojoj zaposleni najviše borave, pa je najznačajnija za godišnju efektivnu dozu. Ova pozicija će ubuduće biti označavana sa pozicija A.

Koncentracija radona u centralnoj laboratoriji/radionici je između 89 Bq/m^3 i 92 Bq/m^3 na tri merne tačke. Pozicija na kojoj je bio izložen kanister 5 je odabrana kao reprezentativna za koncentracije u laboratorijskom i kancelarijskom prostoru sa prirodnom ventilacijom. Ova pozicija će ubuduće biti označavana sa pozicija B.

Konačno, koncentracija izmerena pomoću kanistera 8 iznosi 669 Bq/m^3 . Iako je koncentracija radona u ovom delu zgrade najveća, u toj prostoriji se provodi zanemarljivo malo vremena pa ona nije razmatrana pri računanju godišnjih efektivnih doza.

9.2 Merna kampanja

Pošto su izvršena preliminarna merenja i odabrane merne tačke, pristupljeno je četrnaestomesečnom merenju koncentracije radona. Na obe pozicije je zamenjeno ukupno po 118 kanistera, a vremena izlaganja su u 110 slučajeva bila između 66 sati i 102 sata (približno 3 do 4 dana).

Svi podaci o merenjima su prikazani u tabeli 9.1 za poziciju A i tabeli 9.2, za poziciju B. Koncentracije radona su izračunate na osnovu polinomijalnih krivih iz dodatka EPA metode, zbog zaključaka izvedenih iz međulaboratorijskih poređenja (glava 10). Temperatura i vlažnost vazduha su mereni u sredini centralne laboratorije/radionice (obeleženo na slici 9.1 sa T/RH).

S obzirom na to da je merenje trajalo 14 meseci, zaposleni u objektu su se ponašali uobičajeno u pogledu otvaranja prozora i vrata i korišćenja veštačke ventilacije. Merna kampanja je pokrila sva četiri godišnja doba (proleće dvaput), što je omogućilo da se izvrše izlaganja pri različitim vlažnostima vazduha, između 27 % i 68 % i pri različitim temperaturama, između 15 °C i 26 °C.

Tabela 9.1 Izlaganja kanistera na poziciji A – prvi deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
58	23/2/2015 9:06	25/2/2015 14:51	3225	3,48	129	15	17,78	0,77	46,7	3,2	da
60	27/2/2015 14:52	2/3/2015 10:22	4050	3,34	169	20	17,10	0,90	46,8	1,2	ne
17	2/3/2015 10:22	6/3/2015 9:03	5681	2,86	193	22	17,03	0,57	43,0	3,7	da
7	6/3/2015 9:03	9/3/2015 10:15	4392	2,94	209	24	15,70	1,35	40,7	1,1	ne
96	9/3/2015 10:15	13/3/2015 9:06	5691	3,33	119	14	17,69	1,42	41,1	1,7	da
37	13/3/2015 9:06	16/3/2015 8:22	4276	2,52	166	20	16,62	1,32	41,1	1,4	ne
34	16/3/2015 8:22	20/3/2015 10:39	5897	2,46	209	24	16,53	0,63	41,5	3,4	da
98	20/3/2015 10:39	23/3/2015 10:21	4302	2,01	244	29	16,19	1,25	34,6	1,5	ne
38	23/3/2015 10:21	27/3/2015 10:12	5751	3,79	203	23	17,92	0,77	43,1	3,2	da
80	27/3/2015 10:12	30/3/2015 10:44	4352	2,67	214	25	17,49	1,19	46,4	3,0	ne
32	30/3/2015 10:44	3/4/2015 10:44	5760	4,01	174	21	19,18	0,79	42,0	5,3	da
73	3/4/2015 10:44	6/4/2015 10:11	4287	2,01	280	34	17,41	1,00	34,3	2,4	ne
41	6/4/2015 10:11	9/4/2015 10:21	4330	2,86	188	22	17,58	0,56	37,9	1,9	da
33	9/4/2015 10:21	14/4/2015 11:19	7258	4,04	428	49	/	/	/	/	ne
42	14/4/2015 11:19	17/4/2015 11:00	4301	3,43	159	20	18,28	0,96	42,8	2,5	da
92	17/4/2015 11:00	20/4/2015 10:00	4260	3,04	256	31	18,35	0,75	44,6	3,6	ne
95	20/4/2015 10:00	24/4/2015 9:50	5750	4,01	193	24	18,29	0,90	41,2	1,7	da
48	24/4/2015 10:00	27/4/2015 9:40	4300	3,28	297	36	18,94	0,41	45,4	1,6	ne

Tabela 9.1 Izlaganja kanistera na poziciji A – drugi deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
99	27/4/2015 9:43	30/4/2015 8:50	4267	3,25	229	28	19,08	0,31	49,6	2,1	da
68	30/4/2015 10:00	4/5/2015 9:46	5746	5,30	442	51	18,33	0,14	51,8	2,7	ne
85	4/5/2015 9:46	8/5/2015 12:36	5930	4,44	200	25	/	/	/	/	da
47	8/5/2015 12:36	11/5/2015 13:30	4374	4,90	254	31	20,29	0,22	53,0	2,2	ne
69	11/5/2015 13:32	15/5/2015 11:26	5634	7,03	77	13	20,32	0,29	54,8	4,7	da
64	15/5/2015 11:29	18/5/2015 9:12	4183	5,27	316	37	20,47	0,11	60,5	3,4	ne
57	18/5/2015 9:15	22/5/2015 10:00	5805	6,85	87	12	21,58	0,54	61,1	3,9	da
78	22/5/2015 10:02	25/5/2015 10:12	4330	5,88	228	27	21,52	0,30	63,9	2,6	ne
98	25/5/2015 10:13	29/5/2015 10:33	5780	5,85	226	27	20,17	0,58	60,8	3,0	da
34	29/5/2015 10:47	1/6/2015 11:22	4355	4,04	219	26	19,36	0,34	57,4	2,9	ne
30	1/6/2015 11:20	5/6/2015 10:08	5688	6,56	161	20	21,42	0,71	62,8	1,5	da
35	5/6/2015 10:11	8/6/2015 13:30	4519	6,58	233	28	23,03	0,20	61,9	3,8	ne
58	8/6/2015 13:29	12/6/2015 9:44	5535	8,25	214	26	23,54	0,25	60,2	3,6	da
52	12/6/2015 9:45	15/6/2015 9:56	4331	7,56	228	27	23,67	0,46	62,3	2,5	ne
43	15/6/2015 9:54	19/6/2015 9:46	5752	5,51	119	15	24,09	1,00	57,4	4,9	da
53	19/6/2015 9:47	22/6/2015 10:30	4363	5,72	232	28	22,76	0,27	52,1	2,0	ne
90	22/6/2015 10:30	26/6/2015 9:15	5685	4,41	126	15	22,10	0,43	53,0	2,7	da
72	26/6/2015 9:15	29/6/2015 9:35	4340	6,89	67	10	21,39	0,16	64,0	6,2	ne

Tabela 9.1 Izlaganja kanistera na poziciji A – treći deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
60	29/6/2015 10:58	3/7/2015 10:26	5728	8,23	134	17	22,66	0,39	64,1	2,0	da
82	3/7/2015 10:29	6/7/2015 9:28	4259	6,00	301	36	23,52	0,24	61,8	0,9	ne
8	6/7/2015 9:30	10/7/2015 15:36	6126	7,16	100	15	24,86	0,52	60,5	6,5	da
78	10/7/2015 15:36	13/7/2015 9:49	3973	4,35	275	32	24,70	0,23	48,7	2,7	ne
99	13/7/2015 9:50	17/7/2015 9:30	5740	4,11	65	13	/	/	/	/	da
84	17/7/2015 9:37	20/7/2015 9:31	4314	5,45	188	23	/	/	/	/	ne
76	20/7/2015 9:29	24/7/2015 9:34	5765	4,32	111	16	25,28	0,54	56,4	3,0	da
6	24/7/2015 9:35	27/7/2015 9:33	4318	4,34	92	12	25,97	0,50	54,0	1,8	ne
85	27/7/2015 9:36	31/7/2015 9:43	5767	5,26	125	15	25,23	0,47	52,9	2,7	da
67	31/7/2015 9:42	5/8/2015 10:20	7238	7,01	297	36	/	/	/	/	ne
48	5/8/2015 10:20	7/8/2015 10:05	2865	3,40	105	13	25,64	0,50	55,7	2,0	da
68	7/8/2015 10:05	10/8/2015 14:25	4580	3,51	134	16	25,42	0,58	51,8	2,7	ne
14	10/8/2015 14:25	14/8/2015 10:55	5550	4,72	103	13	24,68	0,62	50,0	2,0	da
33	14/8/2015 10:55	17/8/2015 10:05	4270	4,92	187	23	25,27	0,65	54,6	2,4	ne
64	17/8/2015 10:05	21/8/2015 10:12	5767	5,94	204	24	/	/	/	/	da
13	21/8/2015 10:12	24/8/2015 9:42	4290	5,21	272	33	/	/	/	/	ne
17	24/8/2015 9:42	28/8/2015 10:30	5808	6,18	167	20	23,33	0,34	62,8	2,4	da
15	28/8/2015 10:30	31/8/2015 10:20	4310	5,69	160	20	24,59	0,34	61,1	1,5	ne

Tabela 9.1 Izlaganja kanistera na poziciji A – četvrti deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
20	31/8/2015 10:20	4/9/2015 10:07	5747	5,72	136	17	25,37	0,55	58,4	1,9	da
38	4/9/2015 10:07	7/9/2015 10:53	4366	4,68	149	18	25,44	0,38	55,4	5,3	ne
1	7/9/2015 10:53	11/9/2015 11:55	5822	3,30	144	18	22,88	0,74	45,2	6,4	da
36	11/9/2015 11:55	14/9/2015 9:47	4192	5,85	185	22	21,39	0,32	56,7	2,3	ne
77	14/9/2015 9:47	18/9/2015 10:46	5819	8,38	139	21	22,35	0,66	66,3	4,7	da
63	18/9/2015 10:46	21/9/2015 9:20	4234	8,24	213	27	23,67	0,20	67,6	3,5	ne
16	21/9/2015 9:20	25/9/2015 10:10	5810	7,04	212	25	22,70	0,22	58,2	4,4	da
4	25/9/2015 10:10	28/9/2015 10:55	4365	5,40	244	29	21,76	0,31	60,3	1,3	ne
42	28/9/2015 10:55	1/10/2015 10:15	4280	4,70	158	19	20,37	0,65	58,0	1,0	da
52	1/10/2015 10:15	5/10/2015 9:40	5725	7,19	355	42	19,24	0,55	58,9	2,4	ne
8	5/10/2015 9:40	9/10/2015 10:52	5832	6,76	213	27	19,61	0,52	61,6	4,5	da
88	9/10/2015 10:52	12/10/2015 13:20	4468	5,21	185	22	18,54	0,67	59,0	1,7	ne
66	12/10/2015 13:20	16/10/2015 9:46	5546	6,66	149	18	19,33	0,81	57,7	2,2	da
46	16/10/2015 10:46	19/10/2015 9:38	4252	5,01	205	25	18,54	0,45	61,5	0,7	ne
98	19/10/2015 9:38	23/10/2015 9:55	5777	5,50	178	21	19,29	0,71	54,3	4,4	da
43	23/10/2015 9:55	26/10/2015 9:36	4301	4,09	304	36	17,57	1,04	51,0	1,8	ne
2	26/10/2015 9:36	30/10/2015 11:57	5901	3,88	146	18	18,07	0,93	50,6	2,4	da
78	30/10/2015 12:00	2/11/2015 12:39	4359	2,91	161	19	16,41	0,98	43,8	4,0	ne

Tabela 9.1 Izlaganja kanistera na poziciji A – peti deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
96	2/11/2015 12:35	6/11/2015 9:57	5602	4,24	155	19	18,03	1,18	39,1	2,3	da
94	6/11/2015 10:00	9/11/2015 10:35	4355	3,01	289	33	16,75	1,16	42,7	3,0	ne
5	9/11/2015 10:35	13/11/2015 9:58	5723	5,52	264	31	/	/	/	/	da
68	13/11/2015 9:58	16/11/2015 9:17	4279	4,14	304	36	17,27	1,06	48,7	2,2	ne
72	16/11/2015 9:17	20/11/2015 9:12	5755	3,87	142	17	19,15	1,43	45,4	4,4	da
84	20/11/2015 9:12	23/11/2015 11:10	4438	3,22	227	26	18,23	1,38	43,3	1,5	ne
6	23/11/2015 11:10	27/11/2015 9:10	5640	3,08	166	19	18,68	1,10	40,5	1,8	da
97	27/11/2015 9:10	30/11/2015 9:23	4333	2,31	196	23	17,12	1,70	38,1	0,7	ne
19	30/11/2015 9:23	4/12/2015 8:54	5731	2,89	159	19	18,31	1,03	43,1	2,0	da
10	4/12/2015 8:54	7/12/2015 11:10	4456	3,10	214	25	17,88	1,46	43,1	0,6	ne
68	7/12/2015 11:10	11/12/2015 9:22	5652	3,60	148	17	18,28	1,05	40,9	1,0	da
28	11/12/2015 9:22	14/12/2015 11:31	4449	1,76	207	24	16,65	1,66	37,9	2,1	ne
58	14/12/2015 11:31	18/12/2015 10:13	5682	2,81	186	23	/	/	/	/	da
91	18/12/2015 10:13	21/12/2015 11:50	4417	2,60	180	21	/	/	/	/	ne
45	21/12/2015 14:50	25/12/2015 9:40	5450	2,82	219	25	17,56	0,86	40,6	2,0	da
93	25/12/2015 9:40	28/12/2015 9:11	4291	2,10	300	36	15,81	1,21	40,6	1,3	ne
85	28/12/2015 9:11	30/12/2015 10:18	2947	2,32	206	23	15,70	0,67	41,5	0,8	da
65	11/1/2016 9:45	15/1/2016 9:58	5773	4,18	260	30	14,98	1,66	50,1	4,8	da

Tabela 9.1 Izlaganja kanistera na poziciji A – šesti deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
62	15/1/2016 9:58	18/1/2016 9:45	4307	2,81	187	23	14,63	1,58	39,0	4,3	ne
64	18/1/2016 9:45	22/1/2016 9:45	5760	2,32	239	27	15,49	1,13	31,5	2,4	da
80	22/1/2016 9:45	25/1/2016 9:52	4327	1,40	248	29	15,56	0,87	27,5	2,6	ne
26	25/1/2016 9:52	29/1/2016 9:32	5740	2,59	219	25	16,77	1,13	37,5	2,0	da
33	29/1/2016 9:32	1/2/2016 10:05	4353	3,32	315	36	16,26	1,13	41,6	1,4	ne
54	1/2/2016 10:05	5/2/2016 12:05	5880	2,95	217	25	17,31	0,94	46,4	3,4	da
45	5/2/2016 12:05	8/2/2016 12:05	4320	2,74	97	12	15,98	1,44	36,8	1,2	ne
42	8/2/2016 12:50	12/2/2016 12:39	5749	3,40	214	26	/	/	/	/	da
40	12/2/2016 12:39	17/2/2016 11:13	7114	4,57	305	35	/	/	/	/	ne
58	17/2/2016 11:13	19/2/2016 9:54	2801	3,35	176	20	/	/	/	/	da
11	19/2/2016 9:54	22/2/2016 11:40	4426	2,87	228	26	/	/	/	/	ne
35	22/2/2016 11:40	26/2/2016 14:47	5947	3,70	163	19	/	/	/	/	da
23	26/2/2016 14:47	29/2/2016 9:05	3978	2,37	147	17	/	/	/	/	ne
26	29/2/2016 9:05	4/3/2016 9:40	5795	3,45	205	23	17,80	0,96	44,2	3,7	da
19	4/3/2016 9:40	7/3/2016 10:20	4360	2,49	224	26	17,17	1,06	40,9	2,9	ne
18	7/3/2016 10:20	11/3/2016 10:30	5770	3,70	155	18	18,46	0,84	46,8	1,8	da
7	11/3/2016 10:30	14/3/2016 9:32	4262	3,42	178	22	18,20	1,11	46,4	1,9	ne
28	14/3/2016 9:32	18/3/2016 11:00	5848	2,40	200	24	18,24	0,75	38,8	3,7	da

Tabela 9.1 Izlaganja kanistera na poziciji A – sedmi deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m³)	u (k = 2) (Bq/m³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
8	18/3/2016 11:00	21/3/2016 12:25	4405	2,03	168	20	17,80	1,26	36,5	1,7	ne
20	21/3/2016 12:25	28/3/2016 9:45	9920	3,63	208	27	17,63	1,04	39,5	4,2	ne
1	28/3/2016 9:45	1/4/2016 9:45	5760	3,01	140	16	18,45	1,22	45,9	1,9	da
71	1/4/2016 9:45	4/4/2016 8:30	4245	3,59	205	25	19,37	0,66	41,1	2,5	ne
70	4/4/2016 8:30	8/4/2016 13:23	6053	3,55	226	27	/	/	/	/	da
6	8/4/2016 13:23	11/4/2016 8:57	4054	4,01	294	34	18,51	0,43	53,4	1,0	ne
85	11/4/2016 8:57	15/4/2016 8:57	5760	5,18	245	29	18,03	0,28	54,0	2,8	da
76	15/4/2016 8:57	18/4/2016 9:12	4335	4,04	219	26	17,84	0,16	55,1	3,0	ne
90	18/4/2016 9:12	22/4/2016 8:22	5710	4,60	189	22	18,85	0,50	51,4	6,7	da
74	22/4/2016 8:22	26/4/2016 12:55	6033	3,20	175	21	17,47	0,53	48,8	2,5	ne

Tabela 9.2 Izlaganja kanistera na poziciji B – prvi deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
21	23/2/2015 9:01	25/2/2015 14:44	3223	2.26	91	11	17,77	0,77	46,6	3,2	da
64	27/2/2015 14:52	2/3/2015 10:22	4050	3.22	98	12	17,10	0,90	46,8	1,2	ne
35	2/3/2015 10:22	6/3/2015 9:03	5681	2.37	106	13	17,03	0,57	43,0	3,7	da
23	6/3/2015 9:03	9/3/2015 10:15	4392	2.07	109	13	15,70	1,35	40,7	1,1	ne
5	9/3/2015 10:15	13/3/2015 9:06	5691	3.10	68	9	17,69	1,42	41,1	1,7	da
18	13/3/2015 9:06	16/3/2015 8:22	4276	2.44	75	10	16,62	1,32	41,1	1,4	ne
14	16/3/2015 8:22	20/3/2015 10:39	5897	2.78	125	15	16,53	0,63	41,5	3,4	da
2	20/3/2015 10:39	23/3/2015 10:21	4302	1.81	173	21	16,19	1,25	34,6	1,5	ne
9	23/3/2015 10:21	27/3/2015 10:12	5751	3.04	185	21	17,92	0,77	43,1	3,2	da
49	27/3/2015 10:12	30/3/2015 10:44	4352	2.55	117	14	17,49	1,19	46,4	3,0	ne
36	30/3/2015 10:44	3/4/2015 10:44	5760	3.78	76	11	19,18	0,79	42,0	5,3	da
77	3/4/2015 10:44	6/4/2015 10:11	4287	1.86	123	15	17,41	1,00	34,3	2,4	ne
91	6/4/2015 10:11	9/4/2015 10:21	4330	2.15	110	13	17,58	0,56	37,9	1,9	da
71	9/4/2015 10:21	14/4/2015 11:19	7258	3.92	220	26	/	/	/	/	ne
65	14/4/2015 11:19	17/4/2015 11:00	4301	3.16	138	17	18,28	0,96	42,8	2,5	da
97	17/4/2015 11:00	20/4/2015 10:00	4260	2.45	130	16	18,35	0,75	44,6	3,6	ne
84	20/4/2015 10:00	24/4/2015 9:50	5750	2.87	121	14	18,29	0,90	41,2	1,7	da
61	24/4/2015 10:00	27/4/2015 9:40	4300	3.87	215	26	18,94	0,41	45,4	1,6	ne

Tabela 9.2 Izlaganja kanistera na poziciji B – drugi deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
89	27/4/2015 9:40	30/4/2015 8:50	4270	4.09	173	21	19,09	0,31	49,6	2,1	da
6	30/4/2015 10:00	4/5/2015 9:46	5746	4.31	261	31	18,33	0,14	51,8	2,7	ne
63	4/5/2015 9:46	8/5/2015 12:36	5930	4.17	166	22	/	/	/	/	da
59	8/5/2015 12:36	11/5/2015 13:30	4374	4.35	125	18	20,29	0,22	53,0	2,2	ne
66	11/5/2015 13:30	15/5/2015 11:24	5634	5.74	103	15	20,32	0,29	54,8	4,6	da
62	15/5/2015 11:28	18/5/2015 9:11	4183	4.76	219	26	20,46	0,11	60,5	3,4	ne
60	18/5/2015 9:13	22/5/2015 9:57	5804	7.05	66	10	21,58	0,54	61,1	3,9	da
96	22/5/2015 9:59	25/5/2015 10:09	4330	5.99	124	16	21,52	0,30	63,9	2,6	ne
88	25/5/2015 10:10	29/5/2015 10:32	5782	6.85	150	18	20,17	0,58	60,8	3,0	da
32	29/5/2015 10:46	1/6/2015 11:20	4354	5.08	173	21	19,36	0,34	57,4	2,9	ne
49	1/6/2015 11:21	5/6/2015 10:07	5686	7.05	152	19	21,42	0,71	62,8	1,5	da
77	5/6/2015 10:10	8/6/2015 13:24	4514	5.68	154	19	23,03	0,20	61,9	3,8	ne
56	8/6/2015 13:25	12/6/2015 9:43	5538	6.37	155	19	23,54	0,25	60,2	3,6	da
75	12/6/2015 9:47	15/6/2015 9:52	4325	5.93	163	20	23,66	0,46	62,3	2,5	ne
44	15/6/2015 9:53	19/6/2015 9:45	5752	5.47	50	8	24,09	1,00	57,4	4,9	da
86	19/6/2015 9:49	22/6/2015 10:30	4361	3.15	92	12	22,76	0,27	52,1	2,0	ne
16	22/6/2015 10:30	26/6/2015 9:15	5685	5.46	66	9	22,10	0,43	53,0	2,7	da
55	26/6/2015 9:15	29/6/2015 9:36	4341	7.35	38	7	21,39	0,16	64,0	6,2	ne

Tabela 9.2 Izlaganja kanistera na poziciji B – treći deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
10	29/6/2015 10:55	3/7/2015 10:25	5730	8.39	138	18	22,66	0,39	64,1	2,0	da
62	3/7/2015 10:27	6/7/2015 9:27	4260	5.63	208	25	23,52	0,24	61,8	0,9	ne
66	6/7/2015 9:29	10/7/2015 15:36	6127	6.81	52	11	24,86	0,52	60,5	6,5	da
97	10/7/2015 15:36	13/7/2015 9:37	3961	3.20	157	19	24,70	0,23	48,7	2,7	ne
94	13/7/2015 9:38	17/7/2015 9:31	5753	4.84	90	15	/	/	/	/	da
92	17/7/2015 9:34	20/7/2015 9:26	4312	6.69	174	22	/	/	/	/	ne
71	20/7/2015 9:28	24/7/2015 9:31	5763	6.86	98	15	25,28	0,54	56,4	3,0	da
89	24/7/2015 9:33	27/7/2015 9:37	4324	5.41	116	15	25,97	0,50	54,0	1,8	ne
65	27/7/2015 9:35	31/7/2015 9:41	5766	5.53	79	11	25,23	0,47	52,9	2,7	da
96	31/7/2015 9:40	5/8/2015 10:20	7240	6.77	213	26	/	/	/	/	ne
91	5/8/2015 10:20	7/8/2015 10:05	2865	4.20	87	11	25,64	0,50	55,7	2,0	da
69	7/8/2015 10:05	10/8/2015 14:25	4580	3.85	97	12	25,42	0,58	51,8	2,7	ne
18	10/8/2015 14:25	14/8/2015 10:55	5550	4.01	102	13	24,68	0,62	50,0	2,0	da
40	14/8/2015 10:55	17/8/2015 10:05	4270	5.58	151	19	25,27	0,65	54,6	2,4	ne
79	17/8/2015 10:05	21/8/2015 10:12	5767	5.94	132	16	/	/	/	/	da
11	21/8/2015 10:12	24/8/2015 9:42	4290	4.03	147	18	/	/	/	/	ne
9	24/8/2015 9:42	28/8/2015 10:30	5808	7.24	139	17	23,33	0,34	62,8	2,4	da
12	28/8/2015 10:30	31/8/2015 10:20	4310	5.42	87	12	24,59	0,34	61,1	1,5	ne

Tabela 9.2 Izlaganja kanistera na poziciji B – četvrti deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u ($k = 2$) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
61	31/8/2015 10:20	4/9/2015 10:07	5747	8.52	96	13	25,37	0,55	58,4	1,9	da
39	4/9/2015 10:07	7/9/2015 10:53	4366	3.93	64	9	25,44	0,38	55,4	5,3	ne
37	7/9/2015 10:53	11/9/2015 11:55	5822	3.61	83	12	22,88	0,74	45,2	6,4	da
47	11/9/2015 11:55	14/9/2015 9:47	4192	4.51	99	13	21,39	0,32	56,7	2,3	ne
55	14/9/2015 9:47	18/9/2015 10:46	5819	9.05	124	20	22,35	0,66	66,3	4,7	da
51	18/9/2015 10:46	21/9/2015 9:20	4234	8.66	103	15	23,67	0,20	67,6	3,5	ne
53	21/9/2015 9:20	25/9/2015 10:10	5810	7.42	131	16	22,70	0,22	58,2	4,4	da
32	25/9/2015 10:10	28/9/2015 10:55	4365	5.75	140	17	21,76	0,31	60,3	1,3	ne
44	28/9/2015 10:55	1/10/2015 10:15	4280	5.04	98	13	20,37	0,65	58,0	1,0	da
49	1/10/2015 10:15	5/10/2015 9:40	5725	6.32	252	31	19,24	0,55	58,9	2,4	ne
86	5/10/2015 9:40	9/10/2015 10:52	5832	5.46	128	19	19,61	0,52	61,6	4,5	da
82	9/10/2015 10:52	12/10/2015 13:20	4468	5.17	91	12	18,54	0,67	59,0	1,7	ne
35	12/10/2015 13:20	16/10/2015 9:46	5546	6.15	125	16	19,33	0,81	57,7	2,2	da
62	16/10/2015 10:46	19/10/2015 9:38	4252	5.35	207	25	18,54	0,45	61,5	0,7	ne
45	19/10/2015 9:38	23/10/2015 9:55	5777	3.41	117	14	19,29	0,71	54,3	4,4	da
57	23/10/2015 9:55	26/10/2015 9:36	4301	3.44	161	20	17,57	1,04	51,0	1,8	ne
85	26/10/2015 9:36	30/10/2015 11:59	5903	4.40	160	21	18,07	0,93	50,6	2,4	da
75	30/10/2015 12:00	2/11/2015 12:30	4350	2.36	99	12	16,40	0,97	43,8	4,0	ne

Tabela 9.2 Izlaganja kanistera na poziciji B – peti deo

Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
95	2/11/2015 12:35	6/11/2015 9:57	5602	2.47	93	11	18,03	1,18	39,1	2,3	da
93	6/11/2015 9:58	9/11/2015 10:35	4357	2.30	194	23	16,75	1,16	42,7	3,0	ne
92	9/11/2015 10:35	13/11/2015 9:58	5723	5.35	184	22	/	/	/	/	da
69	13/11/2015 9:58	16/11/2015 9:10	4272	3.91	154	19	17,27	1,06	48,7	2,2	ne
71	16/11/2015 9:13	20/11/2015 9:12	5759	4.11	177	21	19,15	1,43	45,4	4,4	da
99	20/11/2015 9:12	23/11/2015 11:10	4438	2.80	135	16	18,23	1,38	43,3	1,5	ne
90	23/11/2015 11:10	27/11/2015 9:10	5640	2.52	100	12	18,68	1,10	40,5	1,8	da
89	27/11/2015 9:10	30/11/2015 9:23	4333	2.51	104	13	17,12	1,70	38,1	0,7	ne
76	30/11/2015 9:23	4/12/2015 8:54	5731	3.05	98	12	18,31	1,03	43,1	2,0	da
56	4/12/2015 8:54	7/12/2015 11:10	4456	3.02	121	15	17,88	1,46	43,1	0,6	ne
69	7/12/2015 11:10	11/12/2015 9:22	5652	3.45	85	11	18,28	1,05	40,9	1,0	da
48	11/12/2015 9:22	14/12/2015 11:31	4449	1.93	120	15	16,65	1,66	37,9	2,1	ne
59	14/12/2015 11:31	18/12/2015 10:13	5682	2.05	117	14	/	/	/	/	da
95	18/12/2015 10:13	21/12/2015 11:50	4417	2.56	103	13	/	/	/	/	ne
78	21/12/2015 14:50	25/12/2015 9:40	5450	2.70	134	16	17,56	0,86	40,6	2,0	da
94	25/12/2015 9:40	28/12/2015 9:11	4291	2.48	165	20	15,81	1,21	40,6	1,3	ne
60	28/12/2015 9:11	30/12/2015 10:18	2947	2.40	106	13	15,70	0,67	41,5	0,8	da
75	11/1/2016 9:45	15/1/2016 9:58	5773	3.87	142	17	14,98	1,66	50,1	4,8	da

Tabela 9.2 Izlaganja kanistera na poziciji B – šesti deo

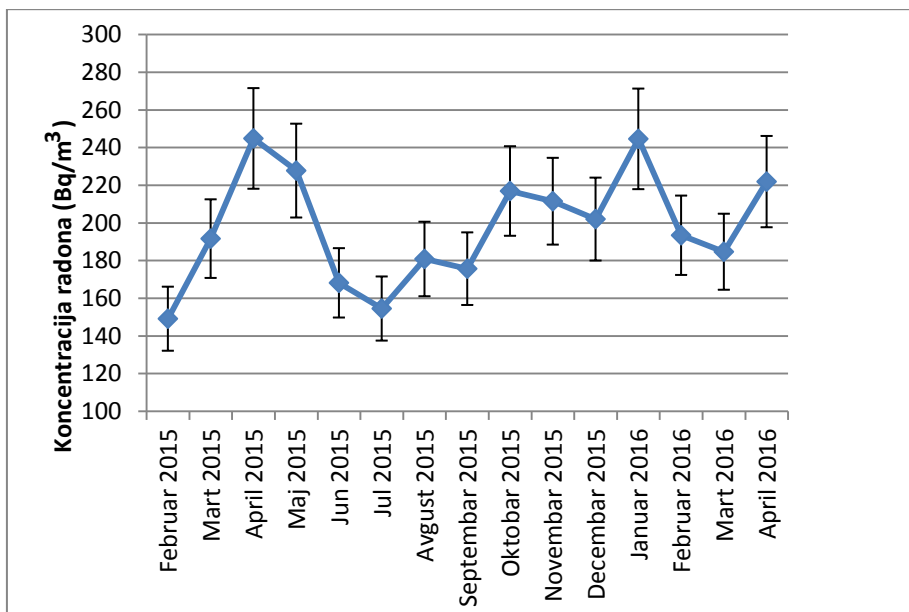
Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
67	15/1/2016 9:58	18/1/2016 9:45	4307	2.37	73	10	14,63	1,58	39,0	4,3	ne
84	18/1/2016 9:45	22/1/2016 9:45	5760	1.86	130	15	15,49	1,13	31,5	2,4	da
73	22/1/2016 9:45	25/1/2016 9:52	4327	1.19	124	15	15,56	0,87	27,5	2,6	ne
22	25/1/2016 9:52	29/1/2016 9:32	5740	2.04	138	16	16,77	1,13	37,5	2,0	da
31	29/1/2016 9:32	1/2/2016 10:05	4353	2.83	174	20	16,26	1,13	41,6	1,4	ne
63	1/2/2016 10:05	5/2/2016 12:05	5880	4.13	151	18	17,31	0,94	46,4	3,4	da
66	5/2/2016 12:05	8/2/2016 12:05	4320	2.29	53	8	15,98	1,44	36,8	1,2	ne
44	12/2/2016 12:39	17/2/2016 11:13	7114	4.24	199	23	/	/	/	/	ne
48	8/2/2016 12:50	12/2/2016 12:39	5749	3.02	150	19	/	/	/	/	da
60	17/2/2016 11:13	19/2/2016 9:54	2801	3.70	118	14	/	/	/	/	da
32	19/2/2016 9:54	22/2/2016 11:40	4426	3.30	116	14	/	/	/	/	ne
36	22/2/2016 11:40	26/2/2016 14:47	5947	4.59	96	12	/	/	/	/	da
24	26/2/2016 14:47	29/2/2016 9:05	3978	2.87	58	7	/	/	/	/	ne
25	29/2/2016 9:05	4/3/2016 9:40	5795	2.60	127	15	17,80	0,96	44,2	3,7	da
17	4/3/2016 9:40	7/3/2016 10:20	4360	2.48	123	14	17,17	1,06	40,9	2,9	ne
34	7/3/2016 10:20	11/3/2016 10:30	5770	3.70	93	13	18,46	0,84	46,8	1,8	da
10	11/3/2016 10:30	14/3/2016 9:32	4262	4.01	96	12	18,20	1,11	46,4	1,9	ne
30	14/3/2016 9:32	18/3/2016 11:00	5848	2.80	121	16	18,24	0,75	38,8	3,7	da

Tabela 9.2 Izlaganja kanistera na poziciji B – sedmi deo

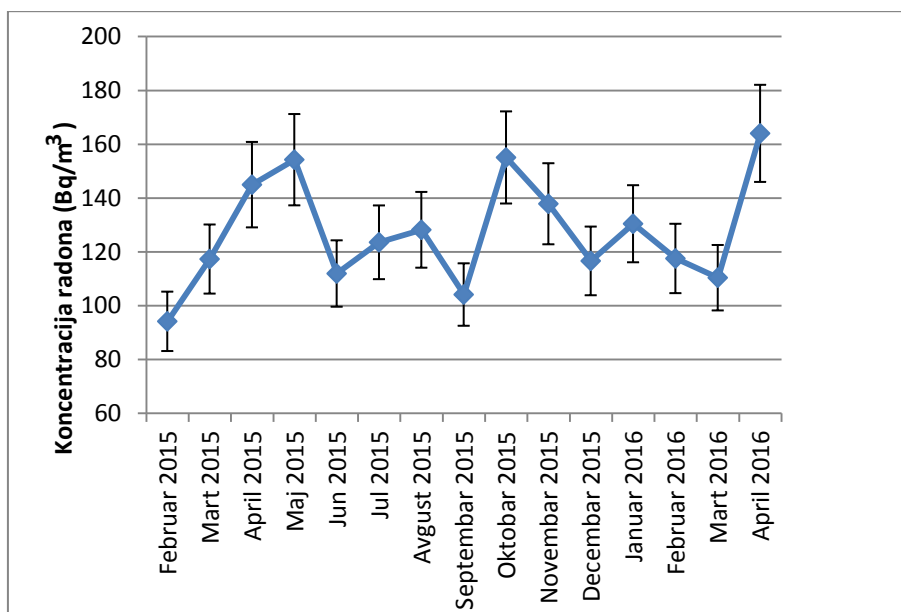
Broj kanistera	Početak izlaganja	Kraj izlaganja	Vreme izlaganja (min)	Promena mase (g)	A_{rn} (Bq/m ³)	u (k = 2) (Bq/m ³)	t_{sr} (°C)	σ_t (°C)	RH_{sr} (%)	σ_{RH} (%)	Radni dan
21	18/3/2016 11:00	21/3/2016 12:25	4405	2.09	102	13	17,80	1,26	36,5	1,7	ne
77	21/3/2016 12:25	28/3/2016 9:45	9920	3.45	124	17	17,63	1,04	39,5	4,2	ne
9	28/3/2016 9:45	1/4/2016 9:45	5760	3.31	97	12	18,45	1,22	45,9	1,9	da
16	1/4/2016 9:45	4/4/2016 8:30	4245	2.87	121	15	19,37	0,66	41,1	2,5	ne
78	4/4/2016 8:30	8/4/2016 13:23	6053	4.22	280	33	/	/	/	/	da
79	8/4/2016 13:23	11/4/2016 8:57	4054	4.23	136	17	18,51	0,43	53,4	1,0	ne
91	11/4/2016 8:57	15/4/2016 8:57	5760	4.89	177	22	18,03	0,28	54,0	2,8	da
82	15/4/2016 8:57	18/4/2016 9:12	4335	4.75	194	23	17,84	0,16	55,1	3,0	ne
86	18/4/2016 9:12	22/4/2016 8:22	5710	4.42	114	14	18,85	0,50	51,4	6,7	da
75	22/4/2016 8:22	26/4/2016 12:55	6033	4.32	127	16	17,47	0,53	48,8	2,5	ne

9.3 Mesečne i sezonske varijacije koncentracije radona

Na slikama 9.2 i 9.3 su prikazane prosečne mesečne koncentracije radona sa mernim nesigurnostima za oba merna mesta, izračunate na osnovu podataka iz tabela 9.1 i 9.2. Merne nesigurnosti prosečnih koncentracija su izračunate primenom jednačine 8.16.



Slika 9.2 Mesečne varijacije koncentracije radona na poziciji A



Slika 9.3 Mesečne varijacije koncentracije radona na poziciji B

Srednje godišnje koncentracije su izračunate za oba merna mesta i iznose 200 Bq/m^3 za poziciju A i 129 Bq/m^3 za poziciju B. Sezonski (k_{3m}) i mesečni (k_{1m}) korekcionni faktori su određeni deljenjem srednjih godišnjih koncentracija srednjim sezonskim i mesečnim koncentracijama. Njihove vrednosti su date u tabelama 9.3 i 9.4 za oba merna mesta. Koncentracije radona za februar 2015. nisu uzete u obzir, jer su dostupna samo dva rezultata merenja.

Tabela 9.3 Mesečni korekcionni faktori

Mesec	k_{1m} – pozicija A	k_{1m} – pozicija b
Januar	0.82	0.99
Februar	1.03	1.10
Mart	1.06	1.13
April	0.86	0.83
Maj	0.88	0.84
Jun	1.19	1.15
Jul	1.29	1.05
Avgust	1.10	1.01
Septembar	1.14	1.24
Oktobar	0.92	0.83
Novembar	0.94	0.94
Decembar	0.99	1.11

Tabela 9.4 Sezonski korekcionni faktori

Godišnje doba	k_{3m} – pozicija A	k_{3m} – pozicija b
Proleće	0.91	0.87
Leto	1.23	1.14
Jesen	0.97	0.96
Zima	0.94	1.07

Vrednosti korekcionnih faktora za proleće i jesen imaju slične vrednosti za oba merna mesta, dok za leto i zimu postoje značajne razlike. Do razlika dolazi zbog različitog obima posla, jer veći obim posla znači duže i češće otvaranje vrata između dve prostorije, što dovodi do izjednačavanja koncentracija radona. Vanredno visoke koncentracije radona u januaru na mernom mestu A koincidiraju sa veoma malim obimom posla tipičnim za januar i sezonu godišnjih odmora. S druge strane, do razlika u

korekcionim faktorima za jul i avgust je došlo zbog značajno povećanog obima posla u leto 2015, koji je inače netipičan za to doba godine. U drugim mesecima je obim posla bio na godišnjem proseku, pa otud i slične vrednosti korekcionih faktora.

9.4 Godišnja efektivna doza za zaposlene u ispitivanom objektu

Za računanje godišnje efektivne doze je korišćena jednačina 9.1, koja je ponovljena jednačina 3.1, a oznake imaju isto značenje.

$$E = A_{Rn} F t_o DCF \quad (9.1)$$

Za vrednost faktora ravnoteže je korišćena preporučena vrednost UNSCEAR za zatvoreni prostor – 0,4 (UNSCEAR, 2000). Vrednost doznog konverzionog faktora je određena na osnovu istog izvora i iznosi 15 nSv/(Bq h m⁻³).

Vreme izlaganja je procenjeno posebno za svakog zaposlenog, tako što je smatrano da koncentracija na poziciji A odgovara svim trima kalibracionim prostorijama, a koncentracija na poziciji B ostatku zgrade u kom se regularno boravi. Procenjeno je da svi zaposleni provedu 220 dana godišnje u Institutu “Vinča”. Prosečno vreme koje se provede u zatvorenom prostoru je procenjeno na 6 sati dnevno. Od toga, dva metrologa provedu trećinu vremena u kalibracionim prostorijama, metrolog pripravnik polovinu, tehničar za nabavku desetinu i tehnički rukovodilac petinu. Efektivne doze određene na osnovu navedenih vremena izlaganja i svih merenja koncentracije radona su prikazane u tabeli 9.5.

Tabela 9.5 Efektivne doze za zaposlene u ispitivanom objektu na osnovu svih merenja

Pozicija	Vreme provedeno u kalibracionim prostorijama (h/god)	Vreme provedeno u ostatku zgrade (h/god)	Godišnja efektivna doza (mSv/god)
Metrolog	440	880	1,21
Metrolog pripravnik	660	660	1,30
Tehničar nabavke	132	1188	1,08
Tehnički rukovodilac	264	1056	1,13

Procena efektivnih doza u tabeli 9.5 ne uzima u obzir činjenicu da koncentracije radona tokom radnih dana, kada su zaposleni prisutni u objektu, mogu biti različite od neradnih dana, kada su prostorije prazne. Kada se odrede srednje godišnje koncentracije

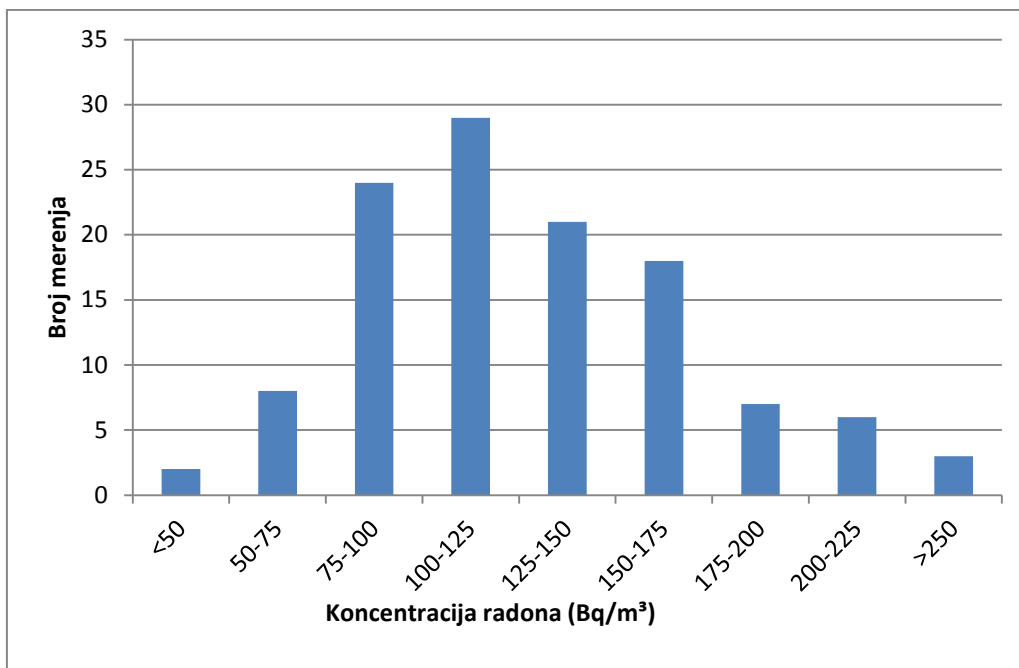
radona na osnovu rezultata prikazanih u tabelama 9.1 i 9.2, ali samo na osnovu merenja izvršenih tokom radnih dana, dobijaju se vrednosti od 171 Bq/m³ za poziciju A i 122 Bq/m³ za poziciju B. Niže koncentracije su očekivane, zbog intenzivnije prirodne i veštačke ventilacije dok u objektu borave ljudi. Efektivne doze izračunate na osnovu ovih vrednosti koncentracija su manje od 7 % do 11 %.

9.5 Korišćenje pojedinačnih merenja ugljenim filterima za određivanje srednjih mesečnih i godišnjih koncentracija

Analizom rezultata iz tabela 9.1 i 9.2, može se primetiti da je odnos najviše i najniže mesečne koncentracije radona tokom cele kampanje 7:1, a tokom perioda od mesec dana 5:1. To govori da procena srednjih mesečnih i godišnjih koncentracija na osnovu pojedinačnih merenja nije adekvatna, već da je potrebno merenja ponavljati.

Na slici 9.4 je prikazana distribucija izmerenih koncentracija radona na poziciji B. Ekstremne koncentracije radona su malo verovatne, pa je srednju mesečnu koncentraciju moguće odrediti na osnovu nekoliko merenja, a zatim i srednju godišnju množenjem sa mesečnim korekcionim faktorom, ako je poznat za dato geografsko područje i tip objekta. Međutim, što je kraći ukupni period izlaganja ugljenih kanistera, veća je verovatnoća da se izmerena srednja vrednost značajno razlikuje od prave srednje vrednosti. U glavi 11 će biti prikazano da se prosečne koncentracije određene pomoću ugljenih filtera dobro slažu sa rezultatima određenim korišćenjem trag detektora, što je potvrda primenljivosti navedenog principa.

U slučaju da je potrebno izvršiti merenja na veoma velikom broju lokacija, moguće je primeniti drugačiji pristup. Naime, moguće je izvršiti samo po jedno merenje po objektu (stan, kuća, javni objekat itd.), ali u najgorim uslovima (zatvoreni prozori i vrata, isključena ventilacija, zimski period – ako nisu poznati sezonski korekcionni faktori). Na osnovu preliminarnih rezultata, objekti u kojima su izmerene koncentracije radona niže od interventnih nivoa ne bi bili dalje ispitivani. U objektima sa povišenim koncentracijama radona je potrebno izvršiti dugoročna merenja, da se utvrdi da li su i srednje godišnje koncentracije više od interventnih nivoa.



Slika 9.4 Distribucija vrednosti merenja koncentracija radona na poziciji B

10 Uticaj korišćenja recikliranih kanistera

EPA kalibracione krive su izrađene za nove kanistere, kakvi su dobijeni od proizvođača. Dženkins je izrazio sumnju u opravdanost korišćenja ovakvih krivih za reciklirane kanistere, zbog razlika u sadržaju vlage (Jenkins, 2002). Novi kanisteri sadrže količinu vlage koja je u ravnoteži sa vlažnošću vazduha između 20 % i 35 % pri sobnoj temperaturi. Do tog zaključka se dolazi jer je promena mase kanistera (dobijena interpolacijom na osnovu podataka iz referenci: Gray and Windham, 1987; EPA, 1989; Blue and Jarzempa, 1992) pri takvim izlaganjima jednaka nuli, o čemu će biti diskutovano u ovoj glavi. S druge strane, pretpostavka je da kanisteri reciklirani sušenjem na temperaturama od oko 100 °C sadrže značajno manju količinu vlage. Razlika u početnom sadržaju vlage bi uzrokovala različitu promenu mase kanistera tokom izlaganja, što bi uticalo na vrednosti kalibracionog faktora, ali bi dalje moglo da utiče i na pogrešan odabir A_f krive (Jenkins, 2002). Do razlike u početnom sadržaju vlage može da dođe i u toku skladištenja kanistera i zbog vlage koju kanister pokupi između sušenja i zatvaranja.

10.1 Skladištenje kanistera

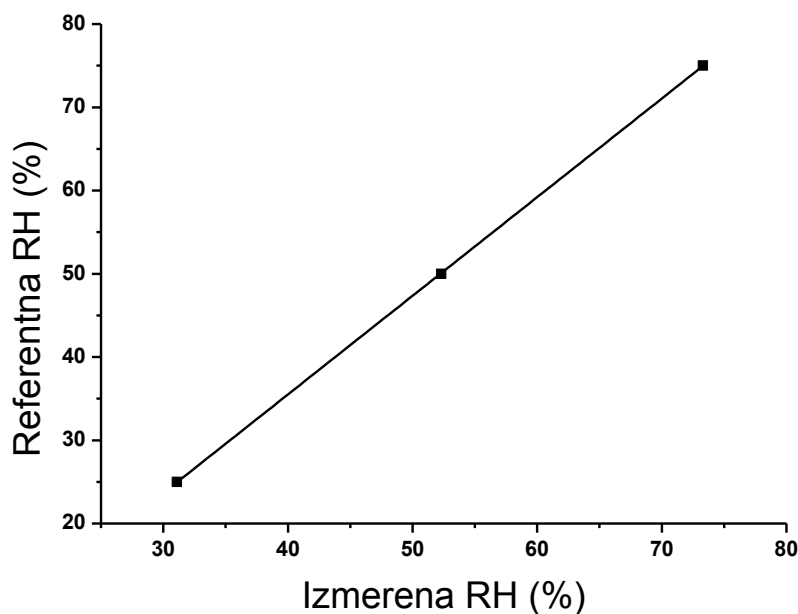
S obzirom na to da se kanisteri ne izlažu odmah posle sušenja, postoji opravdana sumnja da tokom skladištenja mogu da pokupe određenu količinu vlage. U INN Vinča, kanisteri se mere odmah po sušenju, ali i pri izdavanju korisniku, pa mogu da se porede njihove mase u ova dva momenta.

U zimskom periodu, dva puta je istog dana izdat veći broj kanistera koji su i sušeni istog dana. U prvom slučaju, 10 kanistera je po sušenju skladišteno dva meseca. Razlika između masa pre izlaganja i posle sušenja je bila $0,08 \text{ g} \pm 0,08 \text{ g}$ (određena je samo standardna devijacija razlika masa). U drugom slučaju je 8 kanistera skladišteno mesec dana, a razlika masa je bila $0,24 \text{ g} \pm 0,14 \text{ g}$. U letnjem periodu, 10 kanistera je skladišteno mesec i po dana, a zabeležena je razlika masa od $0,25 \pm 0,08$ grama. Maksimalna zabeležena promena mase je 0,48 g, a srednja vrednost za svih 28 kanistera je 0,18 grama.

Na osnovu podataka za 28 kanistera, može se primetiti da kanister u toku stajanja uvek adsorbuje malu količinu vlage, iako je zatvoren. Ne postoje značajne razlike za zimski i letnji period, a zavisnost od vremena stajanja nije mogla biti utvrđena, zbog slabe ponovljivosti promene mase.

10.2 Kalibracija termohigrografa

Rezultati merenja vlažnosti vazduha i temperature su korigovani u skladu sa uverenjem o etaloniranju termohigrografa. Merna nesigurnost referentnih vrednosti temperature je 0,3 °C, a vlažnosti vazduha 1,5 % (k = 2). Prema uverenju, pokazivanja temperature termohigrografa su bila identična referentnim vrednostima, pa korekcija nije potrebna. Pokazivanja vlažnosti vazduha se značajno razlikuju, pogotovo u oblasti niskih vlažnosti. Na slici 10.1 je prikazana zavisnost referentne (t.j. konvencionalno tačne) vrednosti od izmerene vrednosti vlažnosti vazduha. Izmerena vrednost se nalazi na x-osi jer je pri merenju ona nezavisna promenljiva, a na osnovu nje se računa konvencionalno tačna vrednost.



Slika 10.1 Kalibracija vlagomera

Zavisnost na slici 10.1 se može prikazati jednačinom 10.1:

$$RH_{ref} = -11,89 + 1,1848 RH_{izm} \quad (10.1)$$

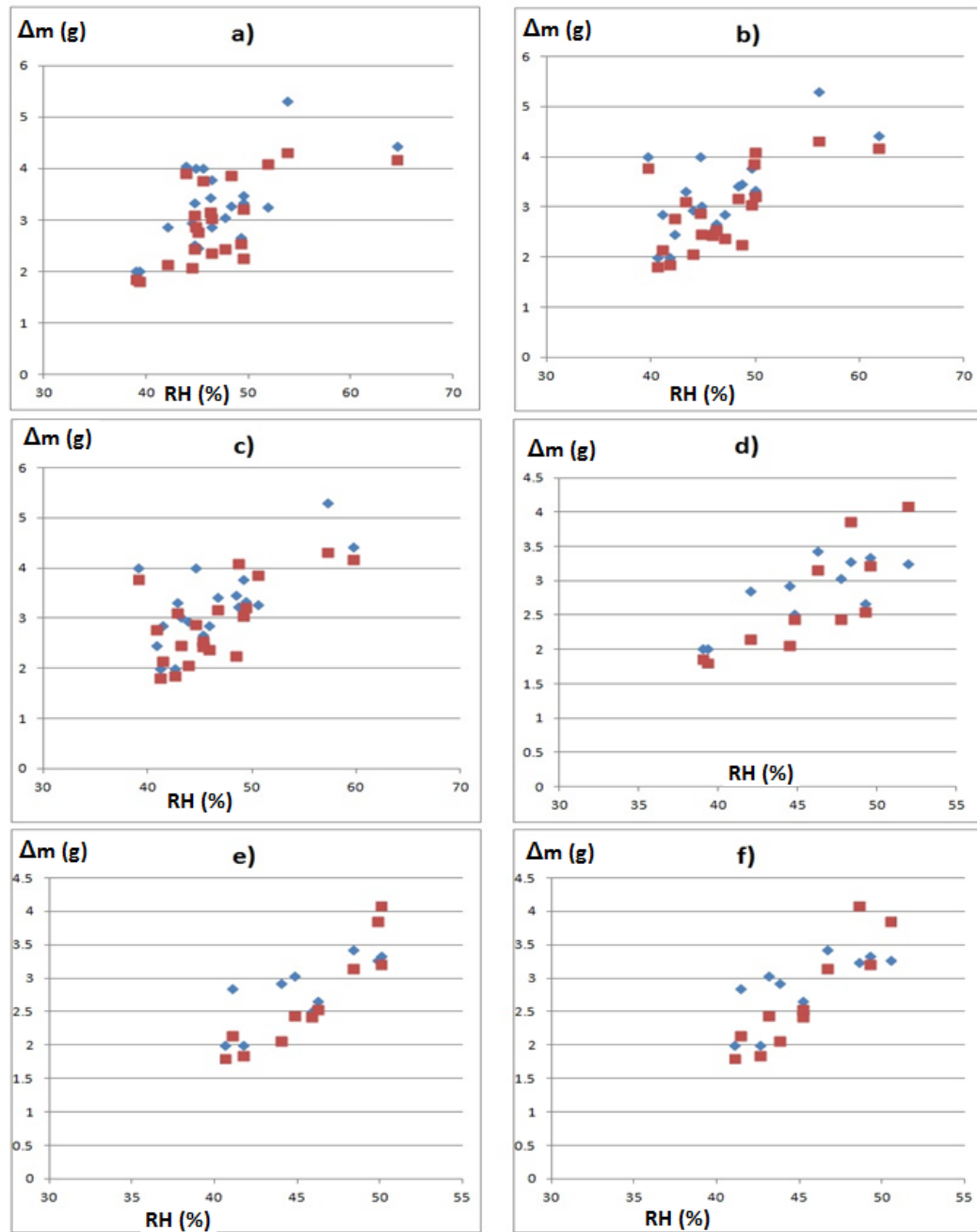
gde je RH_{ref} referentna vrednost vlažnosti vazduha, a RH_{izm} izmerena. Vrednost R^2 za ovaj fit iznosi 1.

10.3 Uticaj recikliranja kanistera na odabir adekvatne A_f krive

Na osnovu preliminarnih ispitivanja (zima – proleće 2015) prikazanih u tabelama 9.1 i 9.2, provereno je da li se za izlaganja recikliranih kanistera bira odgovarajuća A_f kriva. Takođe je provereno koliki je uticaj vlažnosti vazduha u poslednjih 8 sati, odnosno 24 sata, na ukupnu promenu mase kanistera. Rezultati vlažnosti vazduha nisu korigovani, ali tako unete greške su u ispitivanoj oblasti vlažnosti vazduha male i ne utiču na zaključak ispitivanja.

Na slici 10.2 je prikazana korelacija između promene mase kanistera i izmerene vlažnosti vazduha. Na slikama 10.2a do 10.2c su prikazana sva izlaganja, bez obzira na dužinu trajanja, a na slikama 10.2d do 10.2f samo izlaganja od 3 dana. Poređenje ovih slika i odgovarajućih rezultata pokazuje da je mnogo bolja korelacija između promene mase i vlažnosti vazduha kada se posmatraju samo izlaganja približno iste dužine, što je i očekivano. Tada se vrednosti R^2 kreću od oko 0,6 do 0,85, za razliku od vrednosti manjih od 0,45 kada se posmatraju sva izlaganja (Živanović et al, 2015).

Na slici 10.2 su takođe uporedo prikazane srednje vlažnosti vazduha za poslednjih 8 h izlaganja, 24 h izlaganja i za celo izlaganje, i njihova korelacija sa promenom mase. Analizom rezultata se pokazalo da je za izlaganja na poziciji A najbolja korelacija kada se posmatra srednja vrednost vlažnosti za ceo interval. Za izlaganja na poziciji B je najbolja korelacija kada se posmatra srednja vrednost za poslednja 24 časa. Pored toga, sve korelacije su jake, na koji god način da se usrednjava vlažnost vazduha. (Živanović et al, 2015).



Slika 10.2 Korelacija promene mase kanistera i vlažnosti vazduha. Romb označava promenu mase kanistera na poziciji A, a kvadrat na poziciji B; a) srednja RH za ceo interval, sva izlaganja; b) srednja RH za poslednja 24 h, sva izlaganja; c) srednja RH za poslednjih 8 h, sva izlaganja; d) srednja RH za ceo interval, samo izlaganja od tri dana; e) srednja RH za poslednja 24 h, samo izlaganja od tri dana; f) srednja RH za poslednjih 8 h, samo izlaganja od tri dana (preuzeto iz Živanović et al, 2015)

Odabir odgovarajuće A_f krive je proveren tako što je pretpostavljeno da je adekvatna primena krive za 20 % do vlažnosti vazduha od 35 %, krive za 50 % između 35 % i 65 %, a krive za 80 % preko ove vlažnosti (svaka kriva se primenjuje do polovine intervala vlažnosti vazduha između susednih krivih). Prema toj pretpostavci, sva izlaganja prikazana na slici 10.2 su se odvijala u uslovima srednje vlažnosti vazduha. Ako se posmatraju samo izlaganja od tri dana, primenom EPA kriterijuma (srednjoj vlažnosti vazduha odgovara promena mase između 1 g i 4 g) se bira adekvatna kriva u svim slučajima, osim jednog. Međutim, za izlaganja od 4 dana, u skoro 50 % slučajeva je odabrana pogrešna kriva – kriva za visoku vlažnost vazduha. Ovi preliminarni rezultati su sugerisali da je promena mase recikliranih kanistera zaista veća u odnosu na nove kanistere, što je zahtevalo dodatna ispitivanja (Živanović et al, 2015).

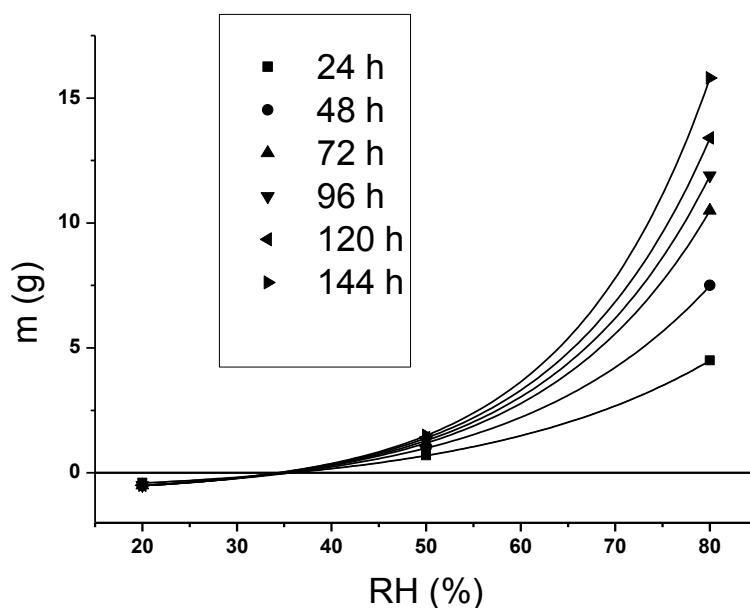
10.4 Korekcija promene mase kanistera

Živanović i saradnici (Živanović et al, 2016) su na osnovu prve polovine merne kampanje predstavljene u glavi 9 primetili da postoje sistematska odstupanja u promeni mase recikliranih i novih kanistera. Na osnovu poređenja odgovarajućih krivih zavisnosti promene mase od vlažnosti vazduha, predložili su korekciju promene mase koja bi omogućila korišćenje EPA krivih.

Ovde će razmatranje biti prošireno na celu mernu kampanju. Temperatura i vlažnost vazduha su mereni na svaki minut u toku izlaganja a srednje vrednosti su izračunate posebno izrađenom aplikacijom. Ista aplikacija je omogućila da se izbroji koliko merenja ambijentalnih uslova fali i da se koriguju vrednosti vlažnosti vazduha, a izostavljena su izlaganja za koje fali više od 250 merenja.

10.4.1 Promena mase novih kanistera

Promena mase novih kanistera je određena na osnovu podataka koje su objavili Blu i Džarzemba (Blue and Jarzemba, 1992), za koje se pretpostavlja da su dobijeni u privatnoj komunikaciji od EPA (Jenkins, 2002). Promena mase za različita vremena izlaganja kanistera i različite vlažnosti vazduha je prikazana na slici 10.3.



Slika 10.3 Promena mase novih kanistera za različitu vlažnost vazduha i vreme izlaganja (grafik preuzet iz Živanović et al, 2016)

Eksperimentalni podaci prikazani na slici 10.3 su fitovani različitim funkcijama, a najbolji rezultati su dobijeni korišćenjem funkcije 10.2:

$$\Delta m_c = Ae^{RH/B} + C \quad (10.2)$$

gde je Δm_c promena mase kanistera tokom kalibracije, RH vlažnost vazduha, a A , B i C parametri fitovanja. Sve krive seku x-osu u vrednosti od približno 35 %, na osnovu čega je izveden zaključak da su novi kanisteri sadržavali količinu vlage koja odgovara ravnoteži na sobnoj temperaturi i vlažnosti vazduha od 35 %.

10.4.2 Promena mase recikliranih kanistera

Kada se odbace izlaganja sa nepotpunim merenjima ambijentalnih uslova, preostaje po 100 izlaganja na obe lokacije. Kao što je već prikazano u odeljku 10.3, smisleno je porediti samo izlaganja sa istim trajanjem. Izlaganja u INN Vinča su najčešće trajala 3 ili 4 dana, pa su ova dva vremena izlaganja odabrana za poređenje. Tako je bilo 50 izlaganja sa trajanjem od $3,0 \pm 0,2$ dana, a 43 izlaganja od $4,0 \pm 0,2$ dana. Minimalna vlažnost vazduha za ova izlaganja je bila 27 %, a maksimalna 68 %.

Termohigrograf je bio pozicioniran na rastojanju od 2 metra od kanistera na poziciji B, u istoj prostoriji. Kanister na poziciji A se nalazio u drugoj prostoriji, koja ima veštačku ventilaciju i koja je često zatvorena. Poređenjem očitanih temperatura na

termometrima u dve prostorije, primećeno je da se razlike temperature najčešće kreću do 2 °C, ali su zabeležene razlike i od 5 °C (kada je prostorija A zatvorena nekoliko dana u zimskom periodu). Kolika je razlika vlažnosti vazduha nije poznato. U nastavku će prvo biti prikazani podaci za poziciju A.

Na slici 10.4 je prikazana promena mase recikliranih kanistera na poziciji A u zavisnosti od vlažnosti vazduha. Poređenje sa krivim izrađenim na osnovu promena mase novih kanistera (slika 10.4a) pokazuje da su promene mase recikliranih kanistera značajno veće, što ukazuje na potrebu da se razlike koriguju.

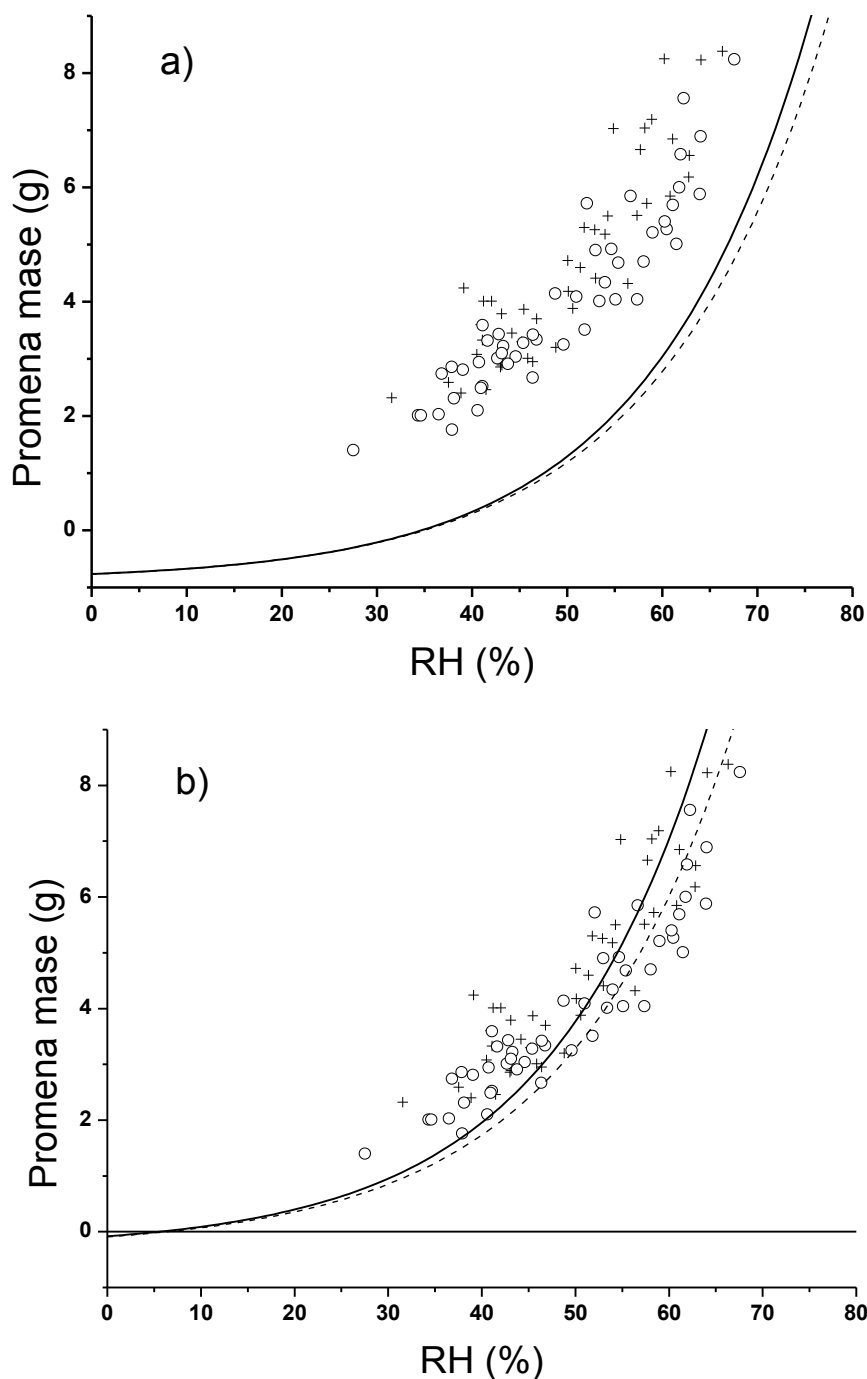
Prvi korak u određivanju korekcije je modifikacija jednačine 10.2 tako da se dobije bolje slaganje sa eksperimentalnim podacima. Međutim, modifikacija mora da se obavi uz pretpostavku da se kanisteri koji se koriste u INN Vinča ponašaju na isti način kao EPA kanisteri, jer u suprotnom kalibracione krive ne mogu da se primenjuju za takve kanistere. U jednačini 10.2, parametri A i B se mogu povezati sa svojstvima kanistera i aktivnog uglja, pa svaka jednačina koja opisuje promenu mase recikliranih kanistera mora da ima iste vrednosti tih parametara za odgovarajuće vreme izlaganja. U korigovanim jednačinama mogu da se menjaju vrednosti parametra C (za reciklirane kanistere označen C_r), koji određuje gde kriva seče y-osu, i da se koriguje vrednost vlažnosti vazduha, uvođenjem dodatnog parametra RH_o . I C i RH_o zavise od početnog sadržaja vlage. Korigovana jednačina tada postaje: (Živanović et al, 2016):

$$\Delta m_r = Ae^{(RH+RH_o)/B} + C_r \quad (10.3)$$

gde je Δm_r promena mase recikliranog kanistera.

Da bi se odredile vrednosti C_r i RH_o za reciklirane kanistere, potrebno je uraditi fitovanje eksperimentalnih podataka jednačinom 10.3 sa fiksiranim vrednostima A i B. Međutim, potrebno je uvesti i dodatne uslove, na osnovu sledećeg razmatranja. Kanisteri pre izlaganja sadrže manju ili veću količinu vlage, koja odgovara stanju ravnoteže pri određenoj vlažnosti vazduha na sobnoj temperaturi. Kada se kanisteri otvore, ako vladaju uslovi baš takve vlažnosti vazduha, neće dolaziti do promene mase kanistera, bez obzira na dužinu izlaganja. Zbog toga sve krive treba da seku x-osu u toj tački (u granici greške). Na slici 10.3 se vidi da zaista sve krive za nove kanistere seku x-osu za vlažnost vazduha od približno 35 %, pa se očekuje da takav slučaj bude i za reciklirane kanistere. Drugo, krive moraju seći x-osu za pozitivnu vrednost vlažnosti vazduha, ako se zanemari promena mase usled adsorpcije/desorpcije drugih hemijskih

vrsta. Naime, bilo koju količinu vlage da kanisteri sadrže, za vlažnost vazduha od 0 % će dolaziti do smanjenja mase kanistera.

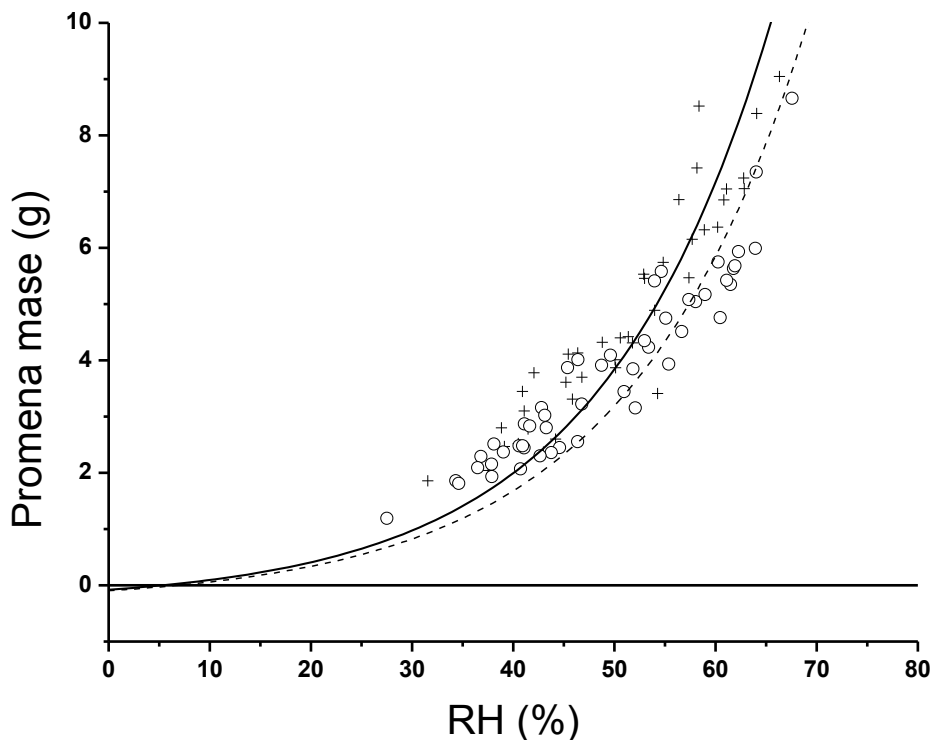


Slika 10.4 Promena mase recikliranih kanistera na poziciji A, za različitu vlažnost vazduha i vreme izlaganja; ○ - izlaganja od tri dana; + - izlaganja od četiri dana; a) poređenje sa krivima koje odgovaraju novim kanisterima; b) korigovane krive za reciklirane kanistere

Presek krivih za reciklirane kanistere sa y-osom se mora nalaziti između 0,75 g (odsečak za nove kanistere) i 0 g. Ova vrednost je procenjena na 0,18 g, što je srednja masa adsorbovane vlage između sušenja i izlaganja kanistera (odjeljak 10.1). Vrednost C_r je određena prema odsečku na y-osi, a vrednost RH_0 je fitovana. Ovako određene krive su prikazane na slici 10.4b. Vrednosti RH_0 iznose 9,6 % za izlaganja od 3 dana i 10,6 % za izlaganja od 4 dana, što se dobro slaže sa prethodno objavljenim vrednostima (9,1 % i 10,5 %, redom) (Živanović et al, 2016). Vrednosti R^2 iznose 0,65 i 0,57, a relativno niske vrednosti su posledica odstupanja vremena izlaganja od 3, odnosno 4 dana, merne nesigurnosti kalibracije vlagomera, razlika u temperaturi i vlažnosti između prostorija, eventualnih razlika u kanisterima, nesavršenosti fizičkog modela, grešaka koje se unose pretpostavkama, razlika u temperaturi tokom različitih izlaganja itd. Merna nesigurnost određivanja parametara nije razmatrana, prvenstveno zbog nepoznavanja mernih nesigurnosti koje unose fizički model i načinjene pretpostavke, a zatim i zbog složenog matematičkog modela.

Izlaganja na poziciji B su obrađena na isti način, a izračunate vrednosti RH_0 iznose 9,1 % za tri dana i 10,9 % za četiri dana. Relativna razlika vrednosti za poziciju A i B iznosi samo nekoliko procenata, što predstavlja veoma dobro slaganje. Vrednosti R^2 su za poziciju B veće i iznose 0,76 i 0,79 za izlaganja od tri i četiri dana, redom. Na slici 10.5 su prikazana izlaganja na poziciji B i odgovarajuće korigovane krive.

Sve četiri korigovane krive (po dve za poziciju A i B) seku x-osu za vlažnosti vazduha između 5 % i 8 %, što se može tumačiti time da količina vlage koja preostaje u kanisterima posle sušenja odgovara ravnoteži na toj vlažnosti vazduha pri sobnoj temperaturi.



Slika 10.5 Promena mase recikliranih kanistera na poziciji B, za različitu vlažnost vazduha i vreme izlaganja; ○ - izlaganja od tri dana; + - izlaganja od četiri dana;

10.4.3 Primena korekcije

S obzirom na rezultate predstavljene u glavi 10 kao i na rezultate u referenci (Živanović et al, 2016), predloženo je da se pri korišćenju recikliranih kanistera sa krivama dobijenim od proizvođača za nove kanistere (ili EPA krivama) koristi korekcija određena deljenjem jednačine 10.2 jednačinom 10.3:

$$\Delta m_{c,est} = (\Delta m_r - C_r) e^{\frac{-RH_0}{t}} + C \quad (10.4)$$

gde je $\Delta m_{c,est}$ procenjena vrednost promene mase za novi kanister.

Ipak, pre primene korekcije, neophodno je izvršiti proveru u relevantnoj interkomparaciji ili na drugi način. Na osnovu razlika u promeni mase kanistera, za izlaganja od 3 i 4 dana bi korigovana vrednost $C_{f,48}$ bila veća oko 10 % za uslove niske i srednje vlažnosti vazduha, a oko 15 % za uslove visoke vlažnosti vazduha, pa bi izračunate koncentracije radona bile manje. Za izlaganja od 2 dana, očekivane su manje razlike.

11 Paralelna merenja i međulaboratorijska poređenja

U ovoj glavi su prikazani rezultati međulaboratorijskih poređenja i paralelnih merenja. Paralelna merenja su izvođena u INN Vinča na više različitih detektora, dinamikom od dva puta godišnje. Međulaboratorijska poređenja su organizovana sa drugim laboratorijama iz zemlje i inostranstva, pri čemu su posebno važna poređenja rezultata ostvarenih pomoću EPA metode sa rezultatima izmerenim drugim metodama.

Paralelna merenja i međulaboratorijska poređenja su omogućila da se provere eksperimentalne i teorijske postavke opisane u prethodnim glavama, kao i da se proverila da li je merna nesigurnost adekvatno određena. Pored toga, omogućila su da se primete eventualne greške prisutne u primeni metode i da se te greške uklone. Analiza rezultata je omogućila i da se odredi koje kalibracione krive najbolje odgovaraju izlaganju kanistera INN Vinča u zatvorenom prostoru. U ovoj glavi će prvo biti izloženi rezultati, a zatim i zbirni zaključak koji proizlazi iz svih poređenja.

11.1 Paralelna merenja u INN Vinča

Paralelna merenja su izvođena tako što je isti kanister meren na više različitih detektora (obično tri ili četiri), posle različitog vremena od zatvaranja kanistera i od strane različitih ispitivača.

U tabeli 11.1 su prikazani rezultati paralelnih merenja koncentracije radona iz prve polovine 2016. godine (koncentracije su izračunate primenom originalnih krivih iz EPA metode).

Rezultati dobijeni na osnovu spektara sa detektora 1, 3 i NaI detektora pokazuju odlično slaganje, sa vrlo malim vrednostima z-testa. Međutim, rezultati dobijeni na detektoru 2 se značajno razlikuju, a detaljnom analizom i ponovljenim merenjem fona i spektra kanistera nije utvrđeno kako je do razlike došlo niti je uzrok uklonjen. Zbog toga je na osnovu paralelnih merenja odlučeno da se detektor 2 ne koristi za merenja, do ponovne kalibracije efikasnosti i provere u paralelnim merenjima.

Tabela 11.1 Rezultati paralelnih merenja koncentracije radona (proleće 2016), merna nesigurnost je izražena sa faktorom pokrivanja 2

Detektor	A_{rn} (prvi kanister) (Bq/m ³)	A_{rn} (drugi kanister) (Bq/m ³)
NaI	248 ± 28	147 ± 17
1	242 ± 28	139 ± 17
2	308 ± 35	183 ± 22
3	244 ± 27	140 ± 16

Ostali rezultati paralelnih merenja su bili zadovoljavajući tokom 5 godina primene metode, što daje poverenje u doslednu primenu EPA metode u INN Vinča.

11.2 Nacionalno međulaboratorijsko poređenje

U toku 2013. godine je sprovedeno međulaboratorijsko poređenje u kome su učestvovala tri laboratorije iz Srbije koje su akreditovane za merenje koncentracije radona metodom EPA 520. U poređenju je učestvovala i INN Vinča. Izloženo je ukupno 8 kanistera, po četiri na dve lokacije, koji su zatim mereni u sve tri laboratorije. Srednja vrednost koncentracije radona je izračunata zasebno za obe lokacije, na osnovu 12 pojedinačnih vrednosti (po četiri kanistera merena u tri laboratorije). Zatim je određena korigovana srednja vrednost, tako što su zanemarene sve vrednosti koncentracije radona koje se razlikuju od srednje vrednosti za više od 10 % (Pantelić et al, 2013).

Pošto je određena srednja vrednost, za svaku pojedinačnu vrednost koncentracije radona je izračunata vrednost u-testa, prema formuli 11.1:

$$u = \frac{|A_s - A_l|}{\sqrt{U_s^2 - U_l^2}} \quad (11.1)$$

gde je A_s srednja vrednost koncentracije radona, A_l l-ta koncentracija radona, a U_s i U_l odgovarajuće proširene merne nesigurnosti ($k = 2$). Korišćen je kriterijum maksimalne u vrednosti od 2,56 (Pantelić et al, 2013).

Vrednosti u-testa su prikazane u tabeli 11.2. Iz tabele se može videti da samo jedna vrednost ne zadovoljava kriterijum, a kao zaključak interkomparacije je navedeno da sve tri laboratorije imaju zadovoljavajuće rezultate (Pantelić et al, 2013).

Tabela 11.2 Rezultati nacionalne radonske interkomparacije iz 2013. godine

Lab.	Institut Vinča			Institut "Dr Dragomir Karajovic"			Univerzitet u Novom Sadu		
	<i>U</i>	<i>A_i/A_s</i>	Final	<i>U</i>	<i>A_i/A_s</i>	Final	<i>U</i>	<i>A_i/A_s</i>	Final
1	0,00	1,00	A	1,41	1,14	A	2,59	1,31	N
2	0,11	1,01	A	0,54	0,95	A	0,00	1,00	A
3	1,30	0,88	A	0,59	1,05	A	0,24	0,98	A
4	2,00	0,81	A	0,00	1,00	A	0,14	0,99	A
5	0,58	0,91	A	1,97	0,70	A	1,41	1,23	A
6	0,58	0,91	A	0,30	1,05	A	0,51	1,08	A
7	0,93	0,85	A	0,09	0,99	A	1,84	0,72	A
8	1,14	0,82	A	0,34	1,05	A	1,41	1,22	A

11.3 Međulaboratorijsko poređenje FERAS 2012

U okviru prvog Istočnoevropskog radonskog simpozijuma – FERAS 2012. godine, organizovano je i međulaboratorijsko poređenje. Poređenje je izvršeno za srednje i visoke koncentracije radona, a INN Vinča je učestvovala u poređenju samo u srednjim koncentracijama. Referentne vrednosti koncentracije radona su određene aktivnim detektorom RADIM 3A, proizvedenim od strane GT Analytic (Papp et al, 2014).

Poređenje u uslovima srednjih koncentracija radona je organizovano u laboratorijskim prostorijama (van radonske komore), gde koncentracija radona nije kontrolisana (slika 11.1). Izlaganje je trajalo 59 sati, a koncentracija radona se kretala između 250 Bq/m^3 i 1300 Bq/m^3 , pri čemu su najviše koncentracije bile pri kraju izlaganja (prosek oko 1000 Bq/m^3 u poslednjih 24 h). Referentna srednja vrednost koncentracije radona je iznosila $741 \pm 95 \text{ Bq/m}^3$ ($k = 2$). S obzirom na to da EPA metoda nije prava integralna metoda, za očekivati je da izmerena vrednost bude veća od referentne vrednosti, zbog promena koncentracije tokom merenja. Temperatura tokom izlaganja je bila $24,2 \pm 0,2 \text{ }^\circ\text{C}$, vlažnost vazduha $46,7 \pm 1,0 \%$ i pritisak $976,7 \pm 1,6 \text{ hPa}$ (sve merne nesigurnosti su izražene sa $k = 2$) (Papp et al, 2014).



Slika 11.1 Aktivni i pasivni detektori u međunarodnom međulaboratorijskom poređenju FERAS 2012 (slika preuzeta iz reference Papp et al, 2014)

INN Vinča je koristila dva kanistera u interkomparaciji, a koncentracije su određene na osnovu originalnih krivih iz EPA metode i iznose $1053 \pm 58 \text{ Bq/m}^3$ i $1040 \pm 58 \text{ Bq/m}^3$ ($k = 2$). Z-test pokazuje da su referentna vrednost i rezultat INN Vinča značajno različiti ($z_1 = 5,61$ i $z_2 = 5,37$).

Značajno manja odstupanja se dobijaju korišćenjem polinomijalnih funkcija iz dodatka EPA metode, jer su ovako izračunate koncentracije radona $863 \pm 46 \text{ Bq/m}^3$ i $874 \pm 46 \text{ Bq/m}^3$ ($k = 2$), a odgovarajuće vrednosti z-testa 2,31 i 2,52, redom. Razlika u izmerenim koncentracijama se može objasniti većom koncentracijom radona pri kraju izlaganja kanistera, na šta je EPA metoda osetljiva. Ukoliko bi se ovaj uticaj uzeo u obzir posredstvom merne nesigurnosti, postiglo bi se zadovoljavajuće slaganje metoda (o tome će biti više diskutovano u glavi 12).

U interkomparaciji FERAS 2012 je učestvovalo 13 laboratorija sa velikim brojem aktivnih i pasivnih detektora, a najveći broj prijavljenih rezultata nije statistički značajno različit od referentne vrednosti (vrednost z-testa je manja od 1,96) (Papp et al,

2014). Dobro podudaranje rezultata različitih laboratorija omogućava visok stepen poverenja u referentnu vrednost.

11.4 Poređenje EPA metode i trag detektora (dugo izlaganje)

Paralelno sa izlaganjima ugljenih kanistera u toku godišnje kampanje predstavljene u glavi 9, bila su postavljena i četiri trag detektora CR-39 (slika 11.2), koji su očitavani u kompaniji Landauer u Švedskoj. Po jedan trag detektor je bio postavljen na poziciji A i B od 31.3.2015. do 26.4.2016. (13 meseci) i po jedan na obe pozicije od 25.9.2015. do 26.4.2016. (7 meseci).



Slika 11.2 Detektori CR-39

U tabelama 11.3 i 11.4 su prikazane srednje vrednosti rezultata dobijenih primenom originalnih krivih iz EPA metode i polinomijalnih krivih iz dodatka, kao i rezultati dobijeni primenom trag detektora.

Poređenje je pokazalo da ne postoje statistički značajne razlike između ugljenih kanistera i trag detektora ni kada se koriste krive iz EPA metode, ni kada se koriste krive iz dodatka. Apsolutne vrednosti z-testa su manje kada se koriste krive iz dodatka. Interesantno je primetiti da je prijavljena merna nesigurnost maltene identična za trag detektore i ugljene kanistere.

Tabela 11.3 Rezultati poređenja EPA metode i trag detektora, merna nesigurnost je izražena sa faktorom pokrivanja 2; originalne krive iz EPA metode

Lokacija detektora	Period postavljanja	A_{rn} (metoda, originalne krive) (Bq/m ³)	A_{rn} (trag detektori) (Bq/m ³)	Vrednost z-testa
IRPIK A	25.9.2015 – 26.4.2016.	262 ± 29	228 ± 27	1,72
IRPIK B	25.9.2015 – 26.4.2016.	167 ± 18	145 ± 17	1,78
IRPIK A	31.3.2015 – 26.4.2015.	255 ± 28	232 ± 28	1,72
IRPIK B	31.3.2015 – 26.4.2015.	165 ± 18	144 ± 17	1,72

Tabela 11.4 Rezultati poređenja EPA metode i trag detektora, merna nesigurnost je izražena sa faktorom pokrivanja 2; polinomijalne krive iz dodatka EPA metode

Lokacija detektora	Period postavljanja	A_{rn} (dodatak, polinomijalne krive) (Bq/m ³)	A_{rn} (trag detektori) (Bq/m ³)	Vrednost z-testa
IRPIK A	25.9.2015 – 26.4.2016.	209 ± 23	228 ± 27	-1,07
IRPIK B	25.9.2015 – 26.4.2016.	132 ± 15	145 ± 17	-1,15
IRPIK A	31.3.2015 – 26.4.2015.	201 ± 22	232 ± 28	-1,74
IRPIK B	31.3.2015 – 26.4.2015.	130 ± 14	144 ± 17	-1,27

11.5 Zaključci izvedeni na osnovu međulaboratorijskih poređenja i paralelnih merenja

Na osnovu rezultata prikazanih u odeljcima 11.1 i 11.2, može se zaključiti da postoji visoka reproduktivnost rezultata koncentracije radona izmerenih pomoću ugljenih kanistera, čak i kada se koriste različite kalibracione krive, različiti gama-spektrometri, a merenja vrše različiti ispitivači u različitim institucijama. Takođe je

zaključeno da korekcija na vreme poluraspada radona ne utiče značajno na izmerenu koncentraciju radona (rezultati mereni u različito vreme nisu značajno različiti).

Poređenje sa drugim metodama je pokazalo da je EPA metoda osetljiva na promene koncentracije radona i da merna nesigurnost određena kao u glavi 8 nije adekvatna za sve uslove merenja. Dodatno razmatranje merne nesigurnosti će biti prikazano u glavi 12. Konačno, pokazano je da rezultati izračunati korišćenjem krivih izrađenih za aktivnu atmosferu (iz dodatka EPA metode) bolje odgovaraju referentnim vrednostima.

12 Dodatno razmatranje kalibracionog faktora i optimizacija uslova merenja

U glavi 8 je predstavljen jednostavan model budžeta merne nesigurnosti. Merna nesigurnost izračunata po ovom modelu iznosi nešto više od 10 % ($k = 2$) za merni sistem korišćen u laboratoriji INN Vinča za srednje koncentracije radona, a raste kako koncentracija opada ka granici detekcije metode, koja je tipično oko 20 Bq/m^3 . Lako je pokazati da ovako izračunata merna nesigurnost može biti i značajno manja (reda veličine 2 % do 3 %) ukoliko bi se koristili skuplji komercijalno dostupni standardi ^{226}Ra sa manjom mernom nesigurnošću ili kalibracije obavljale u metrološkim laboratorijama višeg ranga.

Rezultati ostvareni u međulaboratorijskim poređenjima kao i zaključci izvedeni iz merne kampanje u INN Vinča ukazuju na to da navedeni model merne nesigurnosti ipak nije adekvatan za sve uslove u kojima se koriste ugljeni kanisteri. U ovoj glavi će ponovo biti razmotren budžet merne nesigurnosti i ograničenja u njegovoj primeni, a biće razmotreni i dostupni literaturni podaci. U glavi 8 je eksplicitno i implicitno zanemaren veliki broj doprinosa mernoj nesigurnosti jer je cilj bio da se napravi model budžeta koji bi bio jednostavno primenljiv, a da procena merne nesigurnosti bude što adekvatnija. Međutim, mnogi doprinosi koji mogu biti zanemareni u određenim uslovima merenja u drugačijim uslovima postaju značajni. Cilj ove glave je da se takvi doprinosi identifikuju i da se odredi način da se njihov uticaj smanji.

Merna nesigurnost će biti uzeta u obzir tako što će biti pretpostavljeno da je svaki činilac u jednačini 8.1 u stvari i sam proizvod nekorigovane vrednosti i odgovarajućih korekcionih faktora. Na primer, $C_f = C_{f,nk} * \prod k_i$, gde je $C_{f,nk}$ nekorigovana vrednost kalibracionog faktora a k_i korekcionni faktor za i -ti doprinos (temperaturu, kretanje vazduha, promene koncentracije radona itd.). Tako je vrednost svih kalibracionih faktora u uslovima identičnim onim pri kalibraciji jednaka jedinici. U svim drugim uslovima, teoretski je moguće odrediti vrednosti korekcionih faktora i korigovanu vrednost kalibracionog faktora. Praktično, pogotovo s obzirom na to da je EPA metoda zamišljena kao jeftina i jednostavna metoda, vrednosti korekcionih faktora su nepoznate. Drugi pristup je da se odredi opseg u kojem vrednosti korekcionih faktora

mogu da se kreću i da se odgovarajuće uticajne veličine uzmu u obzir preko merne nesigurnosti. Na primer, ako temperatura menja kalibracioni faktor za 30 % između 16 °C i 26 °C, a kalibracija je izvršena na 21 °C, onda je opravdano pretpostaviti da je vrednost korekcionog faktora oko 0,85 na 16 °C i 1,15 na 26 °C (na temperaturi od 21 °C je 1). Pošto vrednosti temperature i korekcionog faktora nisu poznate, moguće je reći da u tom temperaturnom opsegu korekciono faktor ima nesigurnost od 15 % ($k = 1,73$), a propagacija merne nesigurnosti se određuje na isti način kao za bilo koji proizvod.

12.1 Merna nesigurnost prema drugim autorima

U literaturi nije moguće naći mnogo podataka o određivanju merne nesigurnosti za merenje radona pomoću ugljenih kanistera, posebno za metodu EPA 520. Ovde će biti diskutovane dve reference.

Prema vodiču koji je objavio WHO (WHO, 2009), tipična merna nesigurnost merenja radona pomoću ugljenih kanistera se kreće između 10 % i 30 % (faktor pokrivanja nije naveden), u uslovima koncentracije radona oko 200 Bq/m³. Ovaj opseg merenih nesigurnosti se ne odnosi samo na EPA metodu 520, već i na druge metode koje su zasnovane na korišćenju ugljenih kanistera. Merne nesigurnosti izračunate u INN Vinča su u nižem delu navedenog opsega, ako se pretpostavi faktor pokrivanja 2. Detaljnije poređenje nije moguće, jer u referenci nije opisan način računanja merne nesigurnosti.

Žukovski i saradnici su procenili mernu nesigurnost na 25 % do 35 % ($k = 2$) (Zhukovski et al, 2010), što je značajno više od vrednosti izračunatih u INN Vinča. S obzirom na to da je u ovoj referenci objašnjen način računanja merne nesigurnosti, moguće je izvršiti analizu. Navedena su četiri značajna doprinosa mernoj nesigurnosti: kalibracioni koeficijent sekundarnog standarda, slučajni efekti kod kalibracije kanistera, statistika brojanja korisničkog kanistera i promena koncentracije radona u toku merenja.

Kada je u pitanju kalibracioni koeficijent sekundarnog standarda, navedena je merna nesigurnost od 10 % ($p = 0,95$) (Zhukovski et al, 2010). Pregledom baze ključnih poređenja BIPM (BIPM, 2016), primećuje se da iako pojedine laboratorije etaloniraju merila koncentracije radona sa sličnom mernom nesigurnošću, druge laboratorije su

prijavile mernu nesigurnost koja je i do 10 puta manja. Prema tome, ovaj doprinos je moguće značajno smanjiti.

Žukovski i saradnici su procenili doprinos slučajnih efekata kod kalibracije radonskih kanistera na 14 %, odnosno 17 % ($p = 0,95$), u zavisnosti od toga da li se koristi prosečna vrednost promene mase tokom izlaganja. Identifikovana su tri uzroka slučajnih grešaka, među kojima su neravnomerna distribucija radona u kanisteru (5 % do 8 %), statistika brojanja (2 % do 3 %) i merna nesigurnost procene adsorbovane mase vode (0,06 g do 0,11 g, što uzrokuje mernu nesigurnost od 9 % do 10 %) (Zhukovski et al, 2010). U odeljku 12.2 će slučajni efekti kod kalibracije kanistera biti detaljno statistički razmotreni na osnovu podataka objavljenih od strane US EPA (Gray and Windham, 1987; EPA, 1989), a u odeljku 12.9 će biti diskutovani ostali doprinosi.

Statistika brojanja korisničkih kanistera je u merenjima Žukovskog i saradnika doprinosila mernoj nesigurnosti od 10 % do 20 % ($p = 0,95$). U referenci je navedeno da se ta cifra odnosi samo na taj tip kanistera (nije navedeno više podataka o konstrukciji kanistera ili masi uglja), ali i za njihove uslove merenja na gama-spektrometru (Zhukovski et al, 2010). Međutim, u glavi 8 je pokazano da je ovaj doprinos mernoj nesigurnosti znatno manji za kanistere korišćene u INN Vinča.

Konačno, doprinos promene koncentracije radona nije razmatran u glavi 8, niti je bilo moguće odrediti ovaj doprinos dostupnom mernom opremom. Zbog toga će u odeljku 12.6 biti poređeni nalazi Žukovskog i saradnika (Zhukovski et al, 2010), Džordža (George, 1984), Ronka-Batiste i Greja (Ronca Battista and Gray, 1989) i Arafa (Arafa et al, 2005).

12.2 Merna nesigurnost tipa A kalibracionog faktora i faktora podešavanja

U ovom odeljku će biti pokazano na koji način je izračunata merna nesigurnost tipa A kalibracionog faktora i faktora podešavanja, kada su ovi faktori određeni primenom linearne i kvadratne regresije. U korišćenim modelima za proračun merne nesigurnosti, merna nesigurnost nezavisne promenljive se ne razmatra posebno, već je uzeta u obzir preko standardne greške procene zavisne promenljive (Jeter, 2003).

12.2.1 Merna nesigurnost tipa A kalibracionog faktora za 48 sati izračunatog primenom linearne funkcije

Kalibracioni faktor za 48 sati se računa na osnovu linearne jednačine fitovane pomoću eksperimentalnih podataka:

$$C_{f,48} = a + b\Delta m \quad (12.1)$$

Mernu nesigurnost tipa A kalibracionog koeficijenta je moguće odrediti analitički. Da bi se odredila merna nesigurnost C_f , pogodno je osloboditi se slobodnog člana, da bi se izbegla korelacija između a i b . Neka postoji n parova eksperimentalno određenih vrednosti C_f i Δm i neka su $\overline{C_f}$ i $\overline{\Delta m}$ njihove srednje vrednosti. Tada važi:

$$a = \overline{C_{f,48}} - b\overline{\Delta m} \quad (12.2)$$

$$C_{f,48} = \overline{C_{f,48}} + b(\Delta m - \overline{\Delta m}) \quad (12.3)$$

Merna nesigurnost C_f se sada može odrediti prostom primenom zakona o propagaciji merne nesigurnosti:

$$u_{C_{f,48}}^2 = u_{\overline{C_{f,48}}}^2 + (\Delta m - \overline{\Delta m})^2 u_b^2 \quad (12.4)$$

Merna nesigurnost parametra b se određuje na sledeći način:

$$u_b^2 = \frac{SEE^2}{\sum \Delta m_i^2 - n(\overline{\Delta m})^2} \quad (12.5)$$

gde je SEE standardna greška procene zavisne promenljive, koja se određuje na osnovu jednačine 12.6:

$$SEE = \sqrt{\frac{\sum (C_{f,i} - C_{f,i,est})^2}{n - 2}} = \sqrt{\frac{\sum (C_{f,i} - a - b\Delta m_i)^2}{n - 2}} \quad (12.6)$$

gde je $C_{f,i}$ i -ta vrednost C_f , $C_{f,i,est}$ procenjena vrednost C_f na osnovu jednačine 12.1 i n broj parova vrednosti.

Konačno, merna nesigurnost srednje vrednosti C_f se određuje prema jednačini 12.7:

$$u_{\overline{C_{f,48}}} = \frac{SEE}{\sqrt{n}} \quad (12.7)$$

Zamenom izraza 12.6 i 12.7 u 12.4, konačno je moguće izračunati mernu nesigurnost C_f (Jeter, 2003).

Kada se u jednačinu 12.4 zamene brojne vrednosti koje odgovaraju podacima iz EPA metode i dodatka, dobijaju se jednačine 12.8 i 12.9, redom:

$$u_{C_f,48}^2 = 0,00074^2 + (\Delta m - 3,18)^2 0,00023^2 \quad (12.8)$$

$$u_{C_f,48}^2 = 0,00068^2 + (\Delta m - 2,87)^2 0,00020^2 \quad (12.9)$$

Apsolutna merna nesigurnost C_f je uvek najmanja za $\overline{\Delta m}$, a najveća je za minimalne i maksimalne vrednosti Δm . Brojne vrednosti relativnih mernih nesigurnosti ovako izračunatih se kreću između 0,7 % i 1,7 % ($k = 1$). Razmatrane su samo promene mase koje su obuhvaćene kalibracijom, t.j. od 0 g do 8 g.

12.2.2 Merna nesigurnost tipa A faktora podešavanja izračunatog primenom kvadratnih funkcija

Određivanje merne nesigurnosti A_f izračunatog na osnovu kvadratne funkcije predstavljene jednačinom 12.10 predstavlja komplikovan problem.

$$A_f = a + bT_e + cT_e^2 \quad (12.10)$$

Naime, postoji značajna korelacija između parametara funkcije, pa je neophodno odrediti uslovnu mernu nesigurnost svakog parametra uzevši u obzir vrednosti drugih parametara (Jeter, 2003).

Da bi se problem pojednostavio, ponovo će biti eliminisan slobodan član, a , na sledeći način:

$$a = \overline{A_f} - b\overline{T_e} - c\overline{T_e^2} \quad (12.11)$$

$$A_f = \overline{A_f} + b(T_e - \overline{T_e}) + c(T_e^2 - \overline{T_e^2}) \quad (12.12)$$

Merna nesigurnost A_f na osnovu jednačine 12.12 se određuje na sledeći način, uzevši u obzir korelaciju između b i c :

$$u_{A_f}^2 = \left(\frac{SEE}{\sqrt{n}}\right)^2 + (T_e - \overline{T_e})^2 u_{b|c}^2 + (T_e^2 - \overline{T_e^2})^2 u_{c|b}^2 \quad (12.13)$$

gde je SEE standardna greška procene A_f , $u_{b|c}$ standardna merna nesigurnost parametra b , uzevši u obzir vrednost parametra c i $u_{c|b}$ standardna merna nesigurnost parametra c , uzevši u obzir vrednost parametra b (Jeter, 2003).

Uslovne merne nesigurnosti se određuju tako što se uvede nova zavisna promenljiva, $A_{f,kor}$, t.j. A_f korigovan na zavisnost od T_i , odnosno na zavisnost od T_i^2 , a zatim uradi regresiona analiza. Tako određena merna nesigurnost preostalog parametra predstavlja uslovnu mernu nesigurnost. Na primer, eliminiše se kvadratni član:

$$A_{f,kor} = A_f - cT_e^2 = a + bT_e \quad (12.14)$$

Ako se sada izvrši regresiona analiza i odredi merna nesigurnost parametra b na način opisan u odeljku 12.2.1, onda je očigledno u pitanju uslovna merna nesigurnost za datu vrednost c , t.j. $u_{b|c}$. Analogno se određuje i $u_{c|b}$.

U tabelama 12.1 i 12.2 su prikazane merne nesigurnosti za A_f izračunate na ovaj način na osnovu podataka iz EPA metode i dodatka.

Tabela 12.1 Proračun merne nesigurnosti za određivanje A_f kvadratnom funkcijom (EPA metoda), merna nesigurnost je iskazana kao standardna merna nesigurnost ($k = 1$)

Relativna vlažnost vazduha (%)	Interval važenja funkcije (min)	Jednačina za određivanje merne nesigurnosti
20	1440 - 4320	$u_{A_f}^2 = (7,88 \times 10^{-4})^2 + (T_e - 2880)^2(6,70 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 9,68 \times 10^6)^2(1,15 \times 10^{-10})^2$
20	4320 - 8640	$u_{A_f}^2 = (5,92 \times 10^{-4})^2 + (T_e - 6366)^2(3,64 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 4,30 \times 10^7)^2(2,81 \times 10^{-11})^2$
50	1440 - 5760	$u_{A_f}^2 = (6,59 \times 10^{-4})^2 + (T_e - 3600)^2(4,07 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 1,56 \times 10^7)^2(5,59 \times 10^{-11})^2$
50	5760 - 8640	$u_{A_f}^2 = (4,29 \times 10^{-4})^2 + (T_e - 7097)^2(3,72 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 5,17 \times 10^7)^2(2,59 \times 10^{-11})^2$
80	1440 - 4320	$u_{A_f}^2 = (6,93 \times 10^{-4})^2 + (T_e - 2880)^2(5,90 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 9,68 \times 10^6)^2(1,02 \times 10^{-10})^2$
80	4320 - 8640	$u_{A_f}^2 = (3,13 \times 10^{-4})^2 + (T_e - 6366)^2(1,91 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 4,30 \times 10^7)^2(1,48 \times 10^{-11})^2$

Apsolutna merna nesigurnost A_f je uvek najmanja za \bar{T}_e , a najveća je za minimalne i maksimalne vrednosti T_e . Brojne vrednosti relativnih mernih nesigurnosti ovako izračunatih se kreću između 0,5 % i 3,9 % ($k = 1$).

Tabela 12.2 Proračun merne nesigurnosti za određivanje A_f kvadratnom funkcijom (dodatak EPA metode), merna nesigurnost je iskazana kao standardna merna nesigurnost ($k = 1$)

Relativna vlažnost vazduha (%)	Interval važenja funkcije (min)	Jednačina za određivanje merne nesigurnosti
20	1440 - 4320	$u_{A_f}^2 = (1,04 \times 10^{-3})^2 + (T_e - 2880)^2(8,80 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 9,68 \times 10^6)^2(1,51 \times 10^{-10})^2$
20	4320 - 8640	$u_{A_f}^2 = (3,85 \times 10^{-4})^2 + (T_e - 6480)^2(2,36 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 4,46 \times 10^7)^2(1,82 \times 10^{-11})^2$
50	1440 - 4320	$u_{A_f}^2 = (1,15 \times 10^{-3})^2 + (T_e - 2880)^2(9,73 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 9,68 \times 10^6)^2(1,68 \times 10^{-10})^2$
50	4320 - 8640	$u_{A_f}^2 = (5,18 \times 10^{-4})^2 + (T_e - 6480)^2(3,13 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 4,46 \times 10^7)^2(2,40 \times 10^{-11})^2$
80	1440 - 4320	$u_{A_f}^2 = (6,61 \times 10^{-4})^2 + (T_e - 2880)^2(5,63 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 9,68 \times 10^6)^2(9,66 \times 10^{-11})^2$
80	4320 - 8640	$u_{A_f}^2 = (3,70 \times 10^{-4})^2 + (T_e - 6480)^2(2,30 \times 10^{-7})^2 + (T_e^2 - 4,46 \times 10^7)^2(1,77 \times 10^{-11})^2$

12.2.3 Kombinovana merna nesigurnost kalibracionog faktora

Kalibracioni faktor se računa prema jednačini 12.15:

$$C_f = C_{f,48} \frac{A_{f,t}}{A_{f,48}} \quad (12.15)$$

Kalibracioni faktor nije korelisan sa faktorima podešavanja, jer se ovi faktori nezavisno određuju. Međutim, korelacija $A_{f,t}$ i $A_{f,48}$ se mora detaljnije razmotriti. S obzirom na to da je interval vremena izlaganja u primenjenom modelu podeljen na dva dela, može se desiti da se $A_{f,t}$ i $A_{f,48}$ određuju pomoću iste funkcije i da se određuju pomoću različitih funkcija. Ukoliko se određuju pomoću različitih funkcija, biće pretpostavljeno da ne postoji korelacija. Ako se određuju pomoću iste funkcije, ponovo postoje dva slučaja: u slučaju da je vreme izlaganja 48 sati, $A_{f,t}/A_{f,48}$ postaje jednako jedinici, kao i korelacioni koeficijent, pa ova dva faktora ne doprinose mernoj nesigurnosti. Za sve druge slučajeve je potrebno napraviti model kovarijanse.

Prema izloženim pretpostavkama, model kombinovane merne nesigurnosti za C_f se može predstaviti na sledeći način:

$$u_{C_f}^2 = \left(\frac{\partial C_f}{\partial C_{f,48}} \right)^2 u_{C_{f,48}}^2 + \left(\frac{\partial C_f}{\partial A_{f,T}} \right)^2 u_{A_{f,T}}^2 + \left(\frac{\partial C_f}{\partial A_{f,48}} \right)^2 u_{A_{f,48}}^2 + 2 \frac{\partial C_f}{\partial A_{f,T}} \frac{\partial C_f}{\partial A_{f,48}} u(A_{f,T}, A_{f,48}) \quad (12.14)$$

$$u_{C_f}^2 = \left(\frac{A_{f,t}}{A_{f,48}} \right)^2 u_{C_{f,48}}^2 + \left(\frac{C_{f,48}}{A_{f,48}} \right)^2 u_{A_{f,T}}^2 + \left(-\frac{A_{f,T} C_{f,48}}{A_{f,48}^2} \right)^2 u_{A_{f,48}}^2 - 2 \frac{C_{f,48}}{A_{f,48}} \frac{C_{f,48} A_{f,T}}{A_{f,48}^2} u(A_{f,T}, A_{f,48}) \quad (12.15)$$

$$\frac{u_{C_f}^2}{C_f^2} = \frac{u_{C_{f,48}}^2}{C_{f,48}^2} + \frac{u_{A_{f,T}}^2}{A_{f,T}^2} + \frac{u_{A_{f,48}}^2}{A_{f,48}^2} - \frac{2u(A_{f,T}, A_{f,48})}{A_{f,T} A_{f,48}} \quad (12.16)$$

a doprinos koji potiče od $A_{f,T}$ i $A_{f,48}$ jednačinom 12.17:

$$\frac{u_{A_{f,T}/A_{f,48}}^2}{(A_{f,T}/A_{f,48})^2} = \frac{u_{A_{f,T}}^2}{A_{f,T}^2} + \frac{u_{A_{f,48}}^2}{A_{f,48}^2} - \frac{2u(A_{f,T}, A_{f,48})}{A_{f,T} A_{f,48}} \quad (12.17)$$

Za određivanje kovarijanse, ponovo je pogodno poći od izraza 12.12 i primeniti jednačinu 5.15. Na osnovu već izvedenih relacija, dobija se:

$$u(A_{f,T}, A_{f,48}) = \frac{\partial A_{f,T}}{\partial A_f} \frac{\partial A_{f,48}}{\partial A_f} u_{A_f}^2 + \frac{\partial A_{f,T}}{\partial b} \frac{\partial A_{f,48}}{\partial b} u_b^2 + \frac{\partial A_{f,T}}{\partial c} \frac{\partial A_{f,48}}{\partial c} u_c^2 \quad (12.18)$$

$$u(A_{f,T}, A_{f,48}) = \left(\frac{SEE}{\sqrt{n}} \right)^2 + (T_e - \bar{T}_e)(2880 - \bar{T}_e) u_{b|c}^2 + (T_e^2 - \bar{T}_e^2) (2880^2 - \bar{T}_e^2) u_{c|b}^2 \quad (12.19)$$

U poslednjoj jednačini, uzeto je u obzir da vreme izlaganja za $A_{f,48}$ iznosi 48 sati, a oznaka T_e se odnosi na vreme izlaganja za koje je izračunato $A_{f,T}$. Značenje drugih oznaka je isto kao u odeljku 12.1.2, a njihove vrednosti su date za svih 12 jednačina u tabelama 12.1 i 12.2.

Prema svemu izloženom u odeljku 12.1, minimalna merna nesigurnost tipa A kalibracionog faktora se dobija za vreme izlaganja od 48 sati i promenu mase od 3,18 g u slučaju EPA metode, odnosno 2,87 g u slučaju dodatka. Merne nesigurnosti su u tom slučaju 0,8 % i 0,7 %, redom ($k = 1$). Maksimalna merna nesigurnost se dobija za vreme izlaganja od 6 dana i promenu mase od 8 g i iznosi 4,4 % za EPA metodu i 3,3 % za dodatak ($k = 1$).

Merna nesigurnost tipa A vezana za kalibraciju kanistera je tako značajno manja kada su u pitanju podaci iz EPA metode i dodatka, u odnosu na mernu nesigurnost koju su odredili Žukovski i saradnici (Zhukovski et al, 2010).

12.3 Promena mase kanistera, vlažnost vazduha i kalibracioni faktor

U ovom odeljku neće biti razmatran odabir A_f krive na osnovu promene mase kanistera, jer je to odvojeno diskutovano u odeljku 12.7.

U glavi 10 je pokazano da se reciklirani kanisteri ne ponašaju na isti način kao novi kanisteri, odnosno da se pogrešno određuje vlažnost vazduha na osnovu promene njihove mase. Na ovaj način se unosi greška između 10 % i 15 % ukoliko se koriste polinomijalne krive iz dodatka EPA metode. Izradom krivih za reciklirane kanistere ili primenom korekcije, ovaj sistematski efekat postaje značajno manji.

Međutim, time se ne završava razmatranje određivanja promene mase kanistera. Prvo, rezolucija vage je 0,01 g i ona ulazi u mernu nesigurnost dvaput, nekorelisano. Neodređenost merenja promene mase je tako 0,014 g, što je zanemarljivo uzevši u obzir način na koji $C_{f,48}$ zavisi od Δm . Drugo, iako se uradi kalibracija za reciklirane kanistere, ipak će postojati razlike u sadržaju vlage između kanistera korišćenih za kalibraciju i kasnije recikliranih kanistera. Na osnovu izmerene količine vlage koju zatvoreni kanisteri prime stajanjem tokom više meseci (odeljak 10.1), može se pretpostaviti da kanister tokom skladištenja može da primi količinu vlage između 0 i 0,5 g. Ako se pretpostavi pravougaona raspodela i faktor pokrivanja 1,73, standardna merna nesigurnost promene mase je 0,15 g, što uzrokuje standardnu mernu nesigurnost $C_{f,48}$ od oko 1 %.

Konačno, postavlja se pitanje kolika je ponovljivost određivanja promene mase kanistera i na koji način ponovljivost utiče na mernu nesigurnost. Naime, ako je postavljeno 10 kanistera veoma blizu jedan drugom, može se pretpostaviti da se nalaze na istoj vlažnosti vazduha. Međutim, kanisteri će adsorbovati različitu količinu vlage, a standardna devijacija promena mase može da bude i do 0,5 g (vrednost određena na osnovu izlaganja u INN Vinča). Nesporno je da vlažnost vazduha koja bi bila određena na osnovu ovakvih izlaganja ima veliku mernu nesigurnost, ali s druge strane kanisteri zaista sadrže različitu količinu vlage, pa im je i kalibracioni faktor zaista različit. Zbog

nedovoljno dobrog poznavanja fizičkog modela, ovaj efekat će biti razmatran zajedno sa drugim slučajnim efektima u odeljku 12.9.

12.4 Uticaj temperature na kalibracioni faktor

Korekcija na ambijentalnu temperaturu na mestu izlaganja se prema EPA metodi ne primenjuje. Odsustvo korekcije je opravdano istraživanjima Džordža (George, 1984), koji nije primetio uticaj temperature na vrednosti kalibracionog faktora u opsegu temperatura od 18 °C do 27 °C. EPA kalibracione krive iz metode i dodatka su određivane pri temperaturi 21 °C (EPA, 1989).

Međutim, drugi autori su pokazali da postoji izražena zavisnost adsorpcionog koeficijenta od temperature, čak i u opsegu koji je ispitivao Džordž. Zikovski (Zikovsky, 2001) je ispitivao adsorpcioni koeficijent radona prema definiciji Koena i Koena (Cohen and Cohen, 1983) i primetio je da različiti tipovi uglja pokazuju dramatično različitu zavisnost. Tako se adsorpcioni koeficijent između temperatura od -21 °C i +26 °C smanjuje čak četrdesetostruko u najgorem slučaju, dok se kod uglja granulacije poput uglja koji se koristi za EPA kanistere (i kanistere koji se koriste u INN Vinča) adsorpcioni koeficijent smanjuje petostruko. Prema Zikovskom, ako se isti kanister koristi za merenje iste koncentracije radona na 25 °C, recimo na prvom spratu stambenog objekta, i na 15 °C, recimo u podrumu, razlika izmerenih vrednosti će biti između 26 % i 36 % (Zikovsky, 2001).

El Saman i saradnici su takođe ispitivali zavisnost adsorpcionog koeficijenta od temperature i vlažnosti vazduha. Ako se posmatraju izlaganja pri konstantnoj vlažnosti vazduha, bilo da je u pitanju niska, srednja ili visoka vlažnost, adsorpcioni koeficijent opadne za oko 30 % kada temperatura poraste sa 15 °C na 30 °C. Ako se posmatra opseg temperatura između 15 °C i 25 °C, onda je zabeležen pad adsorpcionog koeficijenta između 20 % i 30 %, s tim što je pad najmanji za uslove niske vlažnosti vazduha (El Samman et al, 2002).

Ronka-Batista i Grej su ispitivali kanistere i aktivni ugalj kakvi su korišćeni u EPA metodi i dodatku. Prema njihovim nalazima, pad adsorpcije radona kada se temperatura poveća sa 10 °C na 27 °C je 28 % za vlažnost vazduha od 50 %, odnosno 40 % za vlažnost vazduha od 80 %. Ako se posmatra porast temperature sa 16 °C na

27 °C, onda je pad manji i kreće se između 21 % i 24 %. Ponovo je uticaj temperature manji pri nižoj vlažnosti vazduha (Ronca-Battista and Gray, 1988).

Na osnovu izloženih literaturnih podataka, srednja vrednost promene rezultata merenja korišćenjem ugljenog kanistera, ako se temperatura poveća sa 15 °C na 27 °C, iznosi oko 25 %. Džordžovo istraživanje nije uzeto u obzir zbog konzervativnog pristupa. Ovaj temperaturni interval je adekvatan za najveći broj zatvorenih prostorija u kojima se izlažu ugljeni kanisteri. Prema tome, ukoliko je poznato da se temperatura na mestu izlaganja kanistera kreće u tom intervalu, ali nije poznato kolika je tačno, kalibracioni koeficijent određen za temperaturu od 21 °C ima proširenu mernu nesigurnost od 12,5 % kao posledica ovog uticaja, sa faktorom pokrivanja 1,73 (pretpostavljena je pravougaona raspodela).

S druge strane, ako se temperatura kreće u užem intervalu, između 19 °C i 23 °C, što je čest slučaj u radnim i stambenim prostorijama, merna nesigurnost će biti manja. Na osnovu izloženih podataka, moguće je proceniti da se proširena merna nesigurnost kreće oko 4 % ($k = 1,73$), jer je temperaturni interval tri puta manji nego u prethodnom slučaju. Ove dve procene će biti korišćene u nastavku glave.

Bitno je napomenuti i da je većina autora primetila da je uticaj temperature manji za manju vlažnost vazduha.

12.5 Promena koncentracije radona

Više autora je ispitivalo uticaj promene koncentracije radona na kalibracioni faktor, odnosno na izmerene vrednosti po metodi EPA 520. Njihovi nalazi se značajno razlikuju među sobom, a ovde će biti pobrojani.

Džordž je izveo dva tipa eksperimenta. Eksperiment u radonskoj komori je podrazumevao izlaganje jednoj koncentraciji radona od 9 sati, pa potom drugoj 63 sata. Odnos koncentracija je bio 34:1. Odnos konvencionalne tačne vrednosti i izmerene vrednosti je bio 2,5 kada je prvo uspostavljena viša koncentracija radona i 0,6 u suprotnom slučaju. Međutim, ovakvi uslovi nisu realistični za izlaganja u stambenom ili radnom prostoru (George, 1984).

Drugi tip eksperimenata je izvođen u uslovima kontinualne i periodične promene koncentracije radona (period 1 dan), što je tipično za izlaganja u zatvorenom prostoru.

Dva eksperimenta su izvedena u radonskoj komori, sa odnosom maksimalne i minimalne koncentracije radona 5:1, a odstupanje izmerenih od konvencionalno tačnih vrednosti je bilo manje od 1 %. Još jedan eksperiment je sproveden u stambenom objektu, a koncentracija radona je varirala dvostruko. Ovaj put je razlika bila 2 % (George, 1984).

Arafa i saradnici su menjali koncentraciju radona u intervalu 3,5:1 pri različitim vlažnostima vazduha. Razlika između aktivnog monitora i otvorenog ugljenog kanistera na temperaturi od 20 °C je bila 1,2 % za nisku vlažnost vazduha, 5,5 % za srednju i 13 % za višu vlažnost vazduha. Ispitivanja su obavljena i na drugim temperaturama, ali tada nije moguće odvojiti uticaj temperature i promene koncentracije (kanisteri su kalibrisani na temperaturama između 20 °C i 25 °C). Kada su u pitanju merenja u stambenim objektima na visokoj vlažnosti vazduha, razlika je bila i do 20 %. U svim slučajevima je ugljeni kanister potcenjivao koncentraciju radona, što ukazuje i na pristustvo sistematskog efekta koji nije korigovan (Arafa et al, 2005).

Ronka-Batista i Grej su zabeležili veoma velike razlike između izmerene i konvencionalne tačne vrednosti, i to kako za desetostruku promenu koncentracije radona, tako i za dvostruku. Međutim, činjenica da je u pojedinim slučajevima izmerena koncentracija radona bila manja i od minimalne koncentracije sugerise da je postojao problem sa kalibracionim faktorom kanistera ili da je postojalo još uticaja koji nisu dokumentovani. Zbog toga će njihovi nalazi biti razmotreni samo kvalitativno. Prema ovom istraživanju, greška koja nastaje kao posledica promene koncentracije radona je značajno manja ako se izlaganje prekine pri maksimalnoj koncentraciji. Takođe se smanjuje greška ako se smanji vreme izlaganja kanistera (Ronca-Battista and Gray, 1988).

Konačno, kao što je već pomenuto, Žukovski i saradnici navode mernu nesigurnost od 12 % do 15 % sa $p = 0,95$, bez objašnjenja kako je ova merna nesigurnost određena (Zhukovski et al, 2010).

U slučaju da nije poznato u koje doba dana je maksimalna koncentracija radona na mestu izlaganja ili da kanister nije zatvoren pri maksimalnoj koncentraciji, merna nesigurnost kao posledica promene koncentracije radona može biti procenjena nezavisno za slučaj niske i srednje vlažnosti vazduha (promena mase kanistera ispod 4 g) i za slučaj visoke vlažnosti vazduha (preko 4 g). Tako je u prvom slučaju merna

nesigurnost procenjena na 5 % prema nalazima Džordža i Arafe, a u drugom na 15 % prema nalazima Arafe i Žukovskog ($k = 1,73$). Ako bi izlaganje bilo prekinuto u periodu dana kada je koncentracija radona najmanja, uticaj promene bi bio manji, a radovi Džorža i Ronka-Batiste i Greja govore da bi greška u tom slučaju mogla da bude 2 do 4 puta manja.

12.6 Uticaj kretanja vazduha

Uticaj kretanja vazduha na kalibracioni faktor ugljenih kanistera je malo istraživano. Najdetaljniji podaci postoje u EPA metodi, u kojoj je kalibracija rađena u statičnoj atmosferi (Gray and Windham, 1987) i dodatku EPA metode, kada je vazduh strujao brzinom između 7,5 cm/s i 10 cm/s, što je tipično za veliki broj stambenih i poslovnih objekata (EPA, 1989). Dobijeni kalibracioni faktori su poređeni u odeljku 7.6, a kalibracioni faktor u aktivnoj atmosferi je veći za 15 % za vreme izlaganja od 48 h, za sve tri vlažnosti vazduha. Kada su u pitanju duža izlaganja (do 6 dana), razlika se smanjuje za nisku vlažnost vazduha, povećava do 25 % za srednju, a za visoku vlažnost vazduha se povećava do čak 40 %.

Arafa i saradnici su zabeležili povećanje kalibracionog faktora u aktivnoj atmosferi (strujanje vazduha brzinom između 7,5 cm/s i 10 cm/s) od 1 % do 12 % za nisku i srednju vlažnost vazduha i smanjenje od 1 % do 15 % za visoku vlažnost vazduha (Arafa et al, 2005).

Postavlja se pitanje kolika je mogućnost da kanisteri budu izloženi u okruženju u kome je kretanje vazduha znatno brže od ispitivanih 0 do 10 cm/s. Prema Bredšou, brzina kretanja vazduha od 0 do 5 cm/s se subjektivno doživljava kao neprijatna stagnacija, od 5 cm/s do 25 cm/s kao prijatna, od 25 cm/s do 50 cm/s može biti prijatna u određenim uslovima, a veća brzina je uglavnom neprijatna (Bradshaw, 2006). Uzevši u obzir i činjenicu da je u uputstvu za postavljanje kanistera navedeno da treba smanjiti otvaranje vrata i prozora, a kanister treba postavljati daleko od klima uređaja, ventilatora itd., može se smatrati da su male šanse da kanisteri budu izloženi bržim strujanjima vazduha od 25 cm/s.

Prema svemu navedenom, procenjena merna nesigurnost kalibracionog faktora koja nastaje kao posledica kretanja vazduha iznosi 15 % ($k = 1,73$) za sva izlaganja na

niskoj vlažnosti vazduha i izlaganja do 2 dana pri srednjoj i visokoj vlažnosti vazduha. Maksimalna vrednost merne nesigurnosti od 40 % ($k = 1,73$) je za izlaganje od 6 dana pri visokoj vlažnosti vazduha. Ostale vrednosti je moguće odrediti iz tabele 7.10.

12.7 Vlažnost između krivih i drugi načini konstrukcije A_f krivih

12.7.1 Merna nesigurnost zbog razlike između A_f krivih

Ako je ugljeni kanister izložen 48 sati, kalibracioni faktor se određuje samo na osnovu promene mase kanistera, a nije bitno koja A_f kriva je odabrana. Kako se vreme izlaganja udaljava od 48 sati, tako razlika između krivih postaje sve veća. S obzirom na to da vlažnost vazduha u realnim uslovima uzima bilo koju vrednost između 0 i 100 %, a A_f krive su izrađene za samo tri vrednosti, stvarna vrednost faktora podešavanja se može nalaziti bilo gde između dve A_f krive, a prostor između krivih se značajno povećava sa vremenom izlaganja.

U ovom odeljku će biti razmotrene A_f krive iz EPA dodatka jer je dodatak više korišćen u ovoj tezi za proračun koncentracije radona, dok su razlike kod EPA metode još izraženije. Posmatranjem normiranih krivih faktora podešavanja sa slike 7.6, jasno je da je razlika krivih za 20 % i 50 % veoma mala (ne prelazi 6 %), dok je razlika krivih za 50 % i 80 % veoma velika za duga vremena izlaganja (i preko 60 %). Međutim, procena merne nesigurnosti zbog mogućeg pogrešnog odabira krive, kao i mogućnosti da se tačna vrednost vlažnosti vazduha nađe u prostoru između krivih, nije jednostavna, jer nije jasno na koji način bi se vršila interpolacija između krivih za poznatu promenu mase kanistera, ili čak za poznatu vlažnost vazduha, već je samo jasno da zavisnost faktora podešavanja od ovih veličina nije linearna. Zbog toga će merna nesigurnost biti procenjena tako što će biti pretpostavljeno da važi pravougaona raspodela verovatnoće, a da je polovina intervala u kome se nalazi tačna vrednost jednaka polovini rastojanja između odabrane krive i susedne krive. Ako je odabrana kriva za 50 %, onda se za promene mase kanistera blizu 1 g posmatra razlika u odnosu na krivu za 20 %, a u slučaju da je promena mase blizu 4 g – u odnosu na krivu za 80 %. Za potrebe ove diskusije, granica će biti postavljena na vrednosti promene mase od 2,5 g, što je polovina intervala između 1 g i 4 g.

U skladu sa navedenim razmatranjem, najveća merna nesigurnost zbog razlike između krivih je za izlaganja od 6 dana i iznosi 30 % ($k = 1,73$) za promene mase preko 2,5 g, odnosno 3 % za promene mase ispod 2,5 g. Za vreme izlaganja od 2 dana, ova merna nesigurnost nestaje.

12.7.2 Drugi načini konstrukcije A_f krivih

Kao što je primećeno u referenci (Jenkins, 2002), faktori podešavanja su odabrani tako da je $A_{f,48}$ jednako $C_{f,48}$. Posmatrajući normirane krive sa slika 7.5 i 7.6 i originalne krive sa slika 7.2 i 7.4, može se primetiti da su normirane krive mnogo lakše za interpretaciju i međusobno poređenje. Pored toga, korišćenje normiranih krivih pojednostavljuje jednačinu 4.2, čineći faktor $A_{f,48}$ nepotrebnim. Slično razmatranje je naveo i Dženkins u svom radu (Jenkins, 2002). Ovakav način konstrukcije A_f krivih pojednostavljuje metodu, ali ne utiče na mernu nesigurnost i primenljivost metode.

Značajno smanjenje merne nesigurnosti bi se postiglo ako bi bilo konstruisano više C_f krivih za različita vremena izlaganja, a kanisteri kod korisnika bili izlagani samo za ta vremena. U glavi 4 je pomenuto da je EPA izlagala 30 kanistera istovremeno, a da je 5 kanistera zatvarano svaki dan. Tako se može pretpostaviti da je arbitrarno određeno da se C_f kriva konstruiše baš za 48 sati, a da faktori podešavanja “podešavaju” kalibracioni faktor prema $C_{f,48}$. Ako bi se za referentno vreme uzelo neko drugo vreme, recimo 72 sata, onda bi se normirane A_f krive sekle u jedinici baš za to vreme. Na taj način bi se moglo konstruisati 6 skupova kalibracionih krivih, za vremena izlaganja od 1 do 6 dana, a za svako merenje bi se koristile krive koje najbolje odgovaraju vremenu izlaganja kanistera.

Ono što je potrebno napomenuti je da postoje i fizička ograničenja vremena izlaganja. Za duža izlaganja pri visokoj vlažnosti vazduha dolazi do zasićenja uglja vodenom parom i sprečavanja adsorpcije radona (Scarpita and Harley, 1988). Za veoma duga izlaganja pri bilo kojoj vlažnosti, izmerena koncentracija bi odražavala samo koncentraciju pri kraju izlaganja kanistera, zbog radioaktivnog raspada radona i njegovih potomaka, ali i desorpcije radona. S druge strane, jako kratka izlaganja bi uzrokovala smanjenu efikasnost merenja radona i višu granicu detekcije, a treba uzeti u obzir i da postoje dnevne varijacije koncentracije radona.

12.8 Kontrola stabilnosti gama-spektrometra i dugovremenska stabilnost efikasnosti detektora

Određivanje efikasnosti gama-spektrometra je opisano u glavi 4, a određivanje merne nesigurnosti u glavi 8. Međutim, u tom razmatranju nije uzeto u obzir da zbog slučajnih uticaja van kontrole ispitivača dolazi do malih promena efikasnosti detektora između dva određivanja efikasnosti. Među takvim uticajima su promene fona, promene napona u mreži, ambijentalni uslovi itd.

Ovi efekti se u INN Vinča proveravaju kontrolom kvaliteta u vidu provere dugovremenske stabilnosti gama-spektrometra. U cilju provere, kada se obavlja ispitivanje koncentracije radona, jednom nedeljno se određuje efikasnost merenja radijumskog izvora i zatim se izrađuje kontrolna karta. Pri tome nije neophodno poznavati tačnu aktivnost izvora, već je neophodno samo da se ona ne menja sa vremenom i da ne dolazi do curenja radona u okolinu. Zbog toga je izvor zapečaćen. Takođe nije neophodno da izvor bude u istoj geometriji i matriksu kao ugljeni kanister, jer se samo prati promena efikasnosti detektora (Pantelić et al, 2015b).

U INN Vinča se nulta kontrola stabilnosti radi istog dana kao i određivanje efikasnosti detektora. Na osnovu ostalih kontrola stabilnosti u tom kvartalu se određuju srednja vrednost i granice od dve i tri standardne devijacije u kojima moraju da budu odstupanja svih kontrola stabilnosti do sledećeg određivanja efikasnosti (jedna vrednost od 20 može da bude između dve i tri standardne devijacije) (Pantelić et al, 2015b).

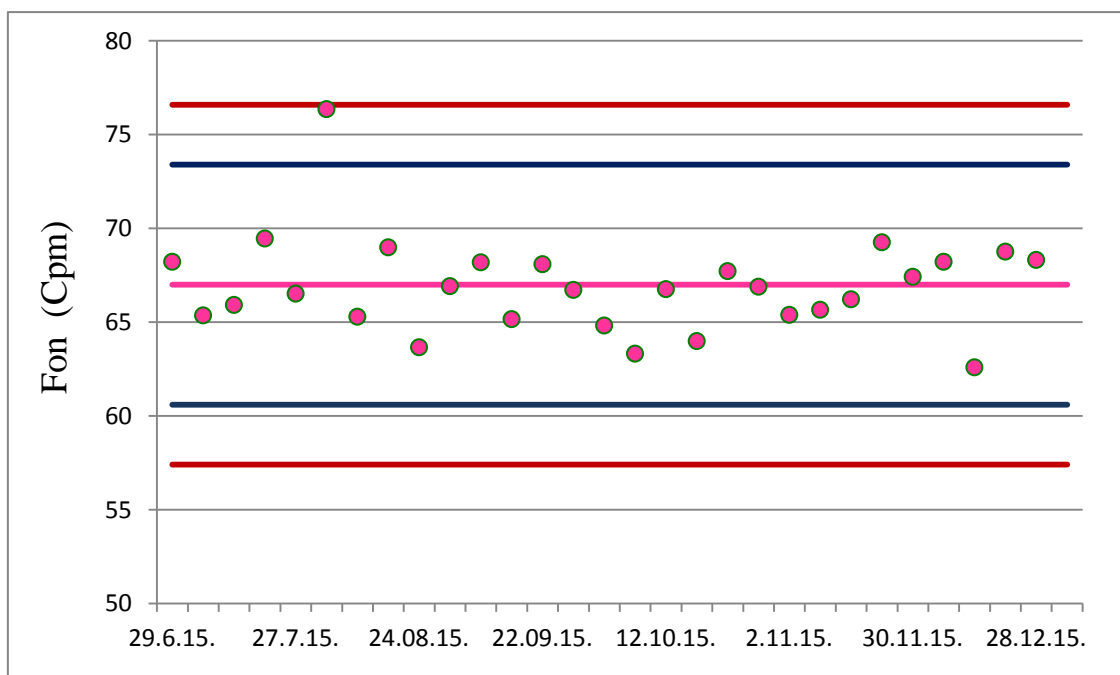
ROI je u kontroli stabilnosti određen isto kao i u svim drugim merenjima. Od odbroja u spektru radijumskog izvora se oduzima odbroj iz spektra fona. Zbog toga varijacije u vrednosti fona takođe ulaze u varijacije efikasnosti detektora (Pantelić et al, 2015b).

Na slici 12.1 su prikazane promene fona u drugoj polovini 2015. godine na NaI spektrometru. Na slici su horizontalnim linijama obeležene srednja vrednost i odstupanja od dve i tri standardne devijacije, koje su određene na isti način kao za efikasnost detektora. Sa slike se može videti da je samo jedno odstupanje veće od 2σ .

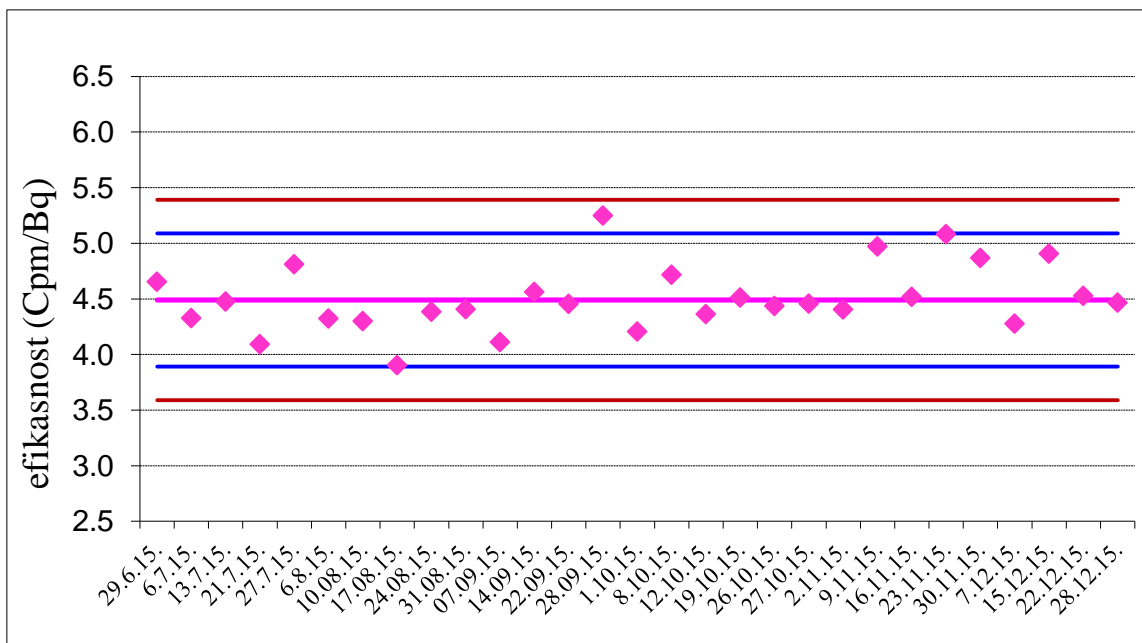
Na slici 12.2 je prikazana kontrola stabilnosti u drugoj polovini 2015. godine za NaI spektrometar. Ponovo, samo jedno odstupanje je veće od 2σ . Ovi rezultati su iskorišćeni za procenu merne nesigurnosti usled promene efikasnosti detektora. Procena nije napravljena na osnovu standardne greške, već standardne devijacije, jer je potrebno

proceniti varijacije efikasnosti detektora. Ovako određena standardna devijacija iznosi 6,2 %, a slične vrednosti su dobijene i analizom kontrole stabilnosti u drugim polugodišima.

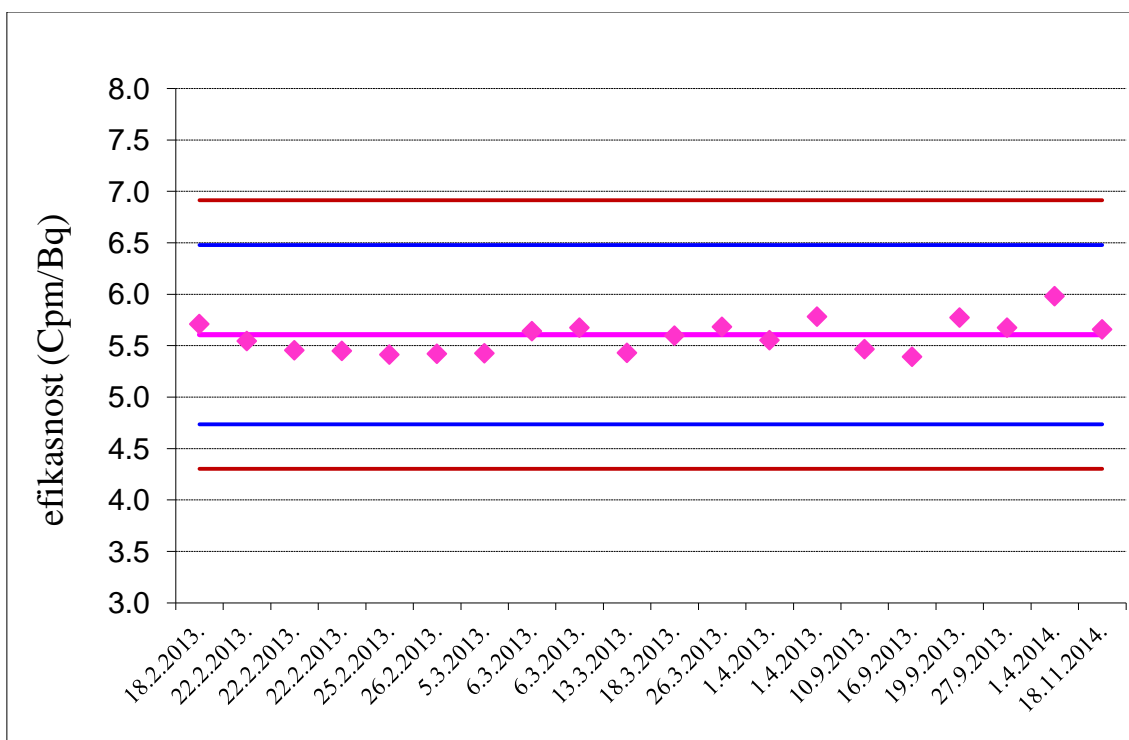
Kontrola stabilnosti je rađena i za sve HPGe spektrometre, a na slici 12.3 su prikazani rezultati kontrole za HPGe spektrometar 3.



Slika 12.1 Vrednosti fona na NaI spektrometru u drugoj polovini 2015. godine. Horizontalnim linijama su prikazane srednja vrednost i odstupanja od dve i tri standardne devijacije. Tačkama su prikazana pojedinačna merenja.



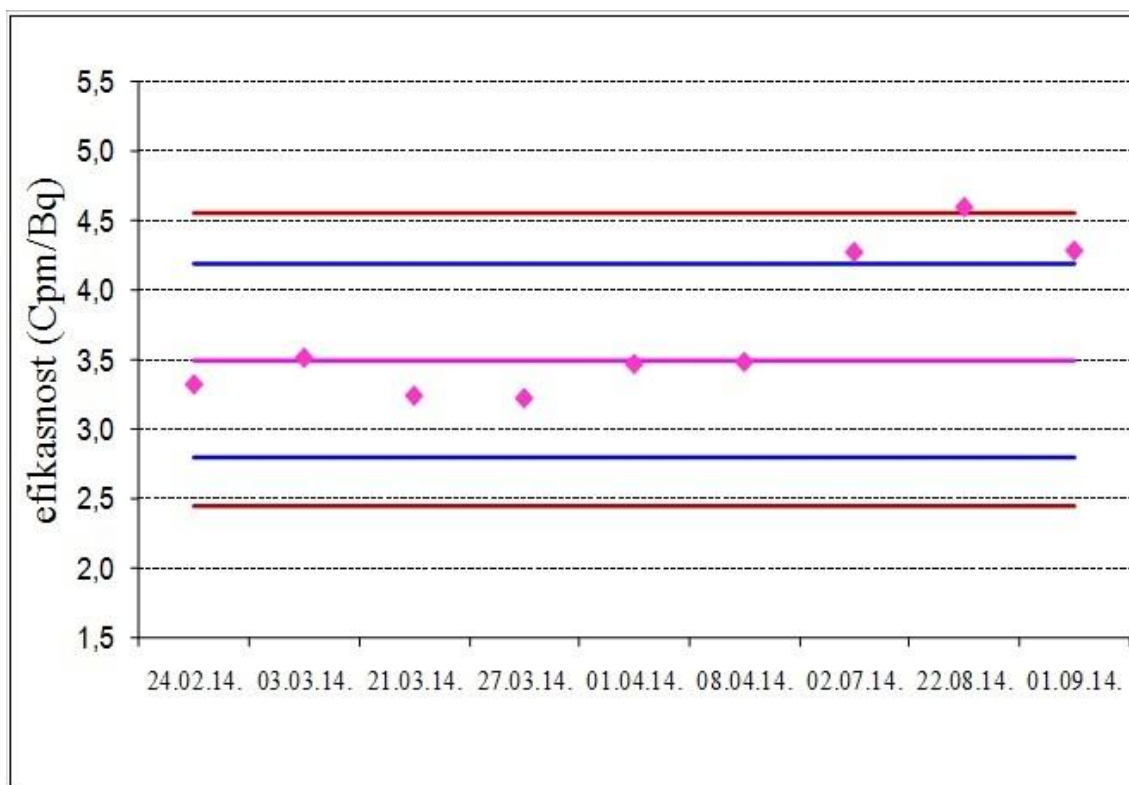
Slika 12.2 Kontrola stabilnosti za NaI spektrometar u drugoj polovini 2015. godine. Horizontalnim linijama su prikazane srednja vrednost i odstupanja od dve i tri standardne devijacije. Tačkama su prikazana pojedinačna merenja.



Slika 12.3 Kontrola stabilnosti za HPGe spektrometar u 2013. i 2014. godini. Horizontalnim linijama su prikazane srednja vrednost i odstupanja od dve i tri standardne devijacije. Tačkama su prikazana pojedinačna merenja.

Analizom kontrole stabilnosti za HPGe spektrometar, izračunata je standardna devijacija od 2,9 %, što je značajno manje u odnosu na NaI spektrometar, iako je posmatran 4 puta duži vremenski period. To govori da je izbor gama-spektrometra još jedan parametar koji utiče na ukupnu mernu nesigurnost.

Rezultati kontrole stabilnosti na slikama 12.2 i 12.3 predstavljaju slučaj u kome su odstupanja u okviru zadatih granica. Međutim, to nije uvek slučaj. Rezultati iz INN Vinča (Pantelić et al, 2015a) za NaI spektrometar u toku 2014. godine koji su prikazani na slici 12.4 prikazuju da je efikasnost u periodu od jula do septembra veća za oko 30 % nego u prvoj polovini godine, a odstupanja su izvan propisanih granica. S obzirom na to da uzrok odstupanja nije utvrđen ni posle analize geometrije i postupka merenja, vrednosti fona i stanja gama-spektrometra i radijurnskog izvora, kao i da su odstupanja nastavljena i u ponovljenim merenjima, ispitivanje koncentracije radona je prekinuto do ponovnog određivanja efikasnosti spektrometra. Tom prilikom je ponovo određena efikasnost i preostala tri spektrometra (Pantelić et al, 2015a).



Slika 12.4 Kontrola stabilnosti za NaI spektrometar koja odstupa od zadatih kriterijuma (preuzeto iz Pantelić et al, 2015a). Horizontalnim linijama su prikazane srednja vrednost i odstupanja od dve i tri standardne devijacije. Tačkama su prikazana pojedinačna merenja.

12.9 Drugi slučajni efekti pri izlaganju i merenju kanistera

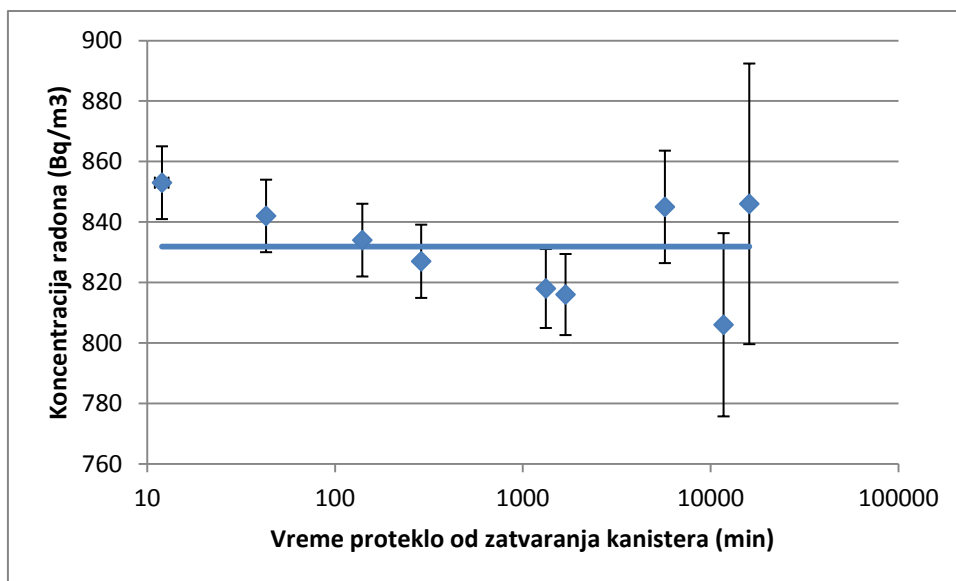
U ovom odeljku su prikazani zaključci izvedeni iz izlaganja deset kanistera na istoj lokaciji u isto vreme i na osnovu 9 merenja jednog istog kanistera tokom više dana. U oba slučaja, ako nema drugih slučajnih uticaja (t.j. ako su zanemarljivo mali), relativna standardna devijacija rezultata će biti u potpunosti objašnjena Poasonovom mernom nesigurnošću. S druge strane, sav “višak” standardne devijacije mora biti objašnjen na drugi način. Očekuje se da sistematski efekti utiču na isti način na sva merenja, pa oni neće biti razmatrani.

Ponavljanjem merenja jednog istog kanistera, postoji mogućnost da mernu nesigurnost poveća ponovno pozicioniranje kanistera i eventualno curenje radona iz kanistera. Kada su u pitanju različiti kanisteri, pored navedenih uticaja dolaze do izražaja i male razlike između kanistera i nehomogenost uslova i koncentracija radona i vodene pare u ispitivanoj prostoriji. Od ovih uticaja nije moguće odvojiti dugovremensku stabilnost spektrometra diskutovanu u glavi 12.8, ali je smatrano da se taj uticaj na ovom mestu može zanemariti jer su merenja izvršena u kratkom vremenskom roku.

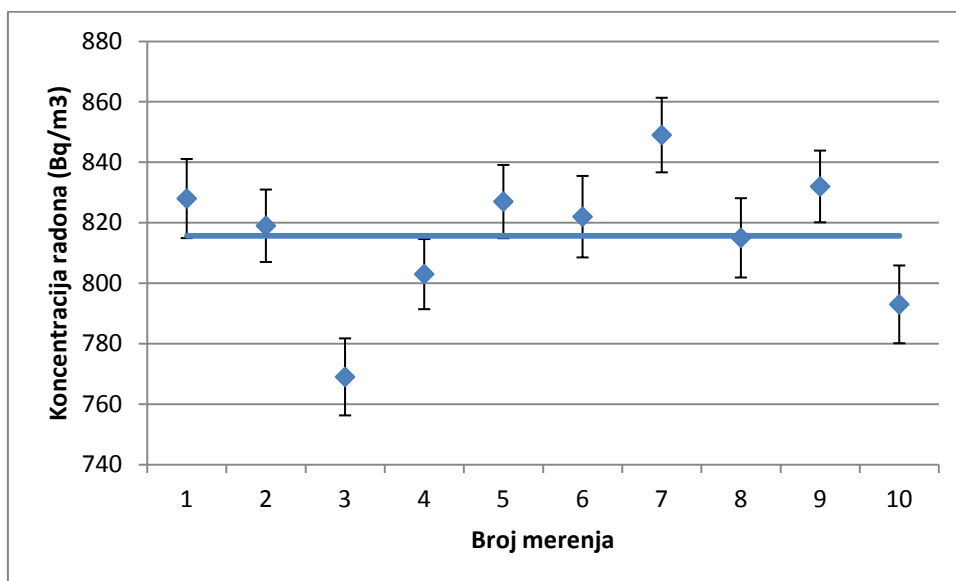
Na slici 12.5 je prikazano 9 rezultata dobijeno ponovljenim merenjem istog kanistera tokom 12 dana (blizu 4 vremena poluraspada radona) sa relativnim greškama koje su određene samo na osnovu statistike odbroja u spektru kanistera i fona. Standardna devijacija rezultata je 1,9 % što skoro u potpunosti može biti objašnjeno nesigurnošću odbroja (od 1,4 % za prvo merenje, do 5,5 % za poslednje). Doprinos drugih slučajnih efekata je izračunat primenom pravila o propagaciji merne nesigurnosti unazad, na osnovu prvih šest merenja, tako što je razmatran najgori slučaj. Ovaj doprinos ne prelazi 1 % ($k = 1$).

Na slici 12.6 su prikazani rezultati dobijeni pomoću 10 različitih kanistera sa relativnim greškama koje su određene na isti način kao na prethodnoj slici. Na prvi pogled se vidi da je standardna devijacija rezultata veća nego što je predviđeno na osnovu Poasonove raspodele. I zaista, njena vrednost je 2,8 %, dok je merna nesigurnost odbroja između 1,4 % i 1,8 %. Ponovo je razmatran najgori slučaj i uzeta u obzir i merna nesigurnost od 1 % vezana za pozicioniranje kanistera i curenje radona. Tako je izračunato da je doprinos ponovljivosti određivanja koncentracije radona usled korišćenja različitih kanistera i zbog nehomogenosti okoline 2,2 % ($k = 1$).

Konačno, ukupan doprinos drugih slučajnih efekata je 2,4 % ($k = 1$).



Slika 12.5 Ponovljivost merenja koncentracije radona: srednja vrednost i 9 rezultata merenja pomoću istog kanistera



Slika 12.6 Ponovljivost merenja koncentracije radona: srednja vrednost i pojedinačni rezultati merenja za 10 kanistera

12.10 Interferencije torona i njegovih potomaka, kao i radonovih potomaka

Već je pomenuto da se EPA metoda koristi za određivanje koncentracije radona u vazduhu, a ne i koncentracije njegovih potomaka ili EEC. Da bi to stvarno bilo tako, potrebno je eliminisati doprinos radonovih potomaka iz atmosfere, kao i torona i njegovih potomaka.

Način eliminacije doprinosa radonovih potomaka iz atmosfere je više puta implicitno pomenut – čekanjem tri sata da se uspostavi radioaktivna ravnoteža između radona i njegovih potomaka, doprinos radonovih potomaka iz atmosfere praktično pada na nulu. Odnosno, cela preostala aktivnost ^{214}Pb i ^{214}Bi potiče od adsorbovanog radona.

Kada je u pitanju toron, pregledanjem tabele 3.1, primećuje se da postoje 3 linije toronovih potomaka koje mogu da izazovu interferencije ako je određen jedan kontinualan ROI kao u glavi 8. Ipak, doprinos torona i njegovih potomaka je uglavnom mali jer je koncentracija torona u vazduhu u srednjem slučaju višestruko manja od koncentracije radona, a EEC manji za još jedan red veličine, kao što je razmatrano u glavi 3. To je potvrđeno i analizom većeg broja spektara izlaganih kanistera u INN Vinča.

U atipičnim slučajevima kakvi nisu sretani u praksi u INN Vinča, sa neuobičajeno visokim odnosom EEC ili koncentracija torona i radona, u gama-spektaru ugljenog kanistera bi se primetili maksimumi na energijama koje odgovaraju linijama ^{208}Tl i ^{212}Pb , ili ramena u slučaju korišćenja NaI spektrometra. Interferencije u spektrima uzoraka koji sadrže radionuklide iz prirodnih radioaktivnih nizova su razmatrane u radu objavljenom 2012. godine, korišćenjem programa INCA (Živanović et al, 2012), a sličnu analizu je moguće napraviti i za ovaj slučaj. Tako redefinisanje ROI može u potpunosti da eliminiše interferencije. Ako se koristi HPGe spektrometar i odrede tri pojedinačna ROI, moguće je potpuno razdvojiti sve gama-linije, jer je spektar radona i torona sa potomcima u ispitivanoj spektralnoj oblasti veoma jednostavan. Određivanje tri ROI ne rešava problem u slučaju korišćenja NaI spektrometra, zbog značajno slabije rezolucije. U tom slučaju je jedino moguće oduzeti odbroje koji potiču od toronovih potomaka, pri čemu se može uneti značajna merna nesigurnost.

Procena merne nesigurnosti koja potiče od interferencija u spektru je otežana činjenicom da praktično ne postoje literaturni podaci o vezi koncentracije torona i

njegovih potomaka u vazduhu i vremena izlaganja kanistera sa jedne strane, i koncentracije ^{212}Pb i ^{208}Tl u ugljenom kanisteru. Za najveći broj merenja, kada se u spektru ne mogu primetiti maksimumi koji potiču od emisija toronovih potomaka, ovaj doprinos mernoj nesigurnosti će biti zanemaren. U slučaju kada maksimumi postoje, poželjno je koristiti HPGe spektrometar i izvršiti korekciju. I u tom slučaju će merna nesigurnost biti zanemarena. Ako korekciju nije moguće izvršiti ili ako su maksimumi prisutni, a nisu uzeti u obzir od strane ispitivača, u pitanju je pogrešna primena EPA 520 metode i taj slučaj neće biti razmatran.

12.11 Kombinovana merna nesigurnost u najboljem i najgorem slučaju

Na osnovu prethodnih razmatranja, moguće je identifikovati uslove u kojima je merna nesigurnost određivanja koncentracije radona najveća i najmanja. Na ovom mestu će biti izrađeni budžeti merne nesigurnosti za najbolji i najgori scenario, a biće delimično korišćene već izračunate vrednosti mernih nesigurnosti za primer koji je predstavljen u glavi 8. I za najbolji i za najgori slučaj, pretpostavljeno je da se vrednost koncentracije radona kreće oko 300 Bq/m^3 i da su korišćene polinomijalne kalibracione funkcije iz dodatka EPA metode.

12.11.1 Najbolji slučaj

U idealnom slučaju, vlažnost vazduha na mestu izlaganja kanistera se kreće između 20 % i 50 %, a vreme izlaganja je 48 sati. Tako se merna nesigurnost tipa A kalibracionog faktora svodi na mernu nesigurnost $C_{f,48}$, a pošto je promena mase bliska vrednosti $\overline{\Delta m}$, merna nesigurnost $C_{f,48}$ će biti ispod 1 % ($k = 1$). Poznato je da se na mestu izlaganja temperatura kreće u opsegu između 19 °C i 23 °C.

Merenje se obavlja na HPGe spektrometru 180 minuta po zatvaranju kanistera. Odbroj u spektru fona je oko 900, a neto odbroj oko 2500. Efikasnost spektrometra je određena istog dana standardom čija je aktivnost poznata sa mernom nesigurnošću od 1 %, $k = 1$ (takvi i bolji standardi su komercijalno dostupni, videti na primer unos za Češku Republiku u referenci BIPM, 2016). Kalibracione krive su određene za kanistere reciklirane na isti način koji se rutinski koriste u laboratoriji.

Budžet merne nesigurnosti za idealan slučaj, uzevši u obzir sve identifikovane doprinose mernoj nesigurnosti, prikazan je u tabeli 12.3 a kombinovana merna nesigurnost iznosi 10,5 % ($k = 1$).

Tabela 12.3 Merna nesigurnost u najboljem slučaju

Redni broj	Veličina	Izvor merne nesigurnosti	Tip merne nesigurnosti, raspodela	Relativna standardna m.n,
1	Efikasnost gama-spektrometra	Statistika brojanja	A, Poasonova	0,35 %
2	Efikasnost gama-spektrometra	Aktivnost standarda	B, normalna	1,0 %
3	Efikasnost gama-spektrometra	Dugovremenska stabilnost gama-spektrometra	A, normalna	0
4	Neto odbroj u spektru kanistera	Statistika brojanja	A, Poasonova	2,7 %
5	Kalibracioni faktor	Tip A, ponovljena merenja	A, normalna	1,0 %
6	Kalibracioni faktor	Tip B koji potiče od same kalibracije	B, pravougaona	2,0 %
7	Kalibracioni faktor	Uticaj temperature	B, pravougaona	2,3 %
8	Kalibracioni faktor	Određivanje promene mase	B, pravougaona	1,0 %
9	Kalibracioni faktor	Promena koncentracije radona	B, pravougaona	2,9 %
10	Kalibracioni faktor	Kretanje vazduha	B, pravougaona	8,7 %
11	Kalibracioni faktor	Razlika između A_f krivih	B, pravougaona	0
12	Kalibracioni faktor	Drugi slučajni efekti	A, normalna	2,4 %
	Koncentracija radona	Kombinovana merna nesigurnost	B, normalna	10,5 %

12.11.2 Najgori slučaj

U najgorem slučaju, kanister je izložen 6 dana, a promena mase kanistera je oko 5 g, pa se vlažnost vazduha nalazi u oblasti između 50 % i 80 %. Faktor podešavanja se

očitava sa krive za 80 %, a kombinovana merna nesigurnost tipa A kalibracionog faktora je 4 % ($k = 1$). Ambijentalna temperatura nije poznata.

Merenje se obavlja na NaI spektrometru nedelju dana po zatvaranju kanistera, pa je odbroj u spektru fona oko 2000, a neto odbroj oko 1000. Efikasnost spektrometra nije određivana tog dana, a korišćen je standard sa mernom nesigurnošću od 5 %, $k = 1$. Za merenja se koriste reciklirani kanisteri bez korekcije, a kalibracija je urađena za nove kanistere.

Tabela 12.4 Merna nesigurnost u najgorem slučaju

Redni broj	Uticajna veličina	Izvor merne nesigurnosti	Tip merne nesigurnosti, raspodela	Relativna standardna m.n,
1	Efikasnost gama-spektrometra	Statistika brojanja	A, Poasonova	0,35 %
2	Efikasnost gama-spektrometra	Aktivnost standarda	B, normalna	5,0 %
3	Efikasnost gama-spektrometra	Dugovremenska stabilnost gama-spektrometra	A, normalna	6,2 %
4	Neto odbroj u spektru kanistera	Statistika brojanja	A, Poasonova	7,1 %
5	Kalibracioni faktor	Tip A, ponovljena merenja	A, normalna	4,0 %
6	Kalibracioni faktor	Tip B koji potiče od same kalibracije	B, pravougaona	2,0 %
7	Kalibracioni faktor	Uticaj temperature	B, pravougaona	7,2 %
8	Kalibracioni faktor	Određivanje promene mase	B, pravougaona	15 %
9	Kalibracioni faktor	Promena koncentracije radona	B, pravougaona	8,7 %
10	Kalibracioni faktor	Kretanje vazduha	B, pravougaona	23 %
11	Kalibracioni faktor	Razlika između A_f krivih	B, pravougaona	17 %
12	Kalibracioni faktor	Drugi slučajni efekti	A, normalna	2,4 %
	Koncentracija radona	Kombinovana merna nesigurnost	B, normalna	36 %

Budžet merne nesigurnosti za najgori slučaj je prikazan u tabeli 12.4, a kombinovana merna nesigurnost iznosi 36 % ($k = 1$). Ovako velika vrednost merne nesigurnosti govori da je od kritičnog značaja da se ponovo razmotri u kakvim uslovima je moguće primenjivati EPA metodu i da se definišu novi zahtevi za postavljanje kanistera.

12.12 Optimizacija uslova merenja

Merna nesigurnost metode EPA 520 je detaljno razmatrana i zaključeno je da iako se metoda dosledno primeni, merna nesigurnost može da bude veća od 70 % ($k = 2$) u najnepovoljnijim okolnostima. Analiza doprinosa mernoj nesigurnosti je omogućila da se identifikuju mogući dodatni zahtevi, koji bi obezbedili da merna nesigurnost bude značajno manja. Ti zahtevi se mogu formulisati na sledeći način (što nikako ne znači da je to i jedini način):

- veliku pažnju je potrebno posvetiti početnom sadržaju vlage tokom kalibracije i obezbediti da sličan sadržaj vlage bude i u kanisterima koji se kasnije izlažu; najjednostavnije je koristiti za obe namene kanistere sušene na isti način i ograničiti rok upotrebe kanistera posle sušenja
- poželjno je napustiti sadašnji način korišćenja A_f krivih tako što bi se od korisnika zahtevalo da kanistere izlažu tačno 48 sati (moguće je koristiti i drugo vreme izlaganja, ako postoje adekvatne C_f krive); neminovna mala odstupanja od traženog vremena izlaganja bi se korigovala preko krivih izrađenih za mali opseg vremena izlaganja ili bi bila uzeta u obzir preko merne nesigurnosti
- izlaganje od 48 sati je preporučljivo i zbog toga što najveći broj doprinosa mernoj nesigurnosti raste sa vremenom izlaganja kanistera i zbog toga što je to vreme celobrojni umnožak perioda dnevnih oscilacija koncentracije radona
- zatvaranjem kanistera u jutarnjim časovima, u opštem slučaju se smanjuje merna nesigurnost nastala kao posledica promene koncentracije radona i

smanjuje se mogućnost da koncentracija bude potcenjena, što ima ozbiljnije moguće posledice od precenjene koncentracije

- iako se temperatura na mestu izlaganja ne meri, od korisnika je neophodno zahtevati da kanister ne izlaže ekstremnim temperaturama, manjim od 15 °C ili većim od 27 °C; ako se kanister izlaže zimi u prostorijama koje se greju, često se temperatura kreće u mnogo manjem intervalu, pa je shodno tome manja i merna nesigurnost
- ako je ikako moguće, treba izbegavati izlaganje kanistera u prostorijama koje imaju visoku vlažnost vazduha (vešernice, vlažni podrumi itd.) ili tokom dana sa vrlo visokom vlažnošću vazduha; uslovi niže i srednje vlažnosti vazduha omogućavaju značajno manju mernu nesigurnost EPA metode
- posebnu pažnju treba posvetiti izbegavanju grubih grešaka tokom rada u laboratoriji: redovnim vršenjem kontrole stabilnosti spektrometrijskog sistema, učestvovanjem u interkomparacijama, proverom i korigovanjem kalibracionih krivih (ili izradom novih) itd.
- korišćenjem spektrometra veće rezolucije i bolje dugovremenske stabilnosti, moguće je smanjiti mernu nesigurnost; češće određivanje efikasnosti detektora takođe smanjuje mernu nesigurnost, a ukoliko bi se efikasnost određivala nedeljno (ili svake nedelje kada se obavljaju merenja), onda bi mogla da posluži i za kontrolu stabilnosti detektora
- u slučaju sumnje na prisustvo značajne koncentracije adsorbovanih toronovih potomaka u aktivnom uglju, neophodno je koristiti tri ROI i spektrometar veće rezolucije, ili izvršiti odgovarajuće korekcije
- od korisnika treba zahtevati da dostavi kanister u laboratoriju što pre po zatvaranju kanistera, a svakako u periodu kraćem od nedelju dana
- u slučaju da se određuje srednja mesečna ili godišnja koncentracija radona, potrebno je izvršiti nekoliko izlaganja kanistera u različito vreme, zbog srednjeročnih promena koncentracije radona.

13 Zaključak

Merenje niskih koncentracija radona u velikom broju stambenih objekata sa malom mernom nesigurnošću je jedan od najvećih izazova zaštite od zračenja u ovoj deceniji. Postoji nekoliko metoda koje su kandidati za ovakva merenja. Jedna od njih je metoda merenja koncentracije radona pomoću ugljenih filtera – EPA metoda koja se izvodi po dokumentu EPA 520.

EPA metoda ima niz prednosti, među kojima su cena, jednostavnost i brzina izvođenja. S druge strane, više autora je izrazilo sumnje u pogledu tačnosti metode u slučaju kada se uslovi izlaganja značajno razlikuju od uslova kalibracije, ali su takođe ukazali i na značajne greške u primeni metode. U samim merenjima izvedenim u INN Vinča, primećeno je da EPA metoda u najvećem broju slučajeva daje rezultate slične drugim metodama, ali da u pojedinim slučajevima postoje značajne razlike koje ne mogu biti objašnjene mernom nesigurnošću. Sve to je ukazivalo na potrebe za optimizacijom metode.

Za potrebe optimizacije, u prethodnom tekstu je detaljno objašnjena metoda i njeno izvođenje, zatim je izvršen pregled literature i analizirani zaključci autora, a analizirani su i podaci prikupljeni kroz praktični rad u INN Vinča. Analizom je pokazano da prethodno korišćeni budžet merne nesigurnosti nije bio adekvatan, ali i da postoji potreba za redefinisanjem uslova za postavljanje kanistera i primenu metode. Tako je pokazano da veoma veliki uticaj na rezultate merenja mogu imati kretanje vazduha, vlažnost vazduha, početni sadržaj vlage u kanisteru, ambijentalna temperatura i drugi uticaji, kao i da kombinovana merna nesigurnost koju navedeni uticaji mogu da unesu u merenje može prevazići i 70 % ($k = 2$), iako se EPA metoda primeni dosledno. S druge strane, pokazano je da se definisanjem dodatnih uslova za primenu metode ovi uticaji mogu značajno smanjiti, a merna nesigurnost svesti u prihvatljive granice, od oko 20 % ($k = 2$). Da bi se to postiglo, potrebno je redefinisati uslove izlaganja kanistera tako što bi se ograničilo vreme izlaganja (poželjno oko 48 h), izbeglo izlaganje u uslovima ekstremne vlage, a kanisteri izlagali na temperaturama bliskim sobnoj. Početni sadržaj vlage kanistera je takođe neophodno uzeti u obzir, bilo preko korekciji ili tako što bi se izvršila dodatna kalibracija. Dodatne procedure kontrole kvaliteta mogu da pomognu da se merna nesigurnost još smanji.

U glavi 9 je prikazana merna kampanja u trajanju od 14 meseci i pokazano je kako se ugljeni kanisteri mogu koristiti za određivanje sezonskih i mesečnih korekcionih faktora, kao i srednjih sezonskih i godišnjih koncentracija. Takođe su određene efektivne doze za zaposlene u laboratoriji u kojoj su obavljena merenja. Poređenje srednjih koncentracija izmerenih ugljenim filterima sa rezultatima dobijenim trag detektorima su pokazala postojanje dobrih slaganja. Iz kampanje je zaključeno i da pojedinačna merenja koncentracije radona pomoću ugljenih filtera nisu dobar indikator prosečnih sezonskih i godišnjih koncentracija, već da je prosečne koncentracije poželjno određivati na osnovu ponovljenih merenja.

EPA metoda je više puta poređena sa drugim metodama merenja koncentracije radona, uključujući aktivne monitore i trag detektore. Većina rezultata je bila zadovoljavajuća, ali su pojedini rezultati pokazali da jednostavan model merne nesigurnosti prikazan u glavi 8 ne uzima u obzir sve uticajne veličine. Takođe je prikazana primena metode za merenja koncentracije u stambenim, javnim i radnim prostorijama. Veliki broj rezultata je obrađen posebno izrađenim softverom, čiji je uprošćeni algoritam prikazan u glavi 6.

14 Literatura

Abd El-Zaher, M., (2011), Seasonal Variations of Indoor Radon Concentration in Dwellings of Alexandria City, Egypt, *Radiation Protection Dosimetry* 143(1), pp. 56–62

Agricola, G., (1956), *De Re Metallica*, Translated from the First Latin Edition of 1556 by Herbert Clark Hoover and Lou Henry Hoover, Dover Publications, Inc., New York, USA

Akerblom, G., (1999), Radon Legislation and National Guidelines, Swedish Radiation Protection Institute, ISSN 0282-4434

Alharbi, S.H., Akber, R.A, (2014), Radon-222 activity flux measurement using activated charcoal canisters: Revisiting the methodology, *Journal of Environmental Radioactivity*, 129, pp. 94-99

Arafa, W., Alneimi, H., Al-Houtu, L., Abou-Leila, H., (1994), Some Improvements of Charcoal Measurement Techniques Used for Indoor Radon Measurements in Qatar, *Radiation Physics and Chemistry*, 44(1), pp. 237 – 240

Arafa, W., El-Karadawi, E., (1997), Radon Concentration Determination in Some Dwellings of Doha City of Qatar, *Radiation Measurements*, 28(1-6), pp. 595-598

Arafa, W., El Samman, H., Ashry, A., Abd alla, A., (2002), Airborne ²²²Rn Concentration in an Egyptian Village, *Health Physics*, 83, pp. 105-109

Arafa, W., Badran, H., El Samman, H., (2005), Effect of Moving Air and Variable Radon Concentration on the Response of Charcoal Canister, *Radiation Measurements*, 40, pp. 662 – 665

Arvela, H., (1995), Seasonal Variation of Radon Concentration in 3000 Dwellings with Model Comparisons, *Radiation Protection Dosimetry* 59(1), pp. 33-42

Attix, F.W., (2004), Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry, Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, ISBN: 978-0-471-01146-0

Barlow, R.J., (1989), Statistics. A Guide to the Use of Statistical Methods in the Physical Sciences, John Wiley & Sons Ltd., Chichester, England, ISBN: 0 471 92294 3

BEIR VI, (1999), Health Effects of Exposure to Radon: BEIR VI, National Academy Press, Washington, D.C., ISBN: 0-309-05645-4

BIPM, (2004), Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 2 – A = 151 to 242), Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France

BIPM, (2006), Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 3 – A = 3 to 244), Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France

BIPM, (2008a), Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 4 – A = 133 to 252), Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France

BIPM, (2008b), JCGM 100: 2008, GUM 1995 with minor corrections, Evaluation of measurement data – Guide to the expression of measurement uncertainty, Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France

BIPM, (2010), Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 5 – A = 22 to 244), Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France

BIPM, (2011), Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 6 – A = 22 to 242), Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France

BIPM, (2013), Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, (Vol. 7 – A = 14 to 245), Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France

BIPM, (2016), The BIPM key comparison database, pristupljeno sajtu 20.08.2016. godine, <http://kcdb.bipm.org/appendixC/>, Bureau International des Poids et Mesures, Sevres, France

Blue, T.E., Jarzempa, M.S., (1992), A Model for Radon Gas Adsorption on Charcoal for Open-Faced Canisters in an Active Environment, *Health Physics*, 63 (2), pp. 226-232

Bradshaw, V., (2006), The Building Environment, Active and Passive Control Systems, 3rd Edition, John Wiley & Sons Inc., Hoboken, New Jersey, ISBN: 978-0-471-68965-2

Burke, Ó., Murphy, P., (2011), Regional Variation of Seasonal Correction Factors for Indoor Radon Levels, *Radiation Measurements* 46, pp. 1168-1172

Chen, J., Moir, D., Sorimachi, A., Janik, M., Tokonami, S., (2012), Determination of thoron equilibrium factor from simultaneous long-term thoron and its progeny measurements, *Radiation Protection Dosimetry* 149(2), pp. 155–158

Ciraj-Bjelac, O., Lazarević, Đ., Pantelić, G., **Živanović, M.**, (2015), Institut za nuklearne nauke “Vinča”, prvi imenovani institut (DI) u okviru nacionalnog

metrološkog sistema u republici Srbiji, International Convention on Quality Proceedings, 1 – 5. jun 1015, Beograd, Srbija

Cohen, B.L., Cohen, E.S., (1983) Theory and Practice of Radon Monitoring by Adsorption in Charcoal, *Health Physics*, 45(2), pp. 501-508

Cohen, B.L., Nason, R., (1986), A Diffusion Barrier Charcoal Adsorption Collector for Measuring Rn Concentrations in Indoor Air, *Health Physics*, 50(4), pp. 457-463

Cortina, D., Duran, I., Llerena, J.J., (2008), Measurements of Indoor Radon Concentrations in the Santiago de Compostela Area, *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, pp. 1583-1588

Countess, R.J., (1976), Radon flux measurements with a charcoal canister, *Health Physics*, 31(5), pp. 455-456

Crowford-Brown, D.J., Michel, J., (1987), Chapter 3: Measurement, in: Environmental Science Research Volume 35: Environmental Radon, Springer Science+Business Media, New York, ISBN: 978-1-4899-0475-1

Darby, S., Hill, D., Auvinen, A., Barros-Dios, J.M., Baysson, H., Bochicchio, F., Deo, H., Falk, R., Forastiere, F., Hakama, M., Heid, I., Kreienbrock, L., Kreuzer, M., Lagarde, F., Mäkeläinen, I., Muirhead, C., Oberaigner, W., Pershagen, G., Ruano-Ravina, A., Ruosteenoja, E., Schaffrath Rosario, A., Tirmarche, M., Tomášek, L., Whitley, E., Wichmann, H.E., Doll, R., (2005), Radon in Homes and Risk of Lung Cancer: Collaborative Analysis of Individual Data from 13 European Case-Control Studies, *The BMJ* 2005, pp. 330:223

De Felice, P., (2007), Primary standards of radon, *Metrologia*, 44, pp. S82–S86

De Luca, A., Mancini, C., (1991), The Measurement System for ^{222}Rn Monitoring with Charcoal Adsorption Collectors, *Health Physics*, 61(4), pp. 543-546

Denman, A.R., Crockett, R.G.M., Groves-Kirkby, C.J., Phillips, P.S., Gillmore, G.K., Woolridge, A.C., (2007) The value of Seasonal Correction Factors in Assessing the Health Risk from Domestic Radon — A Case Study in Northamptonshire, UK, *Environment International*, 33, pp. 34–44

Denman, A.R., Crockett, R.G.M., Groves-Kirkby, C.J., Phillips, P.S., (2016), Interpreting Short and Medium Exposure Etched-Track Radon Measurements to

Determine Whether an Action Level Could be Exceeded, *Journal of Environmental Radioactivity*, 162-163, pp. 279-284

DurrIDGE, (2015), RAD7 Manual, Revision 7.4.0, DurrIDGE Company Inc., Billerica, MA, USA

El Samman, H., Arafa, W., Abd alla, A., (2002), Temperature and Humidity Consideration for Calculating Airborne ^{222}Rn Using Activated Charcoal Properties, *Health Physics*, 83(1), pp. 97-104

EPA, (1989), Addendum to the EERF Standard Operating Procedures for Radon-222 Measurement Using Charcoal Canisters, United States Environmental Protection Agency

EPA, (1990), NAREL Standard Operating Procedures for ^{222}Rn Measurement Using Diffusion Barrier Charcoal Canisters. EPA 520/5-90-032

European Council, (2014), Council Directive 2013/59/EURATOM of 5 December 2013, *Official Journal of the European Union*, L 13, pp. 1-73

Forkapic, S., Maletić, D., Vasin, J., Bikit, K., Mrdja, D., Bikit, I., Udovičić, V., Banjanac, R., (2016), Correlation Analysis of the Natural Radionuclides in Soil and Indoor Radon in Vojvodina, Province of Serbia, *Journal of Environmental Radioactivity*, doi: 10.1016/j.jenvrad.2016.07.026.

George, A.C., (1984), Passive, Integrated Measurement of Indoor Radon Using Activated Carbon, *Health Physics*, 46(4), pp. 867-872

George, A.C., Weber, T., (1990), An Improved Passive Activated C Collector for Measuring Environmental ^{222}Rn in Indoor Air, *Health Physics*, 58(5), pp. 583-589

George, A.C., (2000), Field Test Experience with Charcoal Canisters for Measuring ^{222}Rn in Air, AARST 2000 International Radon Symposium, Milwaukee, USA

George, A.C., (2008), World History of Radon Research and Measurement from the Early 1900's to Today, *Proceedings*, AIP Conference Proceedings, Rio de Janeiro, Brasil

Gervino, G., Bonetti, R., Cigolini, C., Marino, C., Prati, P., Pruiti, L., (2004), Environmental Radon Monitoring: Comparing Drawbacks and Performances of Charcoal Canisters, Alpha-Track and E-PERM Detectors, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 518, pp. 452–455

Gillmore, G.K., Phillips, P.S., Denman, A.R., (2005), The effects of geology and the impact of seasonal correction factors on indoor radon levels: a case study approach, *Journal of Environmental Radioactivity* 84, pp. 469-479

Gray, D.J., Windham, S.T., (1987), EERF Standard Operating Procedures for Radon-222 Measurement Using Charcoal Canisters, EPA 520/5-87-005

IAEA, (2008), IAEA-TECDOC-1585, Measurement Uncertainty, A Practical Guide for Secondary Standard Dosimetry Laboratories, Vienna, Austria, ISBN: 978-92-0-104408-2

ICRP, (1994), ICRP Publication 65: Protection Against Radon-222 at Home and at Work, Elsevier, Oxford, United Kingdom, ISBN: 0080424759

Iimoto, T., Tokonami, S., Morishita, Y., Kosako, T., (2005), Application of Activated Charcoal Radon Collectors in High Humidity Environments, *Journal of Environmental Radioactivity*, 78, pp. 69-76

ILAC, (2013), ILAC-P14:01/2013: ILAC Policy for Uncertainty in Calibration, ILAC

ISO/IEC, (2008), ISO IEC Guide 98-3: 2008, Uncertainty of measurement – Part 3: Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM:1995), ISO/IEC

ISO/IEC, (2009), ISO IEC Guide 98-1: 2009, Uncertainty of measurement Part 1: Introduction to the expression of uncertainty in measurement, ISO/IEC

ISO/IEC, (2005), General requirements for the competence of testing and calibration laboratories, ISO/IEC 17025:2005, ISO/IEC

Jenkins, P.H., (2002), A Critique of the "EPA Method" for Analyzing and Calibrating Charcoal Canisters for Radon Measurements, Proceedings, 2002 International Radon Symposium Proceedings, American Association of Radon Scientists and Technologists, Inc., USA

Jeter, S.M., (2003), Evaluating the Uncertainty of Polynomial Regression Models Using Excel, *Proceedings of the 2003 American Society for Engineering Education Annual Conference & Exposition*, Nashville, Tennessee, USA

Kitto, M., (2014), Radon Testing in Schools in New York State: a 20-year Summary, *Journal of Environmental Radioactivity*, 137, pp. 213-216

Kolarž, P.M., Filipović, D.M., Marinković, B.M., (2009), Daily Variations of Indoor Air-Ion and Radon Concentrations, *Applied Radiation and Isotopes*, 67, pp. 2062–2067

Kozak, K., Mazu, J., Kozłowska, B., Karpinska, M., Przylibski, T.A., Mamont-Ciesła, K., Grzadziel, D., Stawarz, O., Wysocka, M., Dorda, J., Zebrowski, A., Olszewski, J., Hovhannisyán, H., Dohojda, M., Kapala, J., Chmielewska, I., Klos, B., Jankowski, J., Mnich, S., Kolodziej, R., (2011), Correction Factors for Determination of Annual Average Radon Concentration in Dwellings of Poland Resulting from Seasonal Variability of Indoor Radon, *Applied Radiation and Isotopes*, 69, pp. 1459–1465

Loveland, W., Morrissey, D.J., Seaborg, G.T., (2006), Modern Nuclear Chemistry, John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, New Jersey, USA, ISBN: 978-0-471-11532-8

Mahat, H.M., (2007), Diurnal and Daily Variations of Indoor Radon Concentration in Malaysia, 2nd Asian Physics Symposium, 27-29 November 2007, Bandung, Indonesia

Marshall, J.L., Marshall V.R., (2003), Ernest Rutherford, the “True” Discoverer of Radon, *Bulletin for the History of Chemistry*, 28 (2), pp. 76-83

Mattsson, S., Hoeschen, C., (2013), Radiation Protection in Nuclear Medicine, Springer-Verlag, Heidelberg, Germany, ISBN 978-3-642-31166-6

McLaughlin, J., (2013), Radon: Past, Present and Future, *Romanian Journal of Physics*, 58 (Supplement), pp. S5-S13

Mullerova, M., Kozak, K., Kovács, T., Smetanová, I., Csordás, A., Grzadziel, D., Holý, K., Mazur, J., Moravcsík, A., Neznal, M., Neznal, M., (2016), Indoor Radon Survey in Visegrad Countries, *Applied Radiation and Isotopes*, 110, pp. 124–128

Nagarajan, R., Michaels, L.D., Menon, V.B., Wasan, D.T., Ensor, D.S., (1990), A Mathematical Model for Rn Sampling by Activated C Adsorption, *Health Physics*, 58(5), pp. 575-581

Neman, R., Hadler, N.J.C., Iunes, P.J., Paulo, S.R., Guedes, S., Curvo, E.A.C., (2005), Inter-Comparison of Three Techniques for Radon Activity Measurements, *Radiation Measurements*, 40, pp. 295 – 298

Nikezić, D., Urošević, V., (1998), A Theoretical Study of Radon Measurement with Activated Charcoal, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 406, pp. 486-498

Pantelić, G., **Živanović, M.**, Rajačić, M., Nikolić, J., Todorović, D., (2013), Radon Concentration Intercomparison in Serbia, *Proceedings of the Ninth Symposium of the Croatian Radiation Protection Association*, pp. 193-198, ISBN 978-953-96133-8-7, Krk, Hrvatska, 10-12 april 2013.

Pantelić, G., Eremić Savković, M., **Živanović M.**, Nikolić, J., Rajačić, M., Todorović, D., (2014), Uncertainty Evaluation in Radon Concentration Measurement Using Charcoal Canister, *Applied Radiation and Isotopes*, 87, pp. 452-455

Pantelić, G., **Živanović, M.**, Rajačić, M., Krneta Nikolić, J., Todorović, D., (2015a), QA/QC for Radon Concentration Measurement with Charcoal Canister, *Proceedings of the Tenth Symposium of the Croatian Radiation Protection Association*, pp. 384-389, ISSN 1849-5060, Šibenik, Hrvatska, 15-17. april 2015.

Pantelić, G., **Živanović, M.**, Krneta Nikolić, J., Eremić Savković, M., Rajačić, M., Todorović, D., (2015b), Chapter 9: Indoor Radon Activity Concentration Measurement Using Charcoal Canister, in: *Radon, Geology, Environmental Impact and Toxicity Concerns*, Nova Publishers, New York, USA, ISBN: 978-1-63463-742-8

Papp, B., Cosma, C., Cucos, A., (2014), International Intercomparison Exercise of Active Radon Devices and Passive Detectors at the First East European Radon Symposium (FERAS 2012), Second East European Radon Symposium, Book of Abstracts, pp. 111, ISBN 978-86-6125-100-9, 27-30. maj, Niš, Srbija and presentation (<http://www.rad2014.elfak.rs/php/download2.php?file=../prezentacije/03/Botond%20Pa pp%20et%20al.pdf>)

Prasad, M., Rawat, M., Dangwal, A., Kandari, T., Gusain, G.S., Mishra, R., Ramola, R.C., (2015), Variability of Radon and Thoron Equilibrium Factors in Indoor Environment of Garhwal Himalaya, *Journal of environmental radioactivity 151 (1)*, pp. 238-243

Prichard, H.M., Mariën, K., (1985), A Passive Diffusion ²²²Rn Sampler Based on Activated Carbon Adsorption, *Health Physics*, 48 (6), pp. 797-803

Rawlings, J.O., Pantula, S.G., Dickey, D.A., (1998) Applied Regression Analysis: A Research Tool, Second Edition, Springer-Verlag New York, Inc., New York, USA, ISBN 0-387-98454-2

Ronca-Battista, M., Gray, D., (1988), The Influence of Changing Exposure Conditions on Measurements of Radon Concentrations With the Charcoal Adsorption Technique, *Radiation Protection Dosimetry*, 24(1), pp. 361-365

Scarpita, S.C., Harley, N.H., (1990), Adsorption and Desorption of Noble Gases on Activated Charcoal: II. 222Rn Studies in a Monolayer and Packed Bed, *Health Physics*, 59(4), pp. 393-404

Službeni glasnik RS, (2009, 2012), Zakon o zaštiti od jonizujućih zračenja i o nuklearnoj sigurnosti, *Službeni glasnik RS*, br. 36/2009 i 93/2012

Službeni glasnik RS, (2011), Pravilnik o granicama izlaganja jonizujućim zračenjima i merenjima radi procene nivoa izlaganja jonizujućim zračenjima, *Službeni glasnik RS*, br. 86/2011

Službeni glasnik RS, (2010), Pravilnik o utvrđivanju programa sistematskog ispitivanja radioaktivnosti u životnoj sredini, *Službeni glasnik RS*, br. 100/2010

Šutej, T., Križman, M., Ilić, R., (1991), A New Technique for Radon Measurement Based on a Combination of a Track-Etch Detector and Activated Charcoal, *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 19(1-4), pp. 423-424

Tondeur, F., Rodenas, J., Querol, A., Ortiz, J., Juste, B., (2011), Indoor Radon Measurements in the City of Valencia, *Applied Radiation and Isotopes*, 69, pp. 1131–1133

Tsapalov, Kovler, K., Miklyaev, P., (2016), Open Charcoal Chamber Method for Mass Measurements of Radon Exhalation Rate From Soil Surface, *Journal of Environmental Radioactivity*, 160, pp. 28-35

Turner, J.E., (2007), Atoms, Radiation, and Radiation Protection, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co., KGaA, Weinheim, Germany ISBN: 978-3-527-40606-7

UNSCEAR, (2000), UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly with Scientific Annexes: Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations, New York, USA, ISBN: 92-1-142238-8

UNSCEAR, (2008), UNSCEAR 2006 Report to the General Assembly with Scientific Annexes: Effects of Ionizing Radiation, United Nations, New York, USA,

ISBN: 978-92-1-142263-4

UNSCEAR, (2010), UNSCEAR 2008 Report to the General Assembly with Scientific Annexes: Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations, New York, USA, ISBN: 978-92-1-142274-0

Urošević, V., Nikezić, D., Vulović, S., Kojić, M., (1999), Optimization of Radon Measurements with Active Charcoal, *Health Physics*, 76(6), pp. 687-691

Van Deynse, A., Cosma, C., Poffijn, A., (1999), A Passive Radon Dosimeter Based on the Combination of a Trach Etch Detector and Activated Charcoal, *Radiation Measurements*, 31, pp. 325-330

Wardrop, R.L., (2011), Statistics 371: Course Notes, Spring 2011. Chapter 4 The Poisson Distribution, University of Wisconsin-Madison, USA

WHO, (2009), WHO Handbook on Indoor Radon: A Public Health Perspective, World Health Organization, ISBN 978-92-4-154767-3

Zhukovski, M., Onischenko, A., Batrikov, V., (2010), Radon Measurements - Discussion of Error Estimates for Selected Methods, *Applied Radiation and Isotopes*, 68, pp. 816 - 820

Zikovsky, L., (2001), Temperature Dependence of Adsorption Coefficients of ^{222}Rn on Activated Charcoal Determined by Adsorption-Desorption Method, *Health Physics*, 80 (2), pp. 175 – 176

Živanović, M.Z., Nikolić, J.D., Apostol, A.I., Anagnostakis, M.J. (2012), Analysis of Interferences from Full Energy Peaks in Gamma Spectrometry of NORM and TENORM Samples, *Nuclear Technology and Radiation Protection*, 27(4), pp. 380-387

Živanović, M., Pantelić, G., Krneta Nikolić, J., Rajačić, M., Todorović, D., (2015), Opravdanost korišćenja EPA krivih za korekciju na relativnu vlažnost vazduha kod merenja radona pomoću ugljenih filtera, XXIII simpozijum DZZSCG, pp. 234-240, ISBN 978-86-7306-135-1, 30. septembar – 2. oktobar 2015.

Živanović, M.Z., Pantelić, G.K., Krneta Nikolić, J.D., Rajačić, M.M., Todorović, D.J., (2016), Radon Measurements with Charcoal Canisters: Temperature and Humidity Considerations, *Nuclear Technology and Radiation Protection*, 31(1), pp. 65-72

Biografija autora

Miloš Živanović je rođen 17.12.1986. u Beogradu, gde je završio osnovnu i srednju školu. Fakultet za fizičku hemiju Univerziteta u Beogradu je upisao 2005. godine, a diplomski rad pod nazivom „Elektrohemijske osobine LiMn_2O_4 sintetisanog različitim metodama“ je odbranio 2010. godine. Doktorske studije je upisao 2011. godine na Fakultetu za fizičku hemiju Univerziteta u Beogradu.

Po završetku osnovnih studija, zapošljava se u Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, „Zaštita“, u Institutu za nuklearne nauke „Vinča“. Od zaposlenja učestvuje na projektu III 43009 - „Nove tehnologije za monitoring i zaštitu životnog okruženja od štetnih hemijskih supstanci i radijacionog opterećenja“, finansiranog od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije. Ubrzo po zaposlenju se uključuje u rad Sekundarne standardne dozimetrijske laboratorije, koja je deo mreže laboratorija Međunarodne agencije za atomsku energiju (MAAE) i Svetske zdravstvene organizacije, kao i Metrološko-dozimetrijske laboratorije ML05, koja funkcioniše u vojnom sistemu metrologije. Od 2012. godine radi i kao ispitivač u laboratoriji za ispitivanje, na poslovima merenja koncentracije radona. Od 2015. godine je tehnički rukovodilac u sektoru za etaloniranje, a od 2016. kontakt osoba pri tehničkom komitetu za jonizujuće zračenje Evropskog udruženja nacionalnih metroloških instituta. Član je Društva za zaštitu od zračenja Srbije i Crne Gore.

Miloš Živanović aktivno učestvuje u sprovođenju EMPIR projekta (deo poziva Horizont 2020) RPT Absorb14 - “Absorbed dose in water and air”, kao i projekta MAAE TC SRB/6/012 - “Upgrading of Calibration Service for Medical Applications of Ionizing Radiation”.

Godine 2011. je uspešno prošao Obuku za rad sa otvorenim izvorima jonizujućih zračenja, a 2015. je prošao periodičnu obnovu znanja. Od oktobra 2011. godine do marta 2012. godine je uspešno završio trening kurs Postgraduate Educational Course on Radiation Protection and the Safety of Radiation Sources, organizovan od strane MAAE u trajanju od šest meseci (ekvivalent jednog semestra master studija).

Naučni doprinos

Miloš Živanović je autor više naučnih i stručnih radova. Radovi koji su od značaja za izradu ove teze, kao i koji su objavljeni na osnovu rezultata prikazanih u tezi uključuju:

- **M13:** Pantelić, G., **Živanović, M.**, Krneta Nikolić, J., Eremić Savković, M., Rajačić, M., Todorović, D., (2015b), Chapter 9: Indoor Radon Activity Concentration Measurement Using Charcoal Canister, in: Radon, Geology, Environmental Impact and Toxicity Concerns, Nova Publishers, New York, USA, ISBN: 978-1-63463-742-8
- **M21:** Pantelić, G., Eremić Savković, M., **Živanović M.**, Nikolić, J., Rajačić, M., Todorović, D., (2014), Uncertainty Evaluation in Radon Concentration Measurement Using Charcoal Canister, *Applied Radiation and Isotopes*, 87, pp. 452-455
- **M22:** **Živanovic, M.Z.**, Nikolić, J.D., Apostol, A.I., Anagnostakis, M.J. (2012), Analysis of Interferences from Full Energy Peaks in Gamma Spectrometry of NORM and TENORM Samples, *Nuclear Technology and Radiation Protection*, 27(4), pp. 380-387
- **M23:** **Živanovic, M.Z.**, Pantelić, G.K., Krneta Nikolić, J.D., Rajačić, M.M., Todorović, D.J., (2016), Radon Measurements with Charcoal Canisters: Temperature and Humidity Considerations, *Nuclear Technology and Radiation Protection*, 31(1), pp. 65-72
- **M33:** Pantelić, G., **Živanović, M.**, Rajačić, M., Nikolić, J., Todorović, D., (2013), Radon Concentration Intercomparison in Serbia, *Proceedings of the Ninth Symposium of the Croatian Radiation Protection Association*, pp. 193-198, ISBN 978-953-96133-8-7, Krk, Hrvatska, 10-12 april 2013.
- **M33:** Pantelić, G., **Živanović, M.**, Rajačić, M., Krneta Nikolić, J., Todorović, D., (2015a), QA/QC for Radon Concentration Measurement with Charcoal Canister, *Proceedings of the Tenth Symposium of the Croatian Radiation Protection Association*, pp. 384-389, ISSN 1849-5060, Šibenik, Hrvatska, 15-17. april 2015.

- **M63:** *Živanović, M.*, Pantelić, G., Krneta Nikolić, J., Rajačić, M., Todorović, D., (2015), Opravdanost korišćenja EPA krivih za korekciju na relativnu vlažnost vazduha kod merenja radona pomoću ugljenih filtera, XXIII simpozijum DZZSCG, pp. 234-240, ISBN 978-86-7306-135-1, 30. septembar – 2. oktobar 2015.

Прилог 1.

Изјава о ауторству

Потписани-а _____ Милош З. Живановић _____

број индекса _____ 2010/0318 _____

Изјављујем

да је докторска дисертација под насловом

Оптимизација мерења концентрације радона у затвореном простору
методом угљених филтера

- 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 Милош З. Живановић

Број индекса 2010/318

Студијски програм Докторске студије физичке хемије

Наслов рада Оптимизација мерења концентрације радона у затвореном простору методом угљених филтера

Ментори др Шћепан Миљанић, редовни професор, Факултет за физичку хемију, Универзитет у Београду и др Гордана Пантелић, научни сарадник, Институт за нуклеарне науке Винча, Универзитет у Београду

Потписани Милош Живановић

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:

Оптимизација мерења концентрације радона у затвореном простору _____
методом угљених филтера _____

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.